Thermochronométrie basse température (U-Th-Sm)/He : méthodologie et applications géodynamiques

Alice Recanati

▶ **To cite this version:**

Alice Recanati. Thermochronométrie basse température (U-Th-Sm)/He : méthodologie et applications géodynamiques. Géochimie. Université Paris Saclay (COmUE), 2018. Français. NNT : 2018SACLS038 . tel-02388088

HAL Id: tel-02388088

https://theses.hal.science/tel-02388088

Submitted on 1 Dec 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

université PARIS-SACLAY

NNT : 2018SACLS038

Thèse de doctorat

GEOPS GEOSCIENCES PARIS SUD

UNIVERSITÉ PARIS SUD
Comprendre le monde, construire l'avenir

Thermochronométrie basse température (U-Th-Sm)/He : méthodologie et applications géodynamiques

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay
préparée à l'Université Paris-Sud

École doctorale n°579 Sciences Mécaniques et Energétiques Matériaux et Géosciences (SMEMAG)
Spécialité de doctorat : Terre solide - Géodynamique des enveloppes supérieures, paléobiosphère

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 12 février 2018, par

Alice RECANATI

Composition du Jury :

Philippe SARDA Pr, Université Paris Sud (– GEOPS Orsay)	Président
Jacques DEVERCHERE Pr, Université de Bretagne Occidentale (– IUEM)	Rapporteur
Philippe MUNCH Pr, Université Montpellier II (– GEOM)	Rapporteur
Anne-Magali SEYDOUX GUILLAUME CR, CNRS (– LMV, OPGC, Saint Etienne	Examinatrice
Stéphanie BRICHAU Chercheur, IRD (– GET Toulouse)	Examinatrice
Cécile GAUTHERON Pr, Université Paris Sud (– GEOPS Orsay)	Directrice de thèse
Yves MISSENARD MC, Université Paris Sud (– GEOPS Orsay)	Co-Directeur de thèse

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France

Thermochronométrie basse température

(U-Th-Sm)/He : méthodologie

et application géodynamique

Alice RECANATI

Remerciements

Cette thèse est l'accomplissement de trois années de ma vie, et je remercie tous ceux qui m'ont aidé à réussir cette étape. Tout d'abord, je tiens à remercier chaleureusement Cécile et Yves, qui ont accepté de tenter l'aventure avec moi, de me diriger, et de me former aux joies de la recherche. C'était un grand plaisir de suivre leurs conseils avisés et je leur suis infiniment reconnaissante pour le temps qu'ils m'ont consacré.

Je voudrais ensuite dire un grand merci à mon jury d'avoir accepté de venir évaluer cette thèse. Je pense spécialement à J. Deverchère et P. Munch qui ont bien voulu être rapporteurs, à P. Sarda pour avoir présidé ce jury. Je suis très heureuse que S. Brichau, N. Abdallah, et A-M Seydoux-Guillaume puissent venir assister à ma soutenance que j'aurais plaisir à présenter.

Cette thèse est le fruit de plusieurs collaborations, et est interdisciplinaire : elle mêle thermochronologie, tectonique, minéralogie, physique, et informatique. J'ai été très heureuse de travailler dans ces domaines variés, et je remercie tous les chercheurs qui m'ont formée à leur discipline. Merci à Frédérico, Cyril, et Laurent pour m'avoir bien expliqué la physique des atomes et particules dans les cristaux. Chapeau bas à Anne-Magali pour m'avoir montré les manipulations de microscopie électronique et pour avoir été très disponible. Je suis très reconnaissante à Nistor et Younès pour tout le temps qu'ils ont passé pour l'exploration des données.

Je remercie également les ingénieurs et anciens doctorants qui m'ont encadrée et m'ont appris à utiliser les techniques : spécialement Ludovic qui m'a enseigné à manipuler le spectromètre de masse, Rosella, qui m'a appris à dissoudre les apatites et à faire des plots, Louise et Frédéric qui m'ont montré comment acquérir et traiter les données d'ICP-MS.

Enfin, je suis très reconnaissante à tous les co-auteurs de mes articles d'avoir réalisé des commentaires fructueux. D'autre part, je remercie les membres de mon comité de thèse, Peter et Xavier, ainsi que l'ensemble de l'école doctorale, pour m'avoir encouragée à mener à bien la thèse, et m'avoir orientée.

J'ai partagé ces trois années avec les autres doctorants, qui m'ont beaucoup appris également. Je les remercie pour ces moments, ces pauses déjeuners, banania-thé, café, et les soirées parisiennes ou guichéennes passées ensemble. Merci donc à Tony, Morgane, Ludovic, Quentin, Fanny, Guillaume, Clémence, Floriane, Maxime, Maxence, Mustafa, Simon, Margot, Alexis, Inès, Anthony, Abdel, et Aristide.

Merci aussi à tout le laboratoire pour les pauses gâteaux. Merci tout particulier à Rémi, Djouher, Thomas, et Oriane pour avoir été des super compagnons de bureau. Je remercie également chaleureusement les secrétaires, et administratifs – plus particulièrement Chantal pour m'avoir beaucoup aidée dans la gestion de mes projets, et Evelyne pour les discussions bibliophiles et pour m'avoir prêté des belles roches. Merci à Véronique pour ces trajets et à Valérie pour m'avoir montré son laboratoire de lames minces.

Cette thèse n'aurait pas pu être réussie sans toutes les personnes qui m'ont soutenue et qui m'ont aidée pendant ces trois années. Je pense d'abord à ma famille : mes parents, mon frère, ma belle-sœur, et mon grand-père ; ainsi que mes cousins. Ils m'ont été très précieux, de conseils et d'enthousiasme, et ont participé activement à cette thèse. Merci et bravo à Elise et à Roland sans qui il m'aurait été très difficile de mener à bien cette thèse, et dont les conseils et l'optimisme me sont très précieux. Merci à tout l'orchestre ut 5, l'orchestre debout, la cave du 38 riv', la troupe de danse africaine, qui ont enjolivé mes soirées et entrecoupé ma thèse de spectacles. Mes pensées vont également à mes amis qui sont toujours là pour moi et comptent beaucoup pour moi : plus particulièrement, Aura et Emmanuel, Stella et Cédric, Marion et Greg, Lilio, Adèle, Eva, les Vager, Monsonis, les Toutchev, et les Citron.

Table des matières

REMERCIEMENTS 3

INTRODUCTION 9

1. APPORT DE LA THERMOCHRONOLOGIE 9

2. LA THERMOCHRONOLOGIE (U-TH-SM)/HE SUR APATITE 10

3. OBJECTIF DE CE TRAVAIL DE THESE 12

4. STRATEGIE ANALYTIQUE ET PLAN DU MEMOIRE 13

5. INTERET DES CONTEXTES D'ETUDE 16

PARTIE I: ETAT DE L'ART ET METHODOLOGIE 19

CHAPITRE 1 : THERMOCHRONOLOGIE BASSE TEMPERATURE - ETAT DE L'ART 21

1. INTRODUCTION 21

2. LE MINERAL APATITE 26

3. LA THERMOCHRONOLOGIE TRACES DE FISSION SUR APATITE 29

4. LA THERMOCHRONOLOGIE (U-TH-SM)/HE SUR APATITE 41

4.1 PRODUCTION ET EJECTION DE L'HELIUM 41

4.2 LA DIFFUSION DE L'HELIUM 44

5. MODELISATION DES DONNEES THERMOCHRONOLOGIQUES 61

5.1 MODELISATION DES DONNEES AFT ET AHE 61

5.2. LOGICIELS 64

6. PERSPECTIVES DE RECHERCHE 66

6.1 AMELIORATIONS A APPORTER AUX MODELES DE DIFFUSION D'HELIUM DANS L'APATITE 66

6.2 THERMOCHRONOLOGIE ET CHIMIE DES APATITES 68

6.3 DISPERSION ET GEOMETRIE DES CRISTAUX 69

7. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE ET DE L'INTRODUCTION 70

CHAPITRE 2 : METHODOLOGIE ET TECHNIQUES ANALYTIQUES 77

1. INTRODUCTION 77

2. SEPARATION DES APATITES 79

3. ANALYSE DES TRACES DE FISSION 82

4. ANALYSE DE LA CONCENTRATION EN HELIUM 83

4.1 PREPARATION DES ECHANTILLONS 83

4.2 EXTRACTION ET ANALYSE DE L'HELIUM 84

4.3 BLANCS ET STANDARDS 89

5. DOSAGE DES ELEMENTS MINEURS ET TRACES DANS L'APATITE 92
5.1. PROTOCOLE DE DISSOLUTION DES APATITES 92
5.2. ANALYSES ELEMENTAIRES ET ISOTOPIQUES AVEC L'ICP-MS 94
5.3. ANALYSE DES APATITES PAR MICROSONDE ELECTRONIQUE 109

6. CARACTERISATION EXPERIMENTALE DES DEFAUTS DE L'APATITE 112
6.1. IMPLANTATION DES APATITES EN HELIUM ET EN OR 112
6.2. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE EN TRANSMISSION 115
6.3. SPECTROSCOPIE RETRO-DIFFUSEE DE RUTHERFORD (RBS/C) 122

7. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 125

PARTIE II : RETENTION D'HELIUM ET DISPERSION DES AGES (U-TH-SM)/HE SUR APATITE – ETUDE DE CAS NATURELS 127

CHAPITRE 3 : RETENTION ACCRUE D'HELIUM ET DISPERSION DES AGES DANS LE MASSIF ARMORICAIN : LE CAS DU TREGOR 129

1. INTRODUCTION : CHOIX DU SITE D'ETUDE 129

2. CONTEXTE GEOLOGIQUE 130
2.1. LOCALISATION DE L'ETUDE 130
2.2. HISTOIRE(S) GEOLOGIQUE(S) 133
2.3. DEVELOPPEMENTS RECENTS : ETUDE DES PALEO-SURFACES MESO-CENOZOÏQUES 137
2.4. LE PLUTON DE PLOUMANAC'H 139

3. APPORTS D'UNE ETUDE THERMOCHRONOLOGIQUE DU MASSIF 143
3.1 AMELIORATIONS METHODOLOGIQUES 143
3.2 INTERET GEOCHIMIQUE D'UNE APPROCHE DE « BIG DATA » 143
3.3 INTERET GEOLOGIQUE : PRECISER L'HISTOIRE THERMIQUE 144

4. APPORTS SUR LE PIEGEAGE D'HELIUM DANS LES DEFAUTS 146

5. APPORTS SUR L'HISTOIRE THERMIQUE DU MASSIF ARMORICAIN 195
5.1. INVERSION DES DONNEES TRACES DE FISSION 195
5.2. COMBINAISON AFT ET AHE 198

6. CONCLUSION GENERALE 202

7. BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 205

CHAPITRE 4: ETUDE THERMOCHRONOLOGIQUE DES MASSIFS DE L'AAR ET DES AIGUILLES ROUGES, ALPES SUISSES 209

1. INTRODUCTION : CHOIX DU SITE D'ETUDE 209

2. EVOLUTION TECTONIQUE DE LA VALLEE DU RHONE SUISSE 212

3. DONNEES THERMOCHRONOMETRIQUES DU MASSIF DE L'AAR 214

4.APATITE (U-TH-SM)/HE THERMOCHRONOMETRY IN THE AIGUILLES ROUGES AND AAR MASSIFS (SWITZERLAND): HOW TO INTERPRET DATA DISPERSION? 221

5. BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 255

PARTIE III: APPROCHES INTERDISCIPLINAIRES 259

CHAPITRE 5 : APPORT DES ALGORITHMES D'APPRENTISSAGE POUR COMPRENDRE LA DISPERSION DES AGES (U-TH-SM)/HE SUR APATITE 261

1. INTRODUCTION: 261

2. INTERET DES METHODES D'EXPLORATION DE DONNEES 263

3. PROTOCOLE ET METHODES 271
3.1 DONNEES D'ENTREE 271
3.2 ALGORITHME DE PREDICTION : ARBRES DE REGRESSION ET FORETS ALEATOIRES 272
3.3 LOGICIEL KNIME ET ALGORITHMES UTILISES 279

4. RESULTATS 282
4.1 : FORET ALEATOIRE ET RESULTATS DES PREDICTIONS 282
4.2 : ARBRES PREDICTIFS : QUELLE EST L'INFLUENCE DE LA CHIMIE ? 284
4.3 : ARBRES PREDICTIFS : QUELLE EST L'INFLUENCE DE LA GEOMETRIE DES CRISTAUX ? 289
4.4 : PREVISION DE LA DISPERSION DES AGES THERMOCHRONOMETRIQUES 290

5. CONCLUSION 291

6. BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 293

CHAPITRE 6 : OBSERVATION ET CARACTERISATION DES DOMMAGES DANS L'APATITE 295

1. BUT DES EXPERIENCES 295

2. CARACTERISATION DES DEFAUTS PAR MICROSCOPIE ELECTRONIQUE 302
2.1. RESULTATS DES IMPLANTATIONS 302
2.2. OBSERVATION DE L'ECHANTILLON TEMOIN 304
2.3. OBSERVATION DES ECHANTILLONS IRRADIES 307

3. CARACTERISATION DES DEFAUTS PAR SPECTROSCOPIE RETRODIFFUSEE DE RUTHERFORD 309
3.1. CRISTAL HE 1 309
3.2 AUTRES CRISTAUX 312

4. CONCLUSION GENERALE 314

5. REFERENCES 315

PARTIE IV: APPLICATION GEOLOGIQUE A LA MARGE ALGERIENNE 317

CHAPITRE 7: EVOLUTION DE LA MARGE DE LA PETITE KABYLIE (ALGERIE)- APPORTS DE LA THERMOCHRONOLOGIE BASSE TEMPERATURE 319

1. INTRODUCTION : CHOIX DU SITE D'ETUDE 319

1. LA PETITE KABYLIE 322

2. CAP BOUGAROUN 328

3. A TORTONIAN ONSET OF THE ALGERIAN MARGIN UNDERTHRUSTING: FIRST EVIDENCE FROM LOW TEMPERATURE THERMOCHRONOLOGY 335

4. CONCLUSION GENERALE 356

5. BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 357

CONCLUSION ET ANNEXES **361**

CONCLUSION **363**

1. LES MODELES ACTUELS DE DIFFUSION DE L'HE DANS L'APATITE **363**

2. APPORT AU MODELE DE GERIN ET AL. (2017) **364**

3. LA DISPERSION DES AGES (U-TH-SM)/HE SUR APATITE **366**

4. COMBINAISON DES DONNEES AFT ET AHE **367**

5. APPORT DE NOUVELLES APPROCHES INTERDISCIPLINAIRES **368**

6. LA GEOLOGIE DU MASSIF ARMORICAIN **371**

7. LA GEOLOGIE DE LA PETITE KABYLIE (ALGERIE) **372**

8. PERSPECTIVES **373**

9. BIBLIOGRAPHIE DE LA CONCLUSION **374**

ANNEXES **377**

1. INTRODUCTION : ACTIVITES AU COURS DE LA THESE **377**

2. CONFERENCES **378**

HELIUM TRAPPING IN APATITE DAMAGE: INSIGHTS FROM OVERLY DISPERSED (U-TH-SM)/HE DATES. **398**

3. CONGRES DES DOCTORANTS **401**

CONTROLS ON HELIUM RETENTION IN APATITES FROM THE TREGOR (ARMORICAN MASSIF, FRANCE) **401**

NEOGENE INVERSION OF LESSER KABYLIA DATED BY (U-TH-SM)/HE THERMOCHRONOMETRY **406**

4. INFORMATIONS SUPPLEMENTAIRES AUX ARTICLES **411**

4.1 ARTICLE PRESENTE AU CHAPITRE 3 : 411

4.2 ARTICLE PRÉSENTÉ AU CHAPITRE 4 : 430

4.3 ARTICLE PRÉSENTÉ AU CHAPITRE 8 : 438

5. BIBLIOGRAPHIE DES ANNEXES **450**

Introduction

1. Apport de la thermochronologie

La thermochronologie est un outil qui permet, en complément de la tectonique et de la sédimentologie, de déterminer l'histoire thermique des roches. Dans les chaînes de montagne actives par exemple, elle permet de déterminer la date du refroidissement – et donc de l'exhumation – à des températures inférieures à une valeur critique. Les techniques de thermochronologie peuvent s'appliquer à des minéraux trouvés dans les roches ignées (ex : zircon, apatite, titanite, biotite, hornblende, muscovite, …).

L'évolution de la température des roches permet également de retracer les périodes de compression et d'extension tectonique. En effet, lors de la compression a lieu une exhumation de la roche (au cœur d'un pli par exemple), associée à un refroidissement si ce pli s'érode. Les périodes d'extension peuvent induire de la subsidence et donc un réchauffement si des séries sédimentaires sont accumulées. La thermochronologie est donc appliquée pour contraindre l'évolution tectonique régionale.

Plusieurs techniques de thermochronologie permettent de retracer l'histoire thermique des roches. Les thermochronomètres sont classés en fonction de la gamme de températures à laquelle ils sont sensibles. La datation (U-Th)/He ou les traces de fission sur zircon sont efficaces pour observer les mouvements plus superficiels, au-dessus de l'isotherme 180°C – 250°C. (e.g. Bernet et al., 2002 , 2009 ; Balestrieri et al., 2003 ; Reiners 2005). La datation traces de fission et (U-Th-Sm)/He sur apatite est, elle, sensible aux faibles températures, et retrace le refroidissement sous 40-120°C (Gallagher et al., 1998 ; Flowers et al., 2009 ; Gautheron et al., 2009 ; Djimbi et al., 2015). Ainsi, les techniques de basse température permettent de sonder l'histoire thermique des premiers kilomètres de la croûte.

	Sensibilité thermique (°C)	Références
Ar-Ar sur biotite	400	Pollard et al. (2002)
ZFT	180-250	Bernet et al. (2002)
AFT	60-120	Green et al. (1989)
AHe	40-100	Gallagher et al. (1998)

Tableau O-1 : Sensibilités thermiques des différents thermochronomètres

Ces méthodes permettent donc de caractériser l'histoire thermique des roches. Il est intéressant de combiner plusieurs thermochronomètres, ainsi que d'utiliser des contraintes géologiques existant par ailleurs, afin d'améliorer notre connaissance de l'histoire géologique régionale et des mécanismes sous-jacents. Dans cette thèse, nous avons décidé de nous concentrer sur les thermochronomètres de basse température : les traces de fission et la thermochronologie (U-Th-Sm)/He sur apatite. Le premier thermochronomètre a déjà été bien étudié depuis une trentaine d'années, tandis que le deuxième est plus récent.

2. La thermochronologie (U-Th-Sm)/He sur apatite

Née dans les années 1990 (Zeitler et al., 1987), la thermochronologie (U-Th-Sm)/He sur apatite (AHe) se base sur la production d'hélium radiogénique dans les minéraux suite à la désintégration radioactive de l'U, du Th, et du Sm. Pour des échelles de temps géologiques, au dessous de 40 à 120°C, cet hélium est stocké partiellement dans le réseau cristallin de l'apatite, tandis qu'à plus forte température, il diffuse complètement hors du cristal. L'âge thermochronologique (U-Th-Sm)/He est la quantité d'hélium retenue dans le cristal divisée par le taux de production d'hélium par an (qui dépend des concentrations d'U-Th et Sm contenues dans le cristal). Si le refroidissement a lieu en une seule phase, cet âge correspond à l'âge du refroidissement sous un isotherme compris entre 40-120°C.

L'interprétation des âges AHe a beaucoup évolué suite aux nombreux travaux sur la diffusion de l'hélium dans l'apatite (e.g. Farley et al., 1996 ; 1999 ; Farley 2000, 2002 ; Stockli et al., 2000 ; Shuster et al., 2006 ; Bengston et al., 2012, Djimbi et al., 2015). Shuster et al. (2006) ont proposé que les particules alpha émises lors de la désintégration endommagent le réseau cristallin. La diffusion est alors d'autant plus lente qu'il y a de dommages dans l'apatite. Ces travaux ont conduit aux principaux modèles classiquement utilisés datant de 2009 (Flowers et al., 2009 ; Gautheron et al., 2009). Des améliorations ont ensuite été apportées grâce aux travaux théoriques à petite échelle de Gautheron et Tassan-Got (2010), Gautheron et al. (2012), et Djimbi et al. (2015). Elles ont conduit à l'élaboration récente d'un modèle de diffusion de Gerin et al. (2017).

La thermochronométrie est très utilisée en contexte actif comme les chaînes de montagnes, où l'histoire du refroidissement est simple. Elle date alors les mouvements tectoniques ou le refroidissement par dénudation en-dessous de 40-120°C. L'interprétation des âges est alors relativement simple et permet de retracer les taux d'érosion ou de sédimentation. Néanmoins, dans les contextes passifs (marges passives, cratons anciens), les âges thermochronométriques sont plus difficiles à interpréter car ils sont dispersés par le long séjour dans le domaine de diffusion partielle de l'Hélium.

Des progrès méthodologiques sont donc envisageables pour améliorer notre connaissance et notre utilisation de l'outil thermochronométrique AHe. Le point crucial à comprendre est la dispersion des âges thermochronologiques pour une même histoire thermique. Il nous faut comprendre pourquoi certains cristaux d'apatite retiennent mieux l'hélium que d'autres. Pour cela, il est nécessaire d'étudier les mécanismes de stockage de l'hélium dans les minéraux. Les travaux de Shuster et al. (2006), Shuster et Farley (2009), et Flowers et al. (2009) ont montré que les apatites endommagées retiennent mieux l'hélium que

les apatites dépourvues de défauts. Gautheron et al. (2013) montre que la composition chimique des apatites jouerait également sur la capacité des apatites à retenir l'hélium.

3. Objectif de ce travail de thèse

Bien que la thermochronologie basse température soit très utilisée à des fins géomorphologiques et tectoniques, l'interprétation des âges (U-Th-Sm)/He sur apatite et sa combinaison avec les données traces de fission sur apatite (AFT) s'avèrent parfois délicates. Dans certains contextes par exemple, les âges AHe sont très dispersés, ce qui est contraire aux théories actuelles sur le fonctionnement de ce thermochronomètre (e.g. Flowers and Kelley, 2011).

Un travail sur la méthode est nécessaire, avant de pouvoir interpréter les données du thermochronomètre AHe le plus justement possible. Le but de cette partie méthodologique est de travailler sur l'impact de différents paramètres sur la diffusion de l'He dans l'apatite. Ainsi, nous pourrons comprendre l'origine de la dispersion des âges AHe. Nous étudierons les âges AHe pour un grand nombre de cristaux pour lesquels la mesure de la composition chimique a été réalisée. A partir de la concentration en U, Th, Sm, nous modélisons aussi le nombre de dommages créés. En effet, la quantité de dommages créée en un temps donné dépend directement des concentrations en radionucléides pères. Dans ce travail de thèse, nous nous sommes focalisés sur différents contextes géologiques. En effet, en fonction du contexte géologique, la dispersion des âges AHe sera différente, reflétant l'impact de l'histoire thermique et de la variablité du coefficient de diffusion de l'He dans l'apatite.

Dans le cas d'une exhumation rapide, comme dans les chaînes de montagne actives, les âges AHe sont moins dispersés que dans un craton resté longtemps dans la zone de 40 à 120°C. Ainsi, nous ferons deux études de cas correspondant à des histoires thermiques radicalement différentes : l'une dans une zone ancienne relativement stable – le Massif

Armoricain, l'autre dans une chaîne de montagne active – les Alpes. D'autre part, nous rechercherons à l'échelle sub-micrométrique les mécanismes impliqués dans la technique afin de mieux la comprendre.

Après cette partie de méthodologie, nous pourrons utiliser la thermochronologie basse température sur apatite dans des contextes dont la géodynamique et la tectonique ne sont pas encore bien compris. Nous avons choisi comme zone d'étude le Maghreb, qui inclut une chaîne de >2000 km de long – les Maghrébides – portant les témoins de la compression et de la dynamique du slab lors de la subduction. Nous avons travaillé plus spécifiquement sur la marge algérienne, car – bien que son évolution soit discutée sur des bases sédimentologique et sismique (Benaouali et al., 2006 ; Medaouri, 2014 ; Arab et al., 2016) — elle est très peu documentée d'un point de vue thermochronométrique. Or, ce volet nous paraît indispensable pour discuter de la chronologie des épisodes de compression et d'extension ayant affecté la marge.

4. Stratégie analytique et plan du mémoire

Le mémoire comprend quatre parties, chacune divisée en deux chapitres. Les deux premiers (état de l'art, matériel et méthodes), introduisent la problématique du sujet, l'état d'avancement actuel en matière de thermochronologie, et les progrès techniques ou théoriques qu'il reste à réaliser. Puis, la deuxième partie porte sur la méthodologie (U-Th-Sm)/He sur apatite en essayant d'apporter des innovations à celle-ci. Le chapitre 3 est axé sur le Massif Armoricain, le chapitre 4 sur les Alpes Suisses. Dans chacun de ces chapitres, nous avons étudié la dispersion des âges AHe et les capacités de rétention de l'hélium par les apatites. La troisième partie a également un caractère méthodologique, mais utilise des nouvelles méthodes multidisciplinaires pour comprendre et interpréter les données : le chapitre 5 utilise des techniques statistiques, et le chapitre 6 de la minéralogie expérimentale. Enfin, la dernière

partie (chapitres 7 et 8), porte sur une application de la technique au granite de Bougaroun, en Algérie.

La première partie est méthodologique et inclut un volet analytique d'étude de la dispersion naturelle des âges AHe dans deux contextes différents : le Massif Armoricain (chapitre 3) et les Alpes Suisses (chapitre 4). L'étude du Massif Armoricain comprend la caractérisation complète des âges thermochronologiques et leur modélisation, réalisée en collaboration avec l'Université de Rennes (Kerry Gallagher) et l'IPN d'Orsay (Laurent Tassan-Got). La caractérisation chimique des cristaux d'apatite est documentée grâce à une collaboration avec le LSCE de Gif/Yvette (Eric Douville et Louise Bordier), et l'université de Londres (Andy Carter).

Les Alpes Suisses documentent un contexte géologique bien différent du Massif Armoricain, de par les vitesses d'exhumation et l'histoire thermique. Cette étude des Alpes Suisses a été réalisée en collaboration avec des chercheurs de l'université de Grenoble (Peter van der Beek ; Pierre Valla) qui ont travaillé sur la vallée du Rhône et déterminé l'histoire thermique de cette région (Valla et al., 2011, 2012, et 2016). Ainsi, ce cas d'étude présenté dans le chapitre 4 permet de tester les paramètres influençant la diffusion de l'He pour le thermochronomètre AHe pour une histoire thermique simple et connue (Valla et al., 2011, 2012, 2016).

D'autre part, au cours de cette thèse a été initiée une collaboration avec l'équipe du laboratoire d'informatique de Paris Nord (Younnès Bennani, Nistor Grozavu) afin de traiter la quantité élevée de données impliquées, grâce aux techniques issues de l'informatique et des statistiques (apprentissage, big data, exploration de données). Cette collaboration interdisciplinaire est présentée dans le chapitre 5, afin de caractériser la dispersion des âges AHe du Massif Armoricain.

A la suite de ce volet statistique, nous avons été en mesure de proposer les paramètres qui expliquent le mieux la dispersion naturelle des âges AHe et de proposer des hypothèses concernant le stockage de l'hélium dans les dommages cristallins et la relation âge/chimie pour l'apatite. La partie méthodologique se termine par le chapitre 6 qui est davantage expérimental. Il a pour but d'imager et de quantifier les défauts naturels présents dans des cristaux d'apatite. Il a été réalisé grâce aux nombreuses techniques proposées par une collaboration avec des équipes de physiciens basés au CSNSM d'Orsay (Cyril Bachelet, Frédérico Garrido) à l'IPN d'Orsay (Laurent Tassan-Got), et d'une minéralogiste de l'Université de Saint Etienne (Anne-Magali Seydoux Guillaume). Par l'implantation artificielle d'hélium, nous avons simulé la production des défauts alpha.

La quatrième partie, applicative, de cette thèse concerne la datation de la marge algérienne par la thermochronologie (U-Th-Sm)/He, présentée dans le chapitre 7 et 8. Cette marge, à priori passive, est le siège d'une activité tectonique importante, dont témoignent par exemple le séisme d'El Asnam en 1980 et celui de Boumerdès en 2003. La convergence Afrique-Eurasie est à l'origine de cette activité. Néanmoins, l'évolution cénozoïque de la marge algérienne est encore mal connue : l'enjeu est de comprendre la chronologie des mouvements verticaux. Ainsi, ce domaine gagnerait à être étudié davantage, en particulier grâce à la thermochronologie. La Petite Kabylie, accolée à la marge Algérienne, contient des plutons de granites favorables à une telle étude (Abbassene et al., 2016). Ce travail a été possible grâce à une collaboration avec l'Université des Sciences et Technologies Hari Bourmediene (Aziouz Ouabadi, Fatiha Abbassene, Nachida Abdallah). Le but de notre étude est de contraindre l'histoire géodynamique récente en retraçant les épisodes de création de relief et de surrection tectonique, ainsi que les épisodes de dénudation. Lors de la convergence entre l'Afrique et l'Eurasie, la déformation de la marge a pu provoquer des mouvements détectables par la thermochronométrie AHe et AFT.

5. Intérêt des contextes d'étude

Trois contextes géologiques sont donc étudiés dans ce manuscrit : le Massif Armoricain, les Alpes Suisses, et la marge Algérienne. Les deux premiers contextes ont été sélectionnés car ils présentent un intérêt méthodologique : l'histoire thermique du massif Armoricain et celle des Alpes Suisses comportent un certain nombre de contraintes relativement bien mentionnées dans la littérature. Ces deux cas sont très différents. Les Alpes Suisses ont eu une histoire d'exhumation rapide récemment (il y a moins de 10 Ma), montrant un refroidissement monophasé lié à l'érosion du massif (Valla et al., 2012). Le Massif Armoricain a subi une exhumation beaucoup plus ancienne, depuis le Permo-Trias. Certains auteurs (Ballouard et al., 2015) pensent que cette exhumation est monophasée, et que le massif Armoricain est resté en hauteur comme un île depuis le Trias. D'autres auteurs (Bessin et al., 2015) pensent que comme le Bassin de Paris, le Massif Armoricain a également subi une succession de cycles de transgression et de régression marine. Ainsi, l'histoire thermique du Trégor a peut-être subi une histoire polyphasée.

L'intérêt de notre approche thermochronologique est de mieux contraindre l'histoire thermique, et donc de pouvoir distinguer ces deux scénarios thermiques. L'histoire thermique peut être reliée aux mouvements verticaux. La thermochronométrie permet alors de comprendre l'évolution tectonique d'une région. Les épisodes d'uplift sont par exemple souvent accompagnés d'une érosion qui refroidit les plutons ; tandis que les épisodes de subsidence peuvent être suivis d'une période de sédimentation et de réchauffement.

Les zones de subduction sont généralement affectées par de tels mouvements verticaux. Les épisodes de compression du prisme d'accrétion peuvent créer de l'uplift, et l'extension dans les bassins d'arrière arc peut être accompagnée d'épisodes de subsidence. Ainsi, l'application de la thermochronométrie basse température aux zones de subduction est digne d'intérêt. La marge algérienne a été choisie a cet effet car elle est en cours d'inversion

tectonique. La thermochronologie pourrait ainsi nous permettre de dater cette inversion récente – à savoir le passage d'un régime extensif à un régime compressif.

PARTIE I: ETAT DE L'ART ET METHODOLOGIE

CHAPITRE 1 : THERMOCHRONOLOGIE BASSE TEMPERATURE - ETAT DE L'ART 21

1. INTRODUCTION 21

2. LE MINERAL APATITE 26

3. LA THERMOCHRONOLOGIE TRACES DE FISSION SUR APATITE 29

4. LA THERMOCHRONOLOGIE (U-TH-SM)/HE SUR APATITE 41

4.1 PRODUCTION ET EJECTION DE L'HELIUM 41

4.2 LA DIFFUSION DE L'HELIUM 44

5. MODELISATION DES DONNEES THERMOCHRONOLOGIQUES 61

5.1 MODELISATION DES DONNEES AFT ET AHE 61

5.2. LOGICIELS 64

6. PERSPECTIVES DE RECHERCHE 66

6.1 AMELIORATIONS A APPORTER AUX MODELES DE DIFFUSION D'HELIUM DANS L'APATITE 66

6.2 THERMOCHRONOLOGIE ET CHIMIE DES APATITES 68

6.3 DISPERSION ET GEOMETRIE DES CRISTAUX 69

7. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE ET DE L'INTRODUCTION 70

CHAPITRE 2 : METHODOLOGIE ET TECHNIQUES ANALYTIQUES 77

1. INTRODUCTION 77

2. SEPARATION DES APATITES 79

3. ANALYSE DES TRACES DE FISSION 82

4. ANALYSE DE LA CONCENTRATION EN HELIUM 83

4.1 PREPARATION DES ECHANTILLONS 83

4.2 EXTRACTION ET ANALYSE DE L'HELIUM 84

4.3 BLANCS ET STANDARDS 89

5. DOSAGE DES ELEMENTS MINEURS ET TRACES DANS L'APATITE 92

5.1. PROTOCOLE DE DISSOLUTION DES APATITES 92

5.2. ANALYSES ELEMENTAIRES ET ISOTOPIQUES AVEC L'ICP-MS 94

5.3. ANALYSE DES APATITES PAR MICROSONDE ELECTRONIQUE 109

6. CARACTERISATION EXPERIMENTALE DES DEFAUTS DE L'APATITE 112

6.1. IMPLANTATION DES APATITES EN HELIUM ET EN OR 112

6.2. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE EN TRANSMISSION 115

6.3. SPECTROSCOPIE RETRO-DIFFUSEE DE RUTHERFORD (RBS/C) 122

7. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 125

Chapitre 1 : Thermochronologie basse température - Etat de l'Art

1. Introduction

La géochronologie est basée sur la désintégration d'un radionucléide père en élément fils radiogénique dans un minéral donné. Les fondements de base de cette technique ont été énoncés au début du XXème siècle (Rutherford et Soddy, 1902 ; Rutherford, 1905 ; Strutt, 1908). La loi de désintégration suit une équation différentielle d'ordre un, de laquelle provient l'expression de l'âge géochronologique (équation I-1). Selon cette équation, F est le nombre d'atomes de l'élément fils à l'instant t en seconde, P celle de l'élément père, et λ la constante de désintégration en s^{-1}.

$$t = \frac{\ln\left(1 + F/P\right)}{\lambda}$$

Équation I-1 : Loi de désintégration radioactive (Rutherford et Soddy, 1902)

Dans le cas du chronomètre (U-Th-Sm)/^{4}He, le ^{4}He radiogénique est produit par la radioactivité alpha lors de la désintégration radioactive de l'U, du Th, et du Sm. Néanmoins, l'élément fils n'est pas toujours retenu intégralement dans la structure (i.e. le réseau cristallin). Dans les années 1950, Hurley (1954) et Damon et Kulp (1957) se rendent compte que les âges U/^{4}He (les concentrations de Th et Sm ne sont pas mesurées pour les premières données) sont globalement trop jeunes par rapport à l'âge de formation, et ne sont pas reproductibles. Vers la fin des années 1960, la datation U/^{4}He a été très peu utilisée voire abandonnée alors que la plupart des techniques thermochronométriques modernes, comme celle du comptage des traces de fission produites par la fission de l'^{238}U, se développaient (Price et Walker 1962a, 1962b, 1963 ; Naeser et Faul, 1969).

Ce sont les travaux de Zeitler et al. (1987) qui réhabiliteront la méthode (U-Th)/^{4}He (le Th est à partir de 1987 mesuré en routine lors de l'acquisition des âges), démontrant que la diffusion d'hélium hors de l'apatite engendre une perte d'He qui produit des âges plus jeunes que l'âge de formation. La quantité d'élément fils retenu dépend de la température, des coefficients de diffusion, et de la taille de grain. Le même constat s'établit pour d'autres chronomètres tels que les traces de fission et le système ^{40}Ar/^{39}Ar où il est démontré que les traces produites cicatrisent avec la température (Green et al., 1989). Le terme de thermochronologie est apparu dans Berger et York (1981) dans le cas du système ^{40}Ar/^{39}Ar, pour indiquer que l'élément fils n'est pas entièrement gardé dans le cristal et que sa perte est liée à la température.

La diffusion est régie par le coefficient de diffusion D, et la Loi de Fick (équation I-2) est alors utilisée pour reproduire de manière macroscopique le comportement diffusif. Plus le coefficient D est élevé, plus la perte du soluté dans le temps sera importante. De même, la loi d'Arrhénius (équation I-3) reproduit l'évolution du coefficient de diffusion avec la température. Ce coefficient de diffusion augmente exponentiellement avec la température, où E est l'énergie d'activation en kJ/mol et D_0 le coefficient de diffusion en cm^2/s).

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D\left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2}\right)$$ **Équation I-2 : Loi de Fick (1855)**

Cette loi régit la diffusion d'un soluté en concentration C en trois dimensions x, y, et z.

$$\frac{D}{a^2} = \frac{D_0}{a^2}\exp\left(\frac{-E}{RT}\right)$$

Équation I-3 : Loi d'Arrhénius (1889)

Cette loi prédit le coefficient de diffusion D en fonction de la température T. a est le domaine de diffusion (taille du grain). Do est le facteur préexponentiel, ou facteur de fréquence. E est l'énergie d'activation (en J/mol), R la constante des gaz parfaits (en J/mol/K) et T la température en K.

Afin de comparer les valeurs des coefficients de diffusion entre elles, Dodson en 1973 a introduit la notion de « température de fermeture » (équation I-4), qui quantifie la température en-dessous de laquelle plus de 50 % de l'élément fils est retenu dans le cristal, pour une taille de grain et une vitesse de refroidissement données. Dans le cas des traces de fission, la température de fermeture est celle au-dessus de laquelle plus de 50% des traces de fission cicatrisent. Cette notion est fondamentale dans le domaine de la thermochronologie.

$$Tc = \frac{R}{E_a \ln\left(\alpha D_o / a^2\right)}$$

Équation I-4 : Température de fermeture (Dodson, 1973)

$$\tau = \frac{-RT^2}{E_a \, dT/dt}$$

Équation I-5 : Constante de temps (Dodson, 1973)

La température de fermeture est définie par l'équation de Dodson (équation I-4), où E_a est l'énergie d'activation de l'hélium en kJ/mol, D_0 le coefficient de diffusion en m^2/s, a la taille de grain en micromètres, et α une constante de temps en secondes. La constante de temps τ traduit la diminution de la diffusivité du minéral, et est directement reliée au taux de refroidissement (équation I-5). La valeur de la température de fermeture dépend donc de la taille de grain a, de E, Do, et du taux de refroidissement (figure I-1).

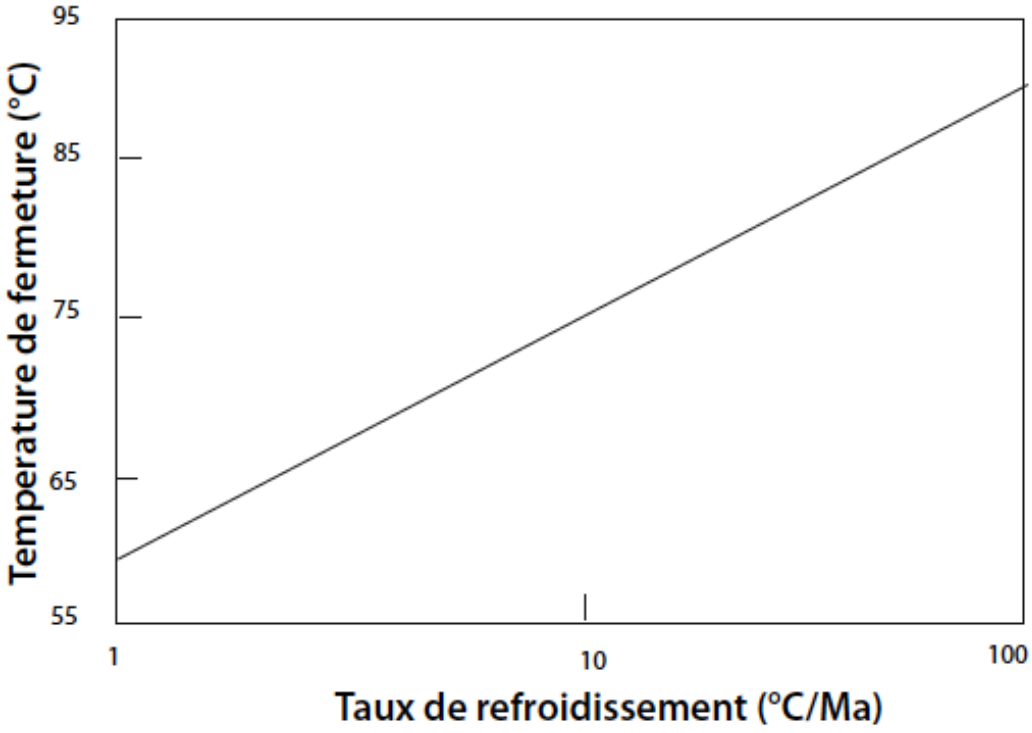


Figure I-1 : Evolution de la température de fermeture pour l'apatite en fonction du taux de refroidissement (d'après Farley, 2000)

Les valeurs des coefficients de diffusion de Farley, 2000 ont été utilisées pour construire cette évolution. Ce graphique représente la température de fermeture de l'hélium dans l'apatite, en fonction du taux de refroidissement du cristal (en échelle log), calculées pour a =100 µm, D_o/a^2=50.1106 s^{-1}, et E=151.46 kJ/mol. Il illustre une gamme de températures de fermeture de 60 à 90°C, qui augmente avec le taux de refroidissement.

Associé à la température de fermeture, on utilise aussi la notion de zone partielle de rétention. Cette zone est définie par Wolf et al. (1998) comme la gamme de températures en dessous de laquelle quasiment tout l'élément fils (respectivement les traces de fissions) est retenu dans le cristal (<10% de perte), et au-dessus de laquelle tout est perdu (>90% de perte). Ce domaine dépend de la taille de grain a, des paramètres de diffusion (Ea, Do), et du taux de refroidissement.

Il existe différentes méthodes de thermochronologie, dont la sensibilité thermique et la température de fermeture varient. La figure I-2 illustre les thermochronomètres les plus

utilisés et leur champ de sensibilité thermique. On distingue généralement les thermochronomètres haute température et basse température, selon la valeur de leur température de fermeture.

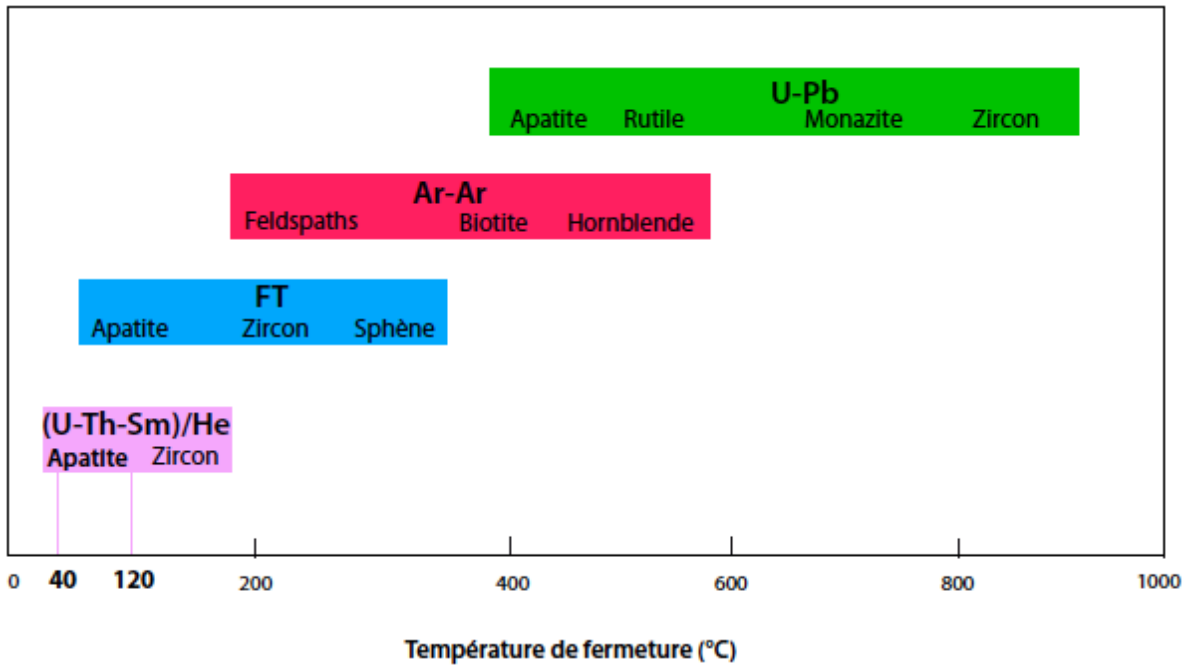


Figure I-2 : Sensibilité thermique de quelques thermochronomètres

Cette figure représente la température de fermeture de quelques systèmes thermochronométriques, avec une sensibilité thermique croissante : l'(U-Th-Sm)/He, les traces de fission (FT), l'^{40}Ar-^{39}Ar (Ar-Ar), et l'U-Pb sur différents minéraux associés. Les thermochronomètres sur apatite sont de basse température (<120°C), avec une zone de rétention partielle de 40 à 120°C pour l'(U-Th-Sm)/He, les traces de fission ont une zone de cicatrisation partielle de 60 à 120°C (Flowers et al., 2009, Gautheron et al 2009, Djimbi et al 2015, Gallagher et al., 1998). Pour les autres systèmes, les données sont adaptées du site web de Pollard 2002, de l'Université de Stanford).

Les deux systèmes possédant la plus faible température de fermeture (<120°C) sont les traces de fission sur apatite (AFT), et le système (U-Th-Sm)/He (AHe) sur apatite. Cependant, on peut aussi utiliser les traces de fission et (U-Th)/He pour d'autres phases minérales (zircon, titanite, oxydes et hydroxydes de fer). Dans le cadre de cette thèse, je me suis intéressée à la thermochronométrie basse température sur apatite. La température de fermeture de l'hélium dans l'apatite (Tc) est très variable et dépend de l'histoire thermique. Au maximum Tc varie

entre 40 et 120°C, tandis que la température de fermeture des traces de fission sur apatite (AFT) varie de 60 à 120°C (Green et al., 1989 ; Gallagher et al., 1998 ; Flowers et al., 2009 ; Gautheron et al 2009 ; Djimbi et al 2015).

Ce chapitre est un état de l'art concernant la thermochronologie basse température. Il vise à synthétiser nos connaissances et nos outils pour les datations thermochronométriques. Dans un premier temps, je décrirai l'apatite, puis les principes méthodologiques de la thermochronologie AFT et AHe sur apatite. Enfin, je présenterai les deux logiciels de modélisation des données thermochronologiques basse température utilisés lors de cette thèse, et quelques perspectives de recherche.

2. Le minéral apatite

L'apatite est un minéral appartenant au groupe chimique des phosphates. Il s'agit d'un phosphate de calcium, de formule chimique $Ca_5(PO_4)_3(OH,F,Cl)$. Les cristaux sont hexagonaux, dipyramidaux, et appartiennent au groupe d'espace $P6_3/m$ (numéro 176). Le groupement phosphate (PO_4) apparaît dans l'apatite sous forme de tétraèdre. Les atomes de F, Cl, et OH, sont alignés en colonnes le long de l'axe c (Hughes et al., 1989), comme représenté sur la figure I-3. Il existe également une variante d'apatite monoclinique, mais d'une composition chimique très différente. Les cristaux sont généralement translucides, de couleur jaune, verte ou bleue. Les cristaux d'apatite ont une dureté de 5 selon l'échelle de Mohs, et sont relativement denses (masse volumique : 3.2 g/cm^3). Selon l'anion (OH, F, Cl), on distingue trois espèces d'apatites : l'espèce majoritaire est la fluoroapatite ($Ca_5(PO_4)_3F$), tandis que l'hydroxyapatite ($Ca_5(PO_4)_3OH$) et la chloroapatite ($Ca_5(PO_4)_3Cl$) sont plus rares. De façon générale, l'on obtient une solution solide proche du pôle pur de la fluoroapatite, en partie substitué par du chlore ou des ions hydroxyles.

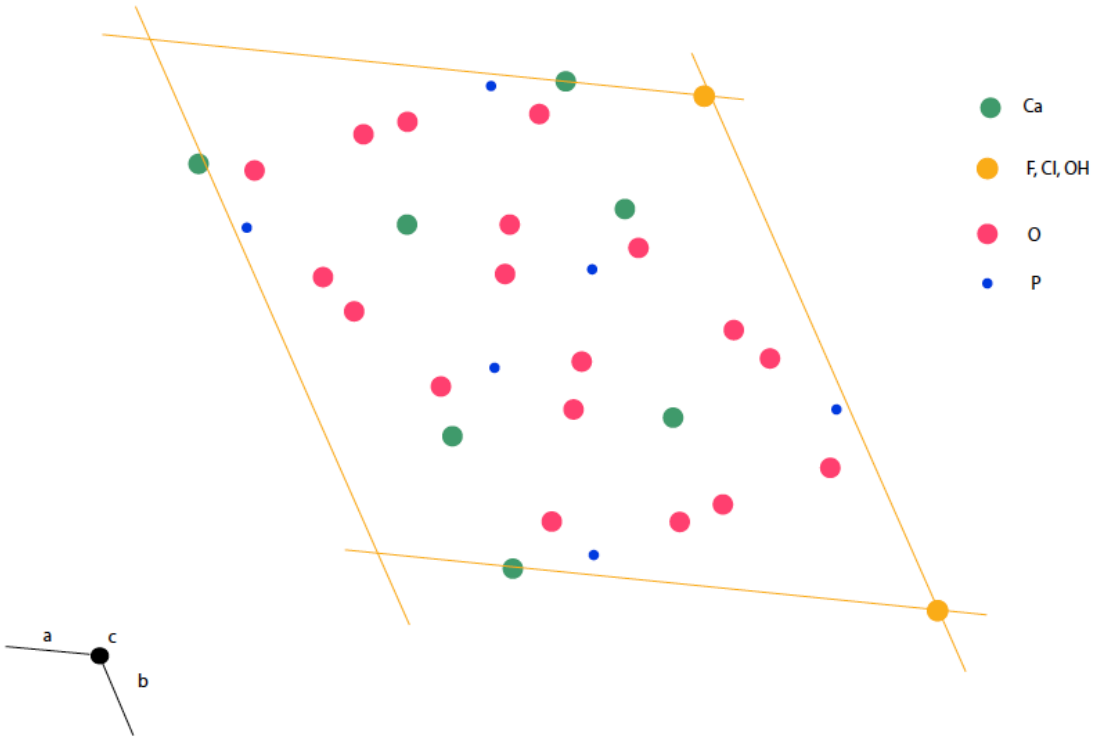


Figure I-3 : Maille élémentaire d'un cristal d'apatite, d'après Hughes et al. (1989)

Dans cette structure atomique de la maille élémentaire d'un cristal d'apatite, les anions d'halogènes et d'hydroxydes sont disposés suivant l'axe c, contrairement aux atomes de calcium et aux groupements tétraédriques de phosphate qui sont disposés dans le plan a, b et suivant l'axe c.

Des substitutions chimiques ont parfois lieu dans l'apatite, affectant : (i) le fluor, (ii) le calcium, et (iii) le groupement phosphate. Dans le canal ionique de l'axe c, les anions de fluor peuvent être substitués par d'autres anions monovalents (Br^-, I^{--}, BO_2^-), divalents (O^{2-}, CO_3^{2-}, S^{2-}), ou par des vacances. Ainsi, Eliott et al. (1980, 1981) présentent les formules de composés synthétiques : $Ca_{10}(PO_4)_6Br_2$ et $Ca_{10}(PO_4)_6CO_3$. Une autre substitution chimique qui peut avoir lieu dans l'apatite est celle du calcium par un autre cation divalent (ex. : Sr^{2+}, Pb^{2+}, Ba^{2+}, Mn^{2+}). Le strontium est le cation le plus commun, formant généralement une solution solide entre Ca et Sr. La substitution par le plomb est possible expérimentalement. Le fer et le manganèse sont présents en traces ou en quantité mineure dans toutes les apatites naturelles. Le calcium peut également être substitué par des cations monovalents (sodium, ou plus rarement potassium et lithium), trivalents (ex : terres rares), ou tétravalents (Th^{4+}). Ainsi,

ces cations substituants deviennent majeurs dans des phosphates de type belovite-La [$(Sr,La,Ce,Ca)_5(PO_4)_3(F,OH)$], belovite-Ce [$(Sr,Ce,Na,Ca)_5(PO_4)_3(OH)$], la deloneite-Ce [$NaCa_2SrCe(PO_4)_3F$], ou la britholite-Ce [$(Ce,Ca,Th,La,Nd)_5(SiO_4,PO_4)_3(F,OH)$]. Enfin, une troisième substitution importante est celle du groupement phosphate par d'autres anions tétraédriques (ex : AsO_4^{3-}, VO_4^{3-}, MnO_4^{3-}, CrO_4^{2-},SiO_4^{4-}, BO_4^{5-}, etc…). Ainsi, plusieurs solutions solides ont été mises en évidence, telles que les solutions entre : (i) la pyromorphite $Pb_5(PO_4)_3Cl$ et la mimetite $Pb_5(As0_4)_3Cl$, (ii) la fluoroapatite $Ca_5(PO_4)_3F$ et $Ca_{10}(VO_4)_6F_2$, (iii) l'hydroxylapatite et la britholite-Y $(Y,Ca)_5\ (SiO_4)_3OH$.

Les apatites contiennent donc en traces ou en quantité mineure des éléments comme le silicium, manganèse, strontium, ou les terres rares. Les cristaux de l'apatite de Durango (utilisé comme standard international) possèdent une composition chimique relativement homogène et contiennent environ 1500 ppm de Si, 100 ppm de Mn, 500 ppm de Sr, 4000 ppm de La et de Ce, 100 ppm de Gd, et <50 ppm de terres rares lourdes (Young et al., 1969 ; Boyce et Hodge 2001 ; Barbarand et al., 2003b ; McDowell et al., 2005). Les lanthanides et actinides s'incorporent relativement bien dans la structure des phosphates, ainsi les gammes de concentrations en U, Th, Sm varient de 1 à 500 ppm, et les cristaux sont parfois zonés en ces éléments (e.g. Ault et Flowers, 2012). Le rapport Th/U dans les apatites varie entre 0,1 et 20, et est en moyenne de 3 dans la croûte. Les apatites de Durango contiennent U=5 à 15 ppm, un rapport Th/U=20 et Sm/Th=0.8 (McDowell et al., 2005 ; Reiners et Nicolescu, 2006). Le mécanisme d'incorporation est la substitution du cation calcium par ces radionucléides. Comme l'U et le Th ont plus de charges positives que le calcium, une substitution couplée avec une vacance ou avec un autre cation maintient l'équilibre des charges (Luo et al., 2009).

Les défauts cristallins sont représentés comme des vacances dues à des déplacements atomiques dans le réseau cristallin de l'apatite (élimination d'un des atomes du cristal

représenté figure I-4). Il y a de nombreux types de défauts qui endommagent le réseau. Certains sont provoqués par les particules alpha. Ces derniers sont primordiaux dans le stockage d'hélium dans le réseau cristallin. Ceci sera abordé dans la section 4.2 sur la diffusion de l'hélium.

3. La thermochronologie traces de fission sur apatite

Les traces de fission sont des désordres cristallins engendrés par la fission spontanée de l'^{238}U (figure I-4). Elles sont caractérisées par leur linéarité. La capacité de fission de l'uranium a été découverte par Meitner, Hahn, et Strassmann (Meitner et al., 1937 ; Meitner and Frisch, 1939). Les premiers produits de fission observés ont été le ^{90}Kr et le ^{143}Ba (Meitner and Frisch, 1939), qui ont des noyaux plus stables que l'uranium.

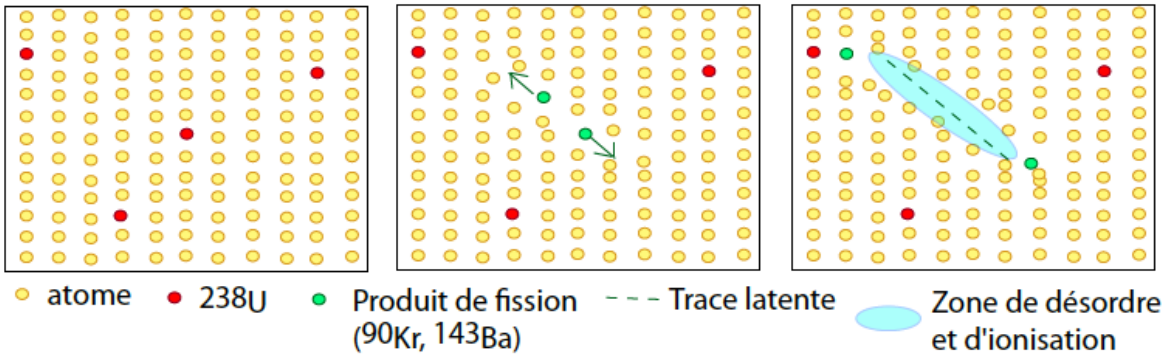


Figure I-4 : Mécanisme de création d'une trace de fission (d'après Fleischer et al., 1975)

Des atomes d'^{238}U sont naturellement présents dans le réseau cristallin de l'apatite (en rouge). La fission spontanée de ces atomes crée deux produits de fission (en vert), ayant une énergie suffisante pour engendrer un désordre atomique et provoquer l'ionisation de certains atomes. Une trace latente est formée par ce désordre, et peut être révélée par attaque chimique.

Néanmoins, des centaines de produits de fission existent, tels que ceux produits par réaction en chaîne comme le La et Ce et le Sr, Y, Zr mentionnés par Meitner and Frisch (1939), ou encore le Xe, Br, Kr, Rb, Te, I, Cs mentionnés par Grimes et Catlow (1991).

La méthode des traces de fission a été développée dès les années 1960 (Price and Walker 1962a, 1962b, 1963, Naeser et Faul, 1969, Calk et Naeser, 1973, Naser et Forbes, 1976). Price and Walker (1962a, 1962b, 1963) ont démontré que les traces de fission de l'uranium-238 peuvent être révélées par attaque chimique des minéraux, afin de pouvoir être observées en microscopie optique. La méthode de datation consiste à compter le nombre de traces de fission dans chaque cristal d'apatite, à l'aide d'un microscope. L'âge thermochronométrique correspond au rapport entre la densité de traces spontanées et la teneur en ^{238}U (équation I-6).

La technique de révélation des traces de fission consiste à immerger les apatites dans de l'acide nitrique. L'acide pénètre dans les traces spontanées et les élargit, de façon à ce qu'elles deviennent observables en microscopie. Plus la durée du bain est longue, plus l'attaque acide est forte, et plus longues seront les traces révélées (Carlson et al., 1999). Depuis les travaux de Green et al. (1986), la plupart des laboratoires à l'international dont GEOPS utilisent le même protocole de révélation des traces (bain d'acide à 5 M pendant 20 secondes).

Un détecteur externe, constitué d'une feuille de mica, est fixé sur le montage, et permet le comptage des traces induites produites lors de l'irradiation conjointe des grains et du détecteur. Par ailleurs, un dosimètre de verre standard est également analysé afin de calibrer la densité de traces dans un milieu homogène dont on connaît la concentration en uranium (7 ppm). L'âge thermochonologique peut ainsi être calculé selon l'équation I-6, où λ_α est la constante de décroissance radioactive des particules α (en an^{-1}), ρ_s , ρ_i, et ρ_m les densités de traces dans l'apatite (en trace/cm^2), le détecteur externe, et le verre standard, G un facteur géométrique, et ξ le facteur zêta, dépendant de l'analyste.

$$t = \frac{\ln \lambda_\alpha \rho_s / \rho_m G \zeta + 1}{\lambda}$$

Équation I-6 : Calcul de l'âge trace de fission (d'après Hurford et Green 1981)

Les premières applications géologiques ont été initiées par Naeser dans les années 1970 (Naeser and Faul, 1969 ; Calk and Naeser 1973 ; Naeser and Forbes 1976). Puis, Fleischer et al. (1975) ont montré que les traces de fission rétrécissent et cicatrisent avec l'augmentation de température. En effet, les traces de fission induites expérimentalement sont des défauts d'une longueur initiale de 16.2-17.5 µm (Carlson et al., 1999) dépendant de la chimie des apatites. Dans la nature, la longueur maximale des traces spontanées dans les cristaux de Durango est de 14.9±0.1 µm (Jonckheere et al., 1993). Avec l'augmentation de température, leur longueur diminue, jusqu'à la disparition complète de la trace. Le mécanisme de résorption de la trace est généralement la recristallisation épitaxiale, mais une étude récente montre que tout dépend du minéral. Dans l'apatite, le rétrécissement des traces serait lié à l'émission de vacances du cœur vers la matrice (Li et al., 2011).

A des températures > 120°C, les traces cicatrisent instantanément aux échelles de temps géologiques. La zone de cicatrisation partielle des traces de fission s'étend de 60 à 110-120°C (Green et al., 1989). Les traces sont entièrement retenues dans le cristal en-dessous de 60 °C. Dans le cas d'un refroidissement monotone simple, la méthode des traces de fission permet donc de quantifier l'histoire thermique des roches à des profondeurs inférieures à celles de l'isotherme 110-120°C.

La modélisation des données est possible grâce à une série de logiciels, qui sont apparus à partir des années 2000 : AFTSolve, développé par Ketcham et al. (2000); HeFTy, développé par Ketcham et al. (2005) ; et QTQt, développé par Gallagher et al. (2012). Le mode direct simule la distribution des données thermochronologiques, à partir d'une histoire

thermique donnée que l'on peut aisément dessiner sur l'interface numérique d'entrée. La figure I-5 modélise par exemple les données traces de fission pour deux histoires thermiques simples grâce au logiciel HeFTy. Les histoires thermiques sont représentées à gauche avec l'âge prédit, et la distribution des longueurs prédites est indiquée à droite. Pour un refroidissement lent, l'âge trace de fission est plus jeune que pour un refroidissement rapide (l'exhumation au-dessus de la zone de cicatrisation étant alors plus ancienne).

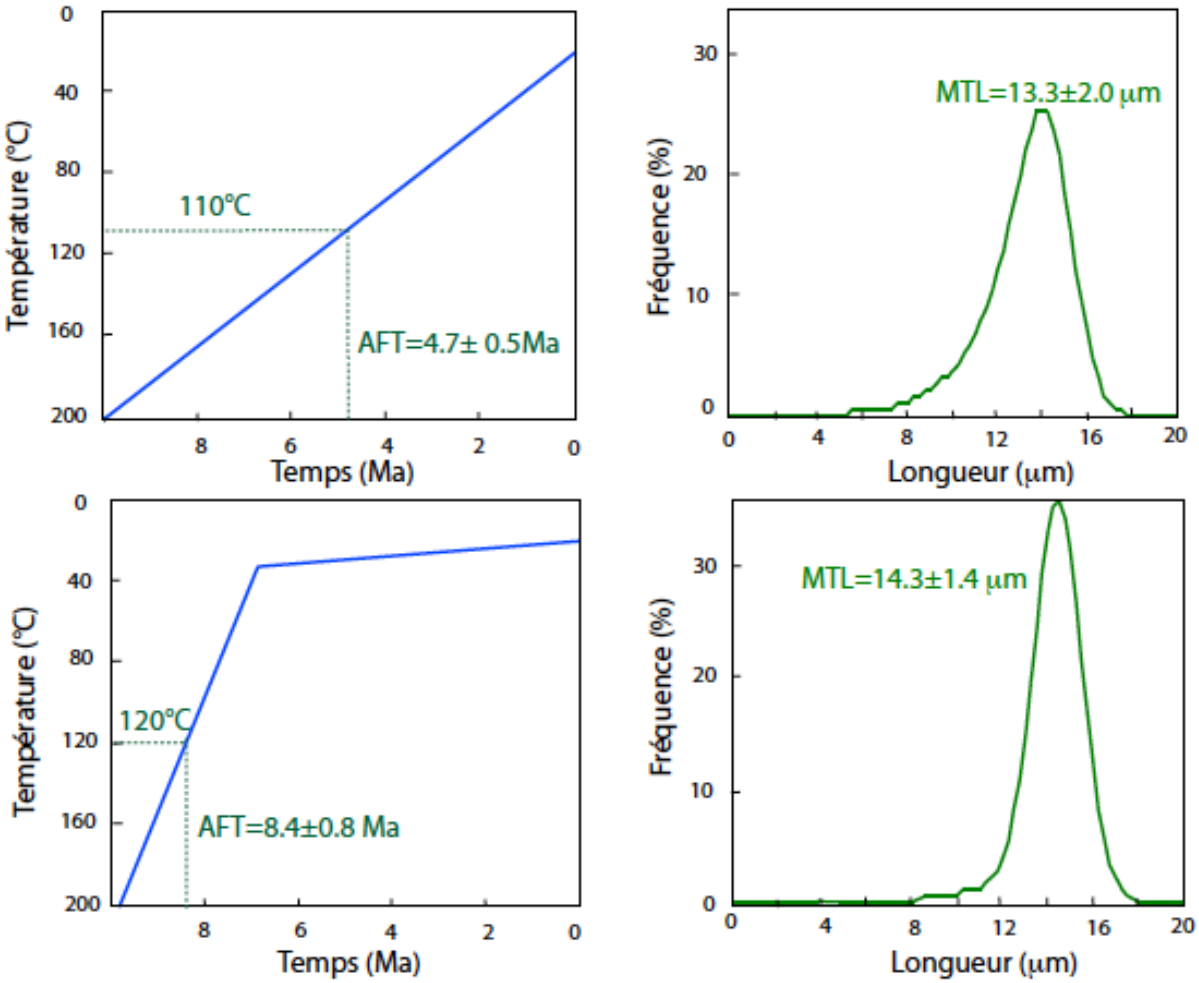


Figure I-5 : Simulation traces de fission pour des refroidissements monotones

Ces simulations numériques ont été effectuées grâce au logiciel HeFTy (Ketcham et al., 2005). A gauche sont représentées les histoires thermiques testées en entrée. A droite est représentée la distribution des longueurs de traces simulée (résultat). On remarque que l'âge simulé (à gauche) correspond au passage de l'isotherme 110-120°C. L'erreur indiquée sur l'âge correspond à une erreur analytique de 10%. La longueur moyenne est plus élevée dans le cas du bas, correspondant à un refroidissement rapide au cours duquel les traces n'ont pas eu le temps de cicatriser.

La longueur des traces est proportionnelle au temps passé dans la zone de cicatrisation : plus la cicatrisation est longue, plus le raccourcissement est important. Ainsi, la longueur des traces donne une indication également sur l'histoire thermique : un refroidissement rapide est marqué par des traces longues. Ainsi, dans l'exemple de la figure I-5, les traces de fission du cas représentant un refroidissement rapide sont plus longues en moyenne, car les traces n'ont pas eu le temps de cicatriser. La longueur est donc d'autant plus grande que le refroidissement est rapide. L'on note que ces histoires de refroidissement monotone sont accompagnées d'une distribution unimodale des longueurs (figure I-5). La longueur maximale est obtenue pour le refroidissement rapide : 14.3 µm, ce qui est proche de la longueur initiale des traces de fission spontanée (14.1 à 14.9 µm d'après Jonckheere et al., 2015).

Les travaux de Fleischer et al. (1975) ont permis d'utiliser la distribution des longueurs de traces comme un thermochronomètre, pour reconstituer l'histoire thermique des roches. Le principe est simple : lorsque la température augmente, la longueur des traces de fission (et le rapport l/l_o, où l_o est la longueur initiale) diminue. Dans la nature, cette augmentation de température a lieu sur une échelle de temps long (100 000 ans à quelques Ma). Si la température augmente jusqu'à plus de 120 °C (figure I-6 en haut), alors les anciennes traces disparaissent complètement. Les traces actuellement visibles sont les traces « jeunes », formées il y a moins de 2 Ma, et elles sont relativement longues (13,6 µm en moyenne) car elles ont eu peu de temps pour cicatriser. Notez que si le réchauffement final (il y a 2 Ma) avait été plus rapide (pente plus élevée), alors les traces auraient mesuré environ 14-15 microns (longueur maximale des traces spontanées). Si, au contraire, le réchauffement a eu lieu dans la zone de cicatrisation partielle (e.g. à 80°C sur la figure I-6), alors : (i) la longueur des anciennes traces diminue à cause de la cicatrisation partielle, et (ii) de nouvelles traces jeunes, de taille proche de l_o apparaissent. La distribution des longueurs devient alors

bimodale, avec coexistence de « vieilles » traces courtes (pic P1 à ≈11µm), et de « jeunes » traces longues (pic P2 à ≈14.5 µm).

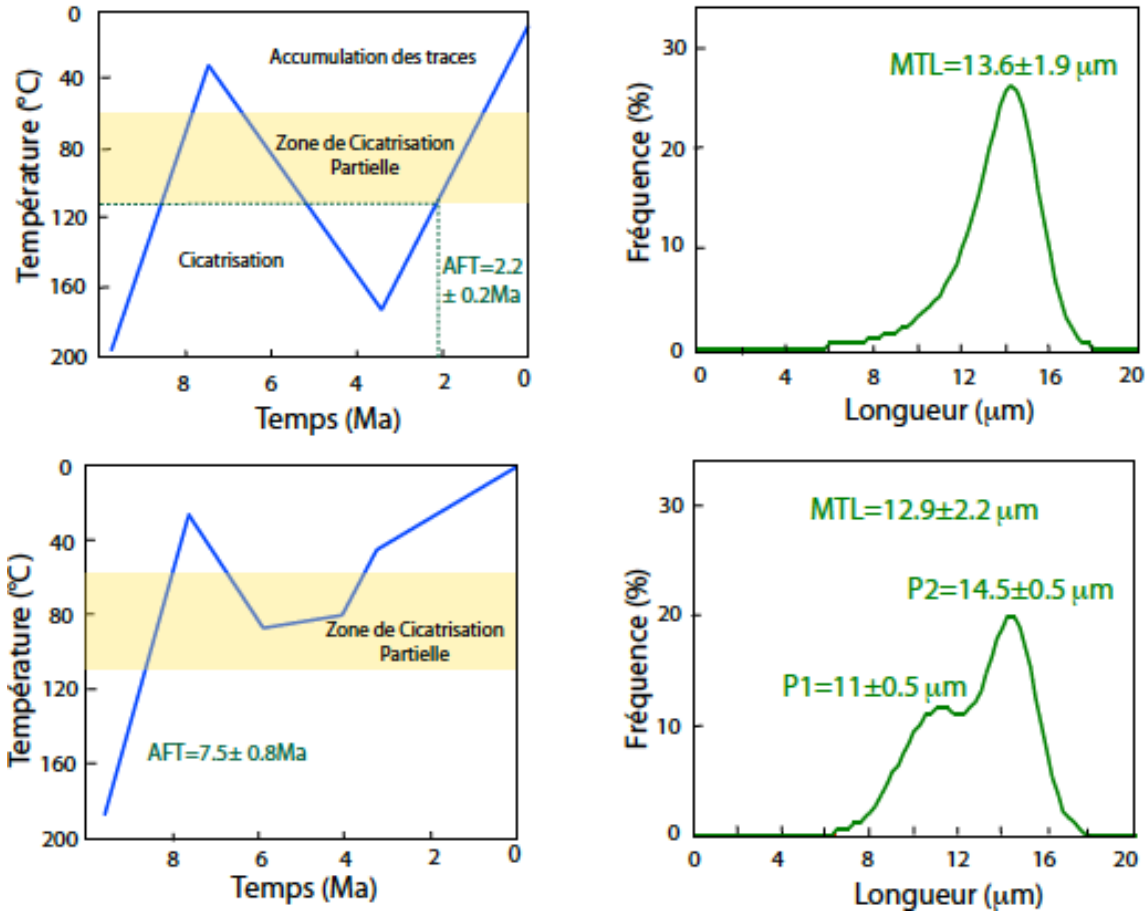


Figure I-6 : Impact d'un épisode de chauffage sur les traces de fission

Les simulations ont été réalisées en mode direct à l'aide du logiciel HeFTy (Ketcham, 2005). En haut, le modèle simule une histoire thermique comprenant un réchauffement de 7 à 3,5 Ma à des températures supérieure à 120°C. Les traces plus anciennes que 5 Ma ont donc cicatrisé, et la technique date la dernière exhumation au-dessus de 110-120°C, c'est à dire il y a 2 Ma. La distribution des longueurs est unimodale, et elles sont relativement longues : cela correspond aux traces nouvellement formées il y a 2 Ma, qui ont eu peu de temps pour cicatriser. En bas, le modèle simule un réchauffement dans la zone de cicatrisation partielle. Les âges sont inférieurs à la date d'exhumation (cad 8.5 Ma) car les traces ont cicatrisé partiellement. La distribution des traces est bimodale, en raison de la cicatrisation partielle des traces (P1), et à la formation de nouvelles traces plus longues car l'exhumation finale est plus rapide (P2).

Des expériences ont été réalisées pour étudier la cicatrisation des traces induites lors de la chauffe des échantillons, via l'évolution du rapport $r=l/l_o$ en fonction de la température, où l est la longueur des traces et l_o leur longueur initiale (16.3 microns d'après Gleadow et al.,

1983). Cette longueur initiale dépend de la composition chimique de l'apatite et de l'énergie des particules pères lors de leur émission. Cette cinétique de cicatrisation a été étudiée expérimentalement par les travaux de (Green et al., 1985, 1986, 1988 ; Laslett et al., 1987), et par trois groupes de chercheurs dont les travaux ont été publiés dans le même volume d'American Mineralogist (Donelick et al., 1999; Carlson et al. 1999; Ketcham et al., 1999), puis plus récemment par Barbarand et al. (2003a) et Ravenhurst et al. (2003). La figure I-7 représente une synthèse des données expérimentales de Green et al. (1985), modélisées par le modèle de Laslett et al. (1987).

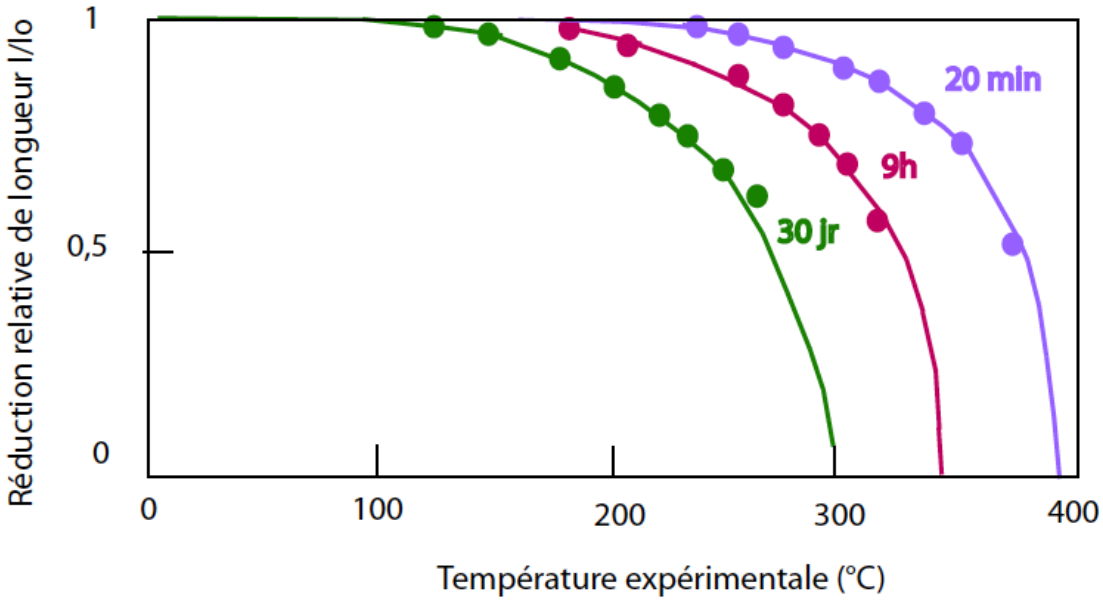


Figure I-7 : Réduction de la longueur des traces avec la température (d'après Laslett et al., 1987).

Les expériences de Green et al. (1987) sont représentées par les points. Les points sont modélisés grâce à la loi de Laslett et al. (1987) par les courbes. La longueur des traces diminue avec la température, jusqu'à annihilation complète. La température de cicatrisation diminue avec la durée de l'expérience. Notez que les températures expérimentales sont supérieures à la température de cicatrisation observée dans la nature (d'environ 120°C) à l'échelle des temps géologiques.

Les expériences consistent à chauffer les apatites à la température expérimentale T pendant une durée donnée d, et à mesurer la longueur des traces par rapport à la longueur

initiale (rapport $r=l/l_o$). Comme visible figure I-7, le rapport r diminue avec la température T de l'expérience. Plus les apatites sont chauffées, plus elles cicatrisent. La durée de l'expérimentation joue également : les expériences longues (ex : 30 jours) peuvent être faites à plus faible température que les expériences courtes (ex : 20 minutes). Notez que la température à laquelle l'expérimentateur doit chauffer pour cicatriser complètement les traces dépend de la durée de la manipulation : en termes de longueur, chauffer fort pendant peu de temps revient au même effet que chauffer faiblement pendant longtemps. C'est pourquoi les gammes de températures expérimentales sont nettement plus élevées que la température de fermeture des traces de fission dont on a parlé plus haut concernant l'échelle des temps géologiques.

$$\ln(t) = A(r) + \frac{B(r)}{T}$$ **Équation I-8 : Loi de Laslett et al. (1987)**

Ces expériences ont conduit à proposer une expression mathématique de l/l_o en fonction du temps t et de la température T (équations I-8 à I-12). Etant donné que les traces cicatrisent avec le temps et l'augmentation de température, mais apparaissent avec le temps, r est croissant avec le temps, et décroissant avec la température. Green et al. (1985) suggèrent que la relation avec le temps est logarithmique, et que la température est au dénominateur (équation I-9). C'est également le cas de la loi logarithmique, présentée en équation 10, ainsi que dans la loi de Laslett et al. (1987), exprimée dans l'équation 8. Notez que certaines expressions de r ne dépendent que du temps, avec lequel elles décroissent. C'est le cas des lois exponentielles et linéaires (équations 11 et 12), suggérées par Laslett et al. (1987).

$$C_1 \ln(1 - l/l_o) = \ln(t) - C_2 - \frac{C_3}{T}$$ **Équation I-9 : Loi de Green et al. (1985)**

$$r = c_o + c_1 \ln(t) + \frac{c_2}{T}$$ **Équation I-10 : Loi logarithmique (Laslett et al., 1987)**

$$r = \exp(-C_1 at)$$ **Équation I-11 : Loi exponentielle (Laslett et al., 1987)**

$$r = a - bt$$ **Équation I-12 : Loi linéaire (Laslett et al., 1987)**

Comme évoqué précédemment, la durée des expériences et la gamme de température de chauffe nécessaire à la cicatrisation diffère significativement de celles trouvées dans la nature. Ketcham et al. (1999) ont proposé un modèle de cicatrisation des traces de fission basé sur l'extrapolation des données de laboratoire à l'échelle des temps géologiques, et sur les principes précédemment énoncés. La cicatrisation des traces y est décrite par un paramètre rmr_o défini par l'équation I-13. L'ensemble des apatites est décrite statistiquement, avec des cinétiques de cicatrisation variables d'un grain à l'autre : certaines apatites cicatrisent plus facilement tandis que d'autres sont davantage résistantes à la cicatrisation. Pour chaque grain, l'on définit le degré de cicatrisation par le rapport de longueur r. Le paramètre rmr_0 quantifie la cinétique de cicatrisation des traces selon l'équation 13, où rlr et rmr sont les rapports r des apatites les moins et les plus résistantes à la cicatrisation. Le paramètre rmr_o est inversement proportionnel à la vitesse de cicatrisation des traces de fission : il varie entre 0,7 et 0,86. Les travaux de Richard Ketcham ont ensuite permis d'intégrer ce modèle dans les logiciels, puis de le raffiner (Ketcham et al., 2003, 2007a, 2007b).

$$r_{lr} = \left[\frac{r_{mr} - r_{mr_0}}{1 - r_{mr_0}}\right]^{1 - r_{mr_0}}$$ **Équation I-13 : Loi de cicatrisation de Ketcham et al. (1999)**

Donelick et al. (1999) ont étudié l'anisotropie des longueurs des traces de fission en laboratoire. Ils ont ainsi déterminé l'effet de l'orientation cristallographique sur la longueur

des traces, et élaboré un modèle expérimental de la distribution des longueurs selon l'axe c. Il est ainsi possible d'utiliser ces longueurs en plus de la densité de traces de fission. A chaque âge trace de fission et répartition des longueurs correspond une histoire thermique, supposée unique.

Les travaux de Green et al. (1985, 1986), de Donelick et al. (2005), et de Ketcham et al. (2007a) suggèrent que la composition de l'apatite en chlore (et le rapport Cl/F) jouent sur la vitesse de cicatrisation des traces de fission, et donc sur l'âge AFT. Ainsi, pour une même histoire thermique, l'âge trace de fission d'un cristal d'apatite augmenterait avec la concentration en chlore du grain (figure I-8).

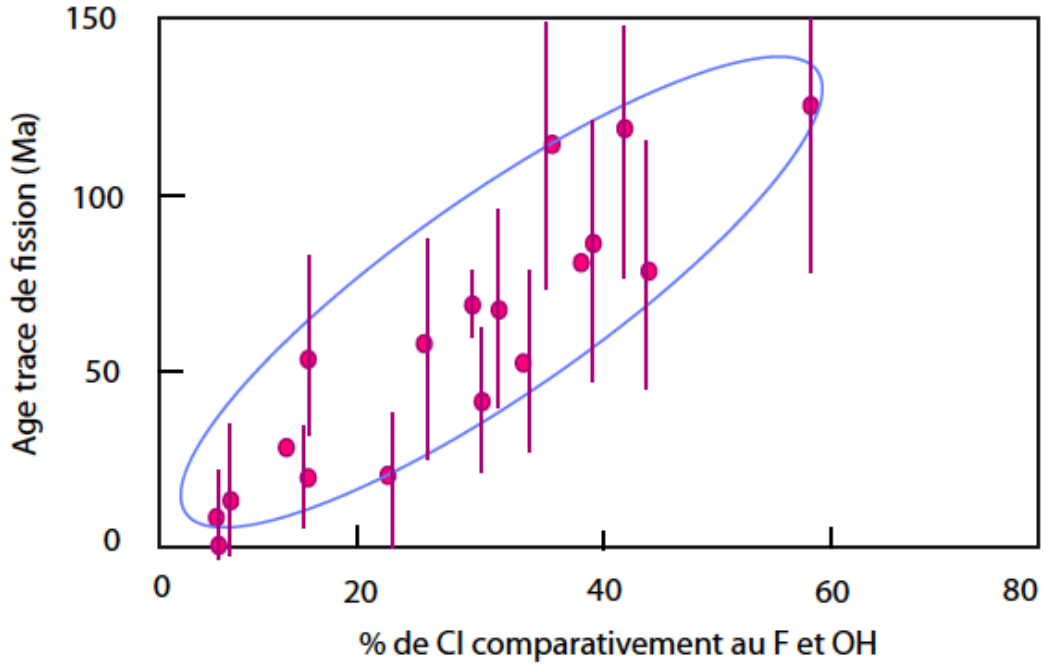


Figure I-8 : Age AFT et composition en chlore (d'après Green et al., 1985)

Les âges trace de fission individuels (par grain) augmentent avec le pourcentage d'atomes de chlore dans l'apatite. La cicatrisation des traces est plus rapide dans les fluoro-apatites que dans les apatites riches en Cl.

Carlson et al. (1999) montrent expérimentalement que la variation des concentrations en Cl n'est pas suffisante pour expliquer la dispersion des taux de cicatrisation, et que d'autres cations substituant le Ca pourraient aussi jouer. Donelick et al. (2005) confirment que les apatites avec des concentrations faibles en chlore (<1-2 wt%) cicatrisent plus rapidement que celles enrichies en chlore. Barbarand et al. (2001, 2003b) ont étudié l'impact de la composition chimique sur la cicatrisation. Ils notent que le chlore est un paramètre dominant, mais que d'autres éléments comme les cations (REE, Mn) entrent aussi en jeu.

Enfin, pour élaborer son modèle multi-cinétique, Ketcham et al. (2007a) ont étudié la cicatrisation des traces dans de nombreuses apatites de compositions différentes. C'est également le chlore qui est pris en compte comme facteur dominant sur la cicatrisation. La figure I-9 représente les valeurs des paramètres rmr_o des grains en fonction de la concentration relative en chlore Cl*=100*Abs (Cl-1). Les données présentent des concentrations variables en Cl, dont l'apatite de Durango (DUR sur la figure). Les auteurs suggèrent que rmr_o soit relié empiriquement à la concentration en chlore, et proposent une expression de rmr_o selon l'équation I-14. Néanmoins, toutes les données ne sont pas reproduites par cette équation, notamment pour les apatites très riches en chlore (Cl*>0.8). rmr_o est également inversement relié au diamètre du trou formé par dissolution lors de l'attaque à l'acide de l'apatite, Dpar (équation I-15). Les âges traces de fission sont donc inversement reliés au Dpar, donc à la résistance à l'attaque chimique. Certains auteurs associent les Dpar et la composition en chlore, mais cela est vivement débattu (ex : Donelick et al., 2005). D'autre part, plus récemment Ketcham et al. (2015) suggèrent que le paramètre rmr_o doit être calculé en fonction de la composition chimique complète de l'apatite et de sa stœchiométrie. D'autres éléments que le chlore sont alors pris en compte dans la variation des taux de cicatrisation.

$$r_{mro} = 0.83\left[\frac{Cl^{*} - 0.13}{0.87}\right]^{0.23}$$

Équation I-14 : Loi de Ketcham et al. (2007a) et Cl

$$r_{mro} = 0.84\left[\frac{4.58 - D_{par}}{2.98}\right]^{0.21}$$

Équation I-15 : Loi de Ketcham et al. (2007a) et Dpar

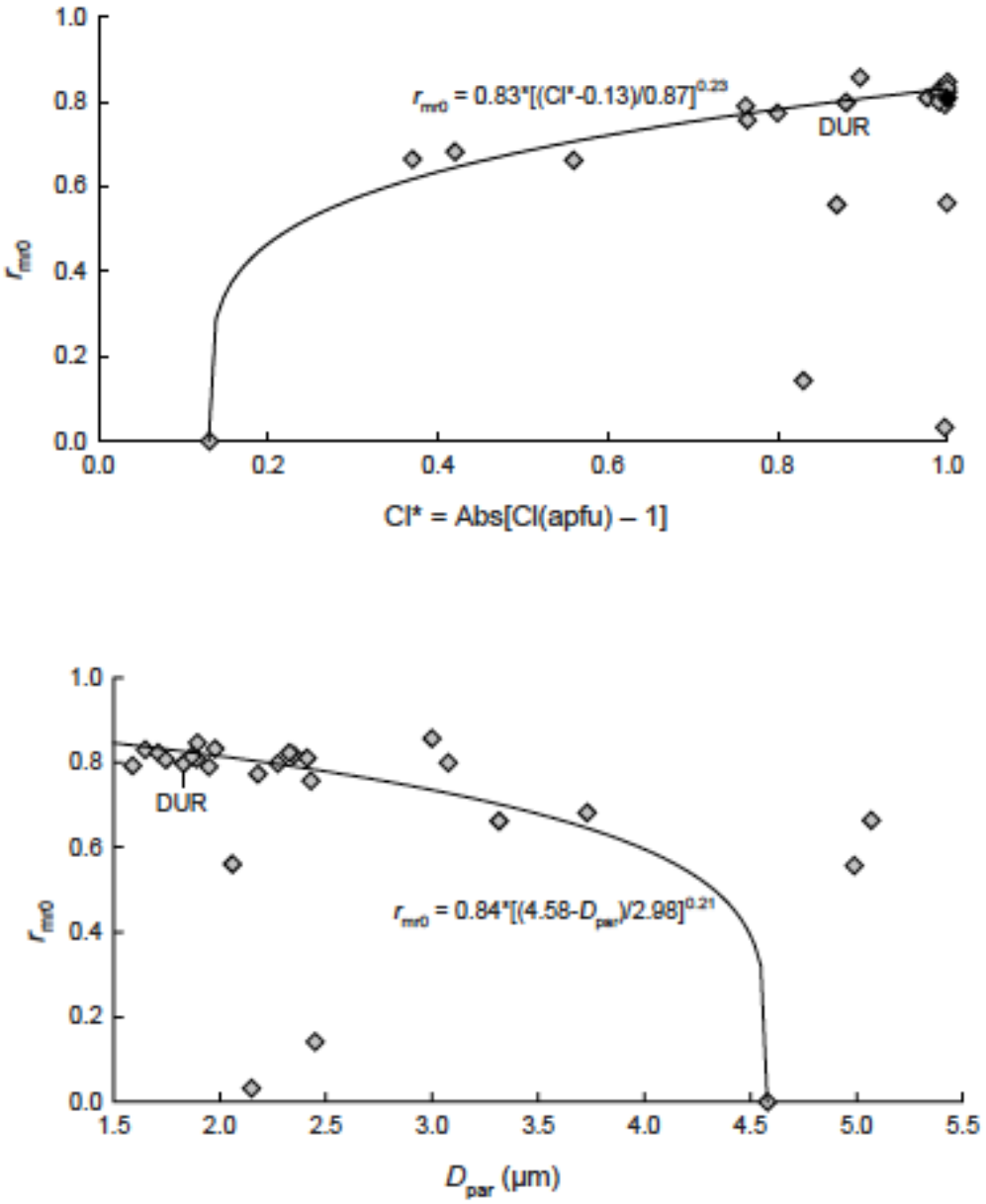


Figure I-9 : Cicatrisation et composition en chlore (d'après Ketcham et al., 2007a)

Les données correspondent à plusieurs apatites de composition différentes, le modèle de Ketcham et al. (2007a) est indiqué par la courbe noire. Notez que certaines données restent inexpliquées par le modèle. Le paramètre rmr_0 est plus élevé pour le apatites riches en chlore, indiquant une forte résistance à la cicatrisation.

4. La thermochronologie (U-Th-Sm)/He sur apatite

4.1 Production et éjection de l'hélium

La méthode de datation (U-Th-Sm)/He se base sur la production et l'accumulation d'hélium radiogénique (^{4}He) issu de la désintégration alpha de l'^{238}U, ^{235}U, ^{232}Th et du ^{147}Sm (Ballentine et Burnard 2002). L'apatite est très utilisée, ainsi que le zircon (e.g. Reiners et al., 2002, 2003, 2004). Néanmoins d'autres minéraux ont été investigués (e.g. calcite, titanite, oxydes de fer) par Lippolt et al. (1993, 1995), Bähr et al. (1994), Reiners et Farley (1999), Farley (2002), Shuster et al. (2005), Copeland et al. (2007), Cros et al. (2014). La quantité d'hélium radiogénique produite est donc régie par la loi de désintégration de l'U, Th, et Sm (équation I-16).

$$\left[^4He\right] = 8\left[^{238}U\right]\left(e^{\lambda_{238}t} - 1\right) + 7\frac{\left[^{235}U\right]}{137.88}\left(e^{\lambda_{235}t} - 1\right) + 6\left[^{232}Th\right]\left(e^{\lambda_{232}t} - 1\right) + \left[^{147}Sm\right]\left(e^{\lambda_{147}t} - 1\right)$$

Équation I-16 : Loi de désintégration alpha de l'U, Th, Sm

La présence de ces radionucléides a des conséquences sur l'état physique des apatites : les désintégrations de l'uranium, du thorium, et du samarium et la production des particules alpha engendrent la production de défauts dans le réseau cristallin de l'apatite. La proportion de dommages induits lors des désintégrations alpha et du recul des noyaux pères est fonction de la concentration en uranium effectif eU (équation I-17), qui quantifie le nombre de particules alpha émises dans le cristal d'apatite (Shuster et al., 2006 ; Flowers et al., 2009). eU varie entre 1 et 1000 ppm.

$$eU = [U] + 0{,}24[Th] + 0.005[Sm]$$

Équation I-17 : Concentration effective en uranium

Les atomes d'hélium sont émis lors de la désintégration des éléments pères, avec une forte énergie cinétique variant de 2 à 6 MeV (Ziegler et al., 1977, 1985, 2008 ; Farley et al., 1996). Dans le réseau de l'apatite, ces particules d'hélium vont s'éjecter et ralentir lors de collisions avec les atomes sur une distance de 5 à 35 µm (Ziegler et al., 2008), avant de s'arrêter. La distance d'arrêt est d'autant plus importante que l'énergie cinétique d'éjection est grande (figure I-10). Cette distance d'arrêt est d'autant plus faible que la densité du minéral considéré est élevée (voir Farley, 2002 ; Ketcham et al., 2011), et est donc plus élevée dans l'apatite que dans le zircon (figure I-10). Le Tableau I-1 présente les énergies cinétiques et les distances d'arrêt des différents isotopes radioactifs impliqués. D'autre part, le recul de la particule radiogénique crée des défauts cristallins importants sur quelques nanomètres.

Père	**Fils**	**Demi-vie (Ga)**	**Nombre d'^{4}He émis**	**Energie cinétique**	**Distance d'arrêt moyenne (µm)**
^{238}U	^{206}Pb	4.5	8	5.4	18,81
^{235}U	^{207}Pb	0.7	7	5.9	21,80
^{232}Th	^{208}Pb	14	6	5.9	22,25
^{147}Sm	^{143}Nd	106	1	2.3	5,93

Tableau I-1 : Propriétés et demi-vie de radionucléides

(Ziegler et al., 2008; Ketcham et al., 2011)

Les radionucléides les plus énergétiques sont U et Th. Les énergies cinétiques indiquées sont des moyennes. La distance d'arrêt moyenne pour l'apatite est d'environ 20 µm pour U et Th, et est plus faible pour le samarium.

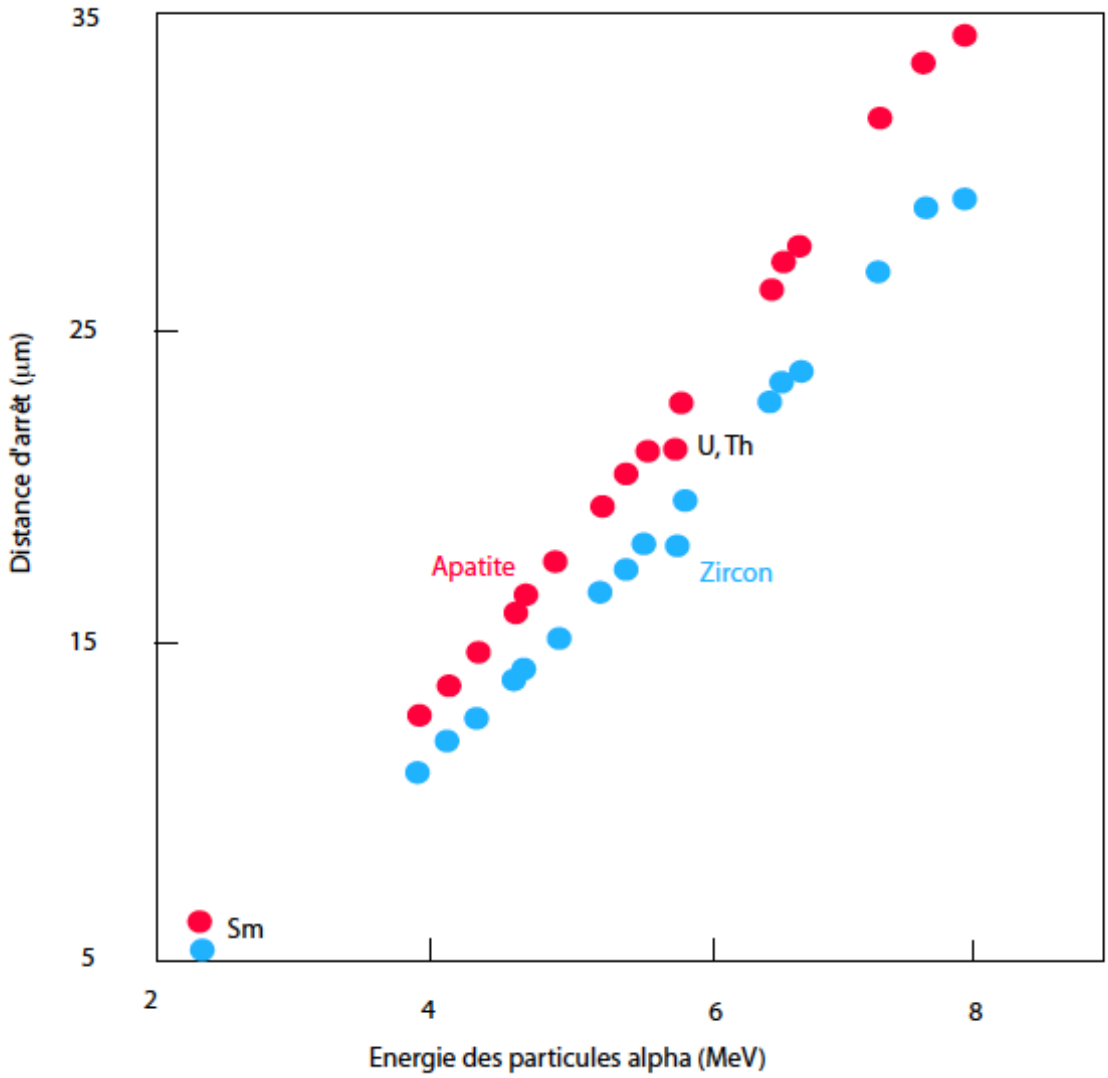


Figure I-10 : Distance d'arrêt des particules alpha dans l'apatite et le zircon

Les distances d'arrêt moyennes sont indiquées dans le tableau I-1 ci-dessus. La distance d'arrêt de l'uranium et du thorium est plus élevée que celle du samarium. La distance d'arrêt des particules est légèrement inférieure dans le zircon que dans l'apatite. Calculs effectués à l'aide de SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter, Ziegler et al., 2008).

Lors de l'éjection des particules alpha, si l'atome émetteur est suffisamment proche de la périphérie du grain (à une distance inférieure à la distance d'arrêt), alors il peut y avoir perte de l'atome d'hélium hors du grain. Ainsi, la concentration d'hélium mesurée dans un grain est inférieure au taux de production. Cela introduit une zonation des grains d'apatite en

hélium (la périphérie étant appauvrie), et une perte globale d'hélium. Cette perte est d'autant plus notable dans les petits grains.

La quantité d'hélium mesurée dans un cristal est donc une sous-estimation de la quantité initialement produite. Or, les âges bruts sont rapportés à la quantité d'hélium totale mesurée dans un cristal. Ils sont donc également sous-estimés. On peut corriger cette sous-estimation en augmentant artificiellement tous les âges. C'est l'objet de la correction de l'éjection : les âges hélium bruts sont divisés par un facteur dénommé F_T. Ce paramètre, défini par Farley et al. (1996), dépend de la taille du cristal : plus le cristal est petit et plus la perte est importante. Plus récemment ce facteur F_T a été raffiné par Hourigan et al., (2005), Ketcham et al. (2011), et Gautheron et al. (2012), tenant compte d'une éventuelle distribution hétérogène des nucléides parents. Lors du tri des apatites, un critère de taille est introduit de façon à ce que le FT soit > 0,65 (ce qui représente au maximum 35% de perte du budget total d'He par éjection).

4.2 La diffusion de l'hélium

4.2.1. Principes théoriques

L'hélium est un gaz rare. Il ne crée pas de liaisons avec les atomes voisins, et s'insère dans différents sites disponibles dans le cristal (site d'insertion dans le réseau, dommages, lacunes). Une partie de l'hélium produit diffuse à travers le réseau cristallin. La vitesse de diffusion de l'hélium croît avec la température, et la perte d'He par diffusion décroît avec la taille de grain. Le comportement diffusif de l'hélium peut être décrit à l'échelle microscopique, ou à l'échelle macroscopique. Le mouvement atomique de diffusion est brownien, et avec la température les atomes ont suffisamment d'énergie pour sauter d'un site d'insertion à l'autre (Watson et Baxter, 2007 ; Djimbi et al., 2015). Les atomes d'hélium sont donc dans leur position interstitielle entre les atomes de F, OH, et Cl ou dans le réseau entre

les atomes de Ca, ou dans les vacances atomiques. Dans la vacance, les atomes d'hélium prennent la position des atomes de calcium manquant. Dans le réseau de l'apatite, les atomes d'hélium diffusent dans les trois directions de l'espace. Néanmoins, la diffusion a lieu selon deux canaux et selon la répartition des sites d'insertion : le premier le long des atomes de fluor – selon l'axe c - (sites d'insertion de type S1); et le deuxième dans le plan orthogonal à l'axe c (sites d'insertion de type S2 ; Djimbi et al., 2015). Dans la fluoroapatite, la diffusion selon l'axe c est favorisée et plus rapide que celle selon les sites S2. Les manipulations montrent donc une anisotropie, avec deux coefficients de diffusion différents selon c et parallèle à c. A haute température néanmoins (>300°C), la diffusion devient isotrope (Djimbi et al., 2015 ; Bengston et al., 2012).

Le mouvement brownien est régi mathématiquement par la loi de Boltzman dans les trois directions de l'espace. Mais on peut utiliser la loi de Fick pour décrire le comportement diffusif au niveau macroscopique. Si la diffusion est isotrope, cette loi de Fick s'exprime par l'équation 2, dont les solutions ont été déterminées par Crank (1975), puis par McDougall et Harrisson (1999) dans une sphère. D'autre part, selon la loi d'Arrhénius le coefficient de diffusion diminue avec la température. Cette loi décrit la diffusion dans un milieu par son coefficient de diffusion D, dont le logarithme népérien est inversement proportionnel à la température T, selon l'équation I-3. D'un point de vue macroscopique cette fois-ci, la diffusion est donc régie selon le gradient négatif de concentration et de température. Les atomes d'hélium migrent donc préférentiellement vers les zones faiblement concentrées ou froides. La vitesse de diffusion est contrôlée par les paramètres de la diffusion : l'énergie d'activation Ea et le facteur préexponentiel D_o.

De nombreux travaux expérimentaux et numériques se sont attelés à déterminer les valeurs de l'énergie d'activation Ea et du coefficient de diffusion Do dans l'apatite (e.g. Wolf

et al., 1996 ; Ouchani et al., 1997 ; Farley 2000 ; Shuster et al., 2003, 2009 ; Cherniak et al., 2009 ; Bengston et al., 2012, voir Tableau I-2).

Ea (kJ/mol)	D_o (m^2/s)	Log D_o/a^2	Référence
161±17	9.10^{-2}	7	Zeitler et al., 1987
123-162±21	2.10^{-5}-8	4-9	Wolf et al., 1996
120	15.10^{-3}	-	Ouchani et al., 1997
138-154±4	4.10^{-4}- 0.34	4-9	Farley, 2000
148±1	0.066	7	Shuster et al., 2003
115±1	1.10^{-4}	4	Shuster et al., 2009
117±6	2.10^{-6}	-	Cherniak et al., 2009
84-104	0.014-0.024	-	Bengston et al., 2012
96-106	1.9-4.1 10^{-6}	-	Djimbi et al., 2015

Tableau I-2 : Paramètres de diffusion de ^{4}He dans l'apatite de Durango

(d'après Baxter, 2010, Bengston et al., 2012, Djimbi et al., 2015)

Ce tableau est une synthèse bibliographique des paramètres de diffusion de l'hélium dans l'apatite (énergies d'activation et facteur préexponentiel). Les températures de fermeture sont indiquées dans le tableau I-3. Comme on le voit, les énergies d'activation déterminées récemment sont plus faibles que les plus anciennes. La valeur communément utilisée est celle de Farley, 2000 (138 kJ/mol). La variabilité des paramètres Do s'explique par une différence dans les conditions expérimentales, en particulier des tailles de grains diverses (le facteur D_o/a^2 devant être constant : log D_o/a^2=4 à 9). D'autre part les taux d'endommagement du réseau sont variables d'un auteur à l'autre, ce qui explique les différences de paramètres de diffusion.

La plupart de ces expériences ont été réalisées par la méthode de chauffage par paliers sous ultra vide. A chaque palier de température, la perte d'hélium par diffusion est évaluée initialement, généralement sur des monocristaux. Si le comportement diffusif suit bien la loi d'Arrhénius, alors la courbe log(D/a^2) en fonction de 1/T est une droite. L'équation de cette

droite définit les deux paramètres de diffusion E et Do inconnus : si p est la pente de la droite, et ord l'ordonnée à l'origine, alors E=R*p, et $D_o = a^2 10^{ord}$ où a est la taille des cristaux. Le Tableau I-2 regroupe les paramètres de diffusion déterminés par plusieurs auteurs sur différentes gammes de température T.

Les travaux de Zeitler et al. (1987) ont permis d'évaluer les propriétés de diffusion de l'hélium (D_o et Ea) dans un cristal de fluoroapatite Durango : Ea=35,8 ± 8,1 kcal/mol et ln(Do/a2)=16,4± 2,8 s^{-1}. Wolf et al. (1996) mesurent une énergie d'activation similaire : environ 36 kcal/mol. Depuis, Farley et al. (1999) ont élaboré un dispositif expérimental de chauffage par paliers, entre 100 et 700 °C (Farley et al., 1999). Ainsi, ils ont pu raffiner les valeurs des paramètres Ea et D_o : Ea= 33 ± 0,5 kcal/mol et log (D_o)=1,5 ± 0,6 cm^2/s (Farley, 2000). Meesters et Dunai (2002a, b) et Gautheron et Tassan-Got (2010) ont généralisé les solutions de l'équation de diffusion pour n'importe quel minéral de n'importe quelle forme. D'autres méthodes ont permis d'évaluer les propriétés de diffusion (Watson et Dohmen, 2010). L'analyse de la détection du recul élastique ERDA permet de mesurer la forme du profil d'hélium (He+) implanté en profondeur dans le cristal d'apatite. L'utilisation de cette technique a permis à Ouchani et al., (1997) de déterminer une énergie d'activation de 120 kJ/mol, soit 28.6 kcal/mol, et un coefficient de diffusion D_o de 14,5 (± 7) $\times 10^{-3}$ cm^2/s. La technique d'analyse des réactions nucléaires NRA (nuclear réaction analysis), utilisée notamment par Miro et al., 2006 et Cherniak et al., 2009, consiste à détecter des protons produits lors d'une réaction nucléaire deuton-^{3}He suite à l'implantation de ^{3}He, et à établir ainsi des profils de concentration de ^{3}He en profondeur dans l'apatite. Ces analyses donnent une énergie d'activation et un facteur préexponentiel relativement similaire (Ea=117±6 kJ/mol, soit 27.9 kcal/mol et $D_o = 20 \times 10^{-3}$ cm^2/s selon Cherniak et al., 2009).

Comme synthétisé dans le Tableau I-2, la majeure partie des expériences ont porté sur des cristaux de Durango. Les résultats sont plutôt en accord les uns avec les autres : l'énergie

d'activation déterminée ne varie qu'entre 115±1 et 161±17 kJ/mol. La valeur du log (D_o/a^2) est elle aussi relativement constante d'un auteur à l'autre (4 à 8 s^{-1}). Selon Baxter (2010), les variations entre ces valeurs d'énergie d'activation peuvent être liées à : (i) une diminution de la pente de la droite d'Arrhénius à haute température, (ii) un effet de la composition chimique des apatites.

Les travaux de Bengston et al. (2012) et Djimbi et al. (2015) ont adopté une approche microscopique pour simuler la diffusion de l'hélium dans l'apatite. Dans une apatite fluorée, ils ont ainsi déterminé les paramètres de diffusion par calcul quantique, grâce à la théorie fonctionnelle de la densité (DFT). Les résultats de Bengston et al. (2012) et Djimbi et al. (2015) sont en désaccord, et Roques et al. (soumis) expliquent ce désaccord par des différences de calculs et proposent d'utiliser uniquement les résultats de Djimbi et al. (2015). Ainsi, Djimbi et al. (2015) ont montré que la diffusion de l'hélium dans l'apatite est faiblement anisotrope, et ils ont calculé les paramètres de diffusion perpendiculairement à l'axe c (Ea=96 kJ/mol, $D_o=2\times10^{-3}$ cm^2/s) et parallèlement à c (Ea=106 kJ/mol et $D_o=4\times10^{-3}$ cm^2/s). Ces simulations numériques prévoient donc des valeurs d'énergie d'activation plus faibles que les travaux expérimentaux précédents.

Les variations indiquées dans le tableau I-2 sont liées à des variations expérimentales (les apatites ont des valeurs de eU ou des tailles de grain différentes selon les auteurs) et à des différences d'endommagement des apatites entre les auteurs, qui influent sur les propriétés de diffusion. Néanmoins, les valeurs des paramètres de diffusion de l'hélium jouent beaucoup sur les âges thermochronométriques. Voilà pourquoi les auteurs cherchent à déterminer ces paramètres. L'influence des paramètres de diffusion sur les âges hélium a été quantifiée par Gerin et al. (2017), qui ont étudié l'impact de l'énergie d'activation et du paramètre D_o sur la température de fermeture (et donc les âges hélium). Cela sera davantage développé dans la section 4.2.2 c. Gerin et al. (2017) utilisent les valeurs obtenues par Djimbi et al. (2015) dans

un réseau parfait, c'est à dire Ea~100 kJ/mol et D_o~3×10^{-7} m^2/s. Selon ces auteurs, une augmentation de l'énergie d'activation de 30 kJ/mol comme dans Shuster et Farley (2009) produirait un ralentissement de la diffusion et une augmentation de la capacité de stockage d'hélium dans l'apatite (et donc des âges AHe).

4.2.2. Facteurs influençant la diffusion de l'He dans l'apatite

a) *La taille de grains*

La géométrie des cristaux joue sur les propriétés de rétention. La température de fermeture est proportionnelle à la taille du domaine de diffusion (Reiners et Farley, 2001). Les grands cristaux donnent donc des âges plus vieux que les petits cristaux, pour une même histoire thermique. Reiners et Farley, 2001 donnent un ordre de grandeur de l'augmentation des âges avec la taille des cristaux : l'âge AHe augmente de 100 à 300 Ma lorsque le rayon du cristal augmente de 30 à 100 µm.

Les modèles les plus récents (Gautheron et Tassan-Got, 2010 ; Gautheron et al., 2012) tiennent compte de cette influence de la taille et de la géométrie des cristaux d'apatite. La rétention dépend du rayon équivalent, c'est à dire le rayon de la sphère ayant un rapport S/V équivalent à celui du cristal. Les dimensions des grains d'apatite (longueur, largeur, épaisseur de l'hexagone) sont mesurées systématiquement à la loupe binoculaire, et le rayon de la sphère équivalente peut ainsi être calculé facilement grâce à une interface numérique QtFT (Gautheron et Tassan-Got, 2010).

La géométrie des grains (taille R_s), et la distance d'éjection des particules alpha (R) déterminent le facteur F_T (Ketcham et al., 2011) : les petits grains perdent proportionnellement plus d'hélium que les grands (équation I-18).

$$F_T = 1 - \frac{3R}{4R_s} + \left[(0{,}2903 - 0{,}0465Np)\left(W + \frac{L}{\sqrt{3}}\right) + \left(0{,}1062 + \frac{0{,}2234R}{R + 6\left(W\sqrt{3} - L\right)}\right) \times \left(H - Np\frac{W\sqrt{3}/2 + L}{4}\right) \right] \frac{R^2}{V}$$

Equation I-18 : Facteur d'éjection pour un prisme hexagonal (Ketcham et al., 2011)

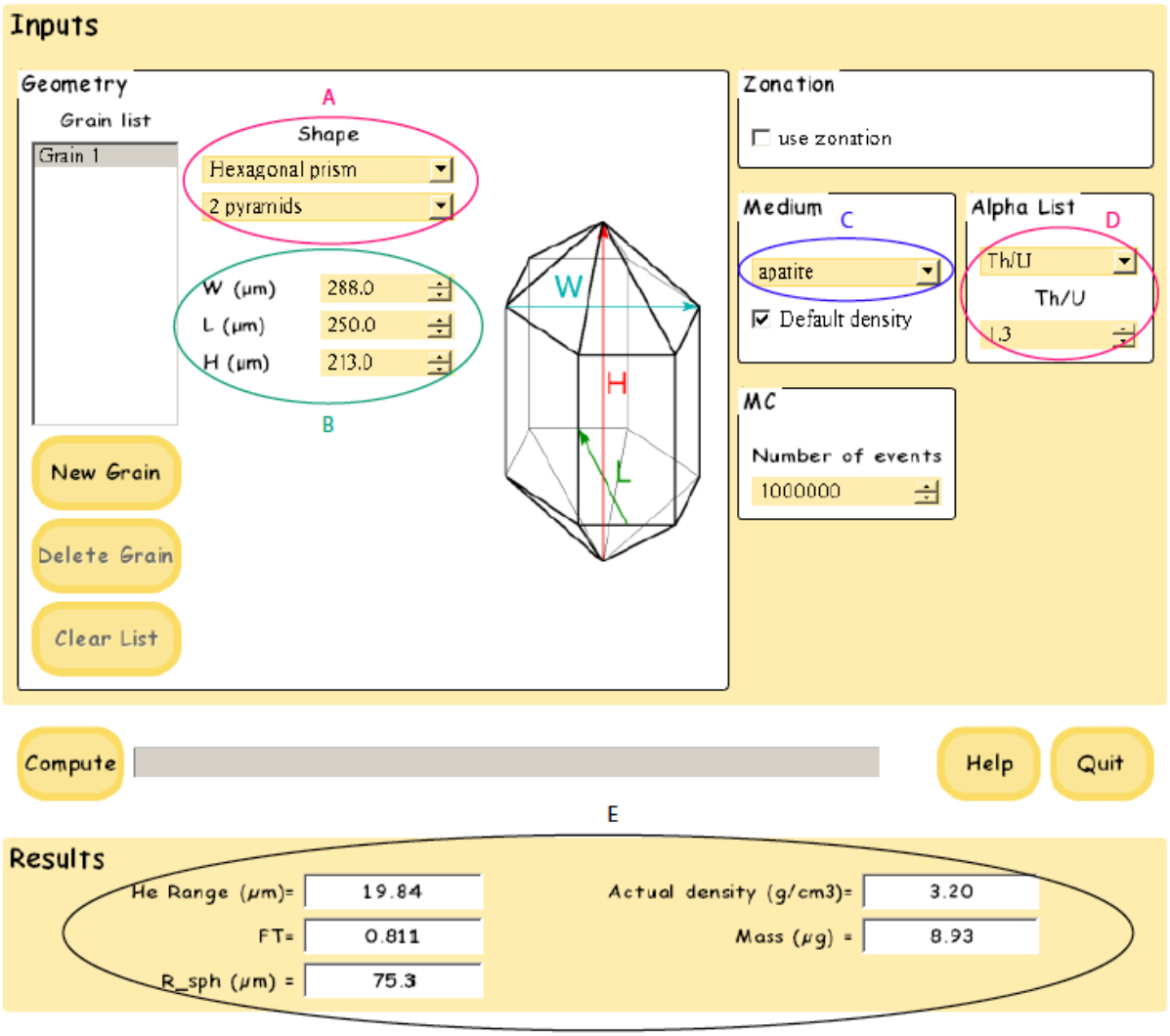


Figure I-11 : Interface numérique QtFT (Gautheron et al. 2012).

Cette interface est divisée en deux : les données d'entrée (inputs) en haut, et les résultats (results) en bas, délimités par le bouton de calcul (compute). A : forme du cristal. B : dimensions du cristal. C : minéralogie du cristal. D : données sur les particules alpha émises. E : résultats.

En pratique, le logiciel QtFT permet de calculer R et Rs à partir de la géométrie des grains (forme, dimensions), et ainsi d'évaluer le facteur F_T pour chaque cristal d'apatite (figure I-11). L'interface numérique QtFT comprend différentes données d'entrée (figure I-

11). La forme du cristal est hexagonale pour les cristaux d'apatite, et la boîte d'entrée A permet d'indiquer si le cristal est cassé ou non (1 ou 2 cassures), et s'il contient 0, 1, ou 2 pyramides. La boîte d'entrée B permet de rentrer dans le logiciel les mesures du cristal (longueur H, largeur L, épaisseur W) comme cela est dessiné sur la droite. Le logiciel fonctionnant à la fois pour l'apatite et le zircon, l'on indique la nature du minéral dans la boîte d'entrée C. Enfin, la valeur de la distance d'éjection (20 μm pour les particules alpha) ou du rapport Th/U doit être entré dans la boîte D. Les données de sortie (résultats) apparaissent dans la boîte E, dont la valeur du rayon de la sphère équivalente (Rs), le facteur d'éjection F_T, la densité (3.2 g/cm^3 pour l'apatite) et la masse du grain.

b) *La chimie des apatites*

La diffusion de l'hélium dans le réseau de l'apatite à l'échelle microscopique pourrait dépendre de la composition chimique, car la taille des atomes substituants modifie l'accessibilité des sites de rétention d'hélium (sites interstitiels). Djimbi et al. (2015) ont simulé le cas d'une apatite partiellement substituée par des atomes de chlore, et comparé celui-ci au cas d'une fluoroapatite pure. Les calculs suggèrent que les sauts atomiques de l'hélium sont énergétiquement différents en fonction de la composition chimique en chlore de l'apatite. Il y a donc une variabilité de diffusivité entre apatites de chimie différente. L'énergie d'activation de la $Cl_{0.25}$-apatite est plus élevée (E_a=167 kJ/mol) dans le plan c. La diffusion devient d'autant plus isotrope que le degré de substitution en Cl est élevé. Ainsi, le chlore jouerait sur la température de fermeture du système, en l'augmentant. La figure I-12 illustre l'impact du chlore sur la température de fermeture calculée par Djimbi et al. (2015). La température de fermeture est supérieure d'environ 10°C (soit 133%) pour l'apatite riche en chlore. La diffusion est donc plus lente pour les apatites riches en Cl que pour les fluoroapatites pures.

Néanmoins, la question du rôle du chlore dans la diffusion a relativement peu été abordée dans la littérature. Warnock et al. (1997) suggèrent que la teneur en chlore des apatites influence la température à partir de laquelle le comportement dévie de la droite d'Arrhénius. L'énergie d'activation des chloroapatites et des hydroxyapatites est alors déterminée à 123 et 126 kJ/mol contre 198 kJ/mol pour la fluoroapatite. Farley et al. (2000) n'ont pas noté d'effet de la composition chimique sur la diffusivité, même s'ils mentionnent l'effet existant sur les traces de fission. Miro et al. (2006) suggèrent un effet des substitutions du calcium et du groupement phosphate sur l'énergie d'activation de la diffusion.

Par analogie avec le thermochronomètre trace de fission, il est communément admis que la cicatrisation des dommages alpha dépend également de la composition des apatites en chlore. En effet, en l'absence d'étude complémentaire, la cicatrisation des dommages alpha est décrite avec les lois développées pour les traces de fission. Récemment, Gautheron et al. (2013) ont tenté d'évaluer le rôle de la chimie des apatites sur la cinétique de cicatrisation des dommages de recul alpha et sur la thermochronométrie AHe. Ils expliquent les variations des âges AHe pour des apatites détritiques provenant du bassin de Paris par une différence de cinétique de cicatrisation des dommages, potentiellement liée à une variation de chimie des apatites. Le modèle de Ketcham et al. (2007a) peut ainsi reproduire les données AHe grâce à une variabilité du paramètre rmr_o. Ainsi, comme pour les traces de fission les âges AHe augmenteraient avec la teneur en chlore des apatites.

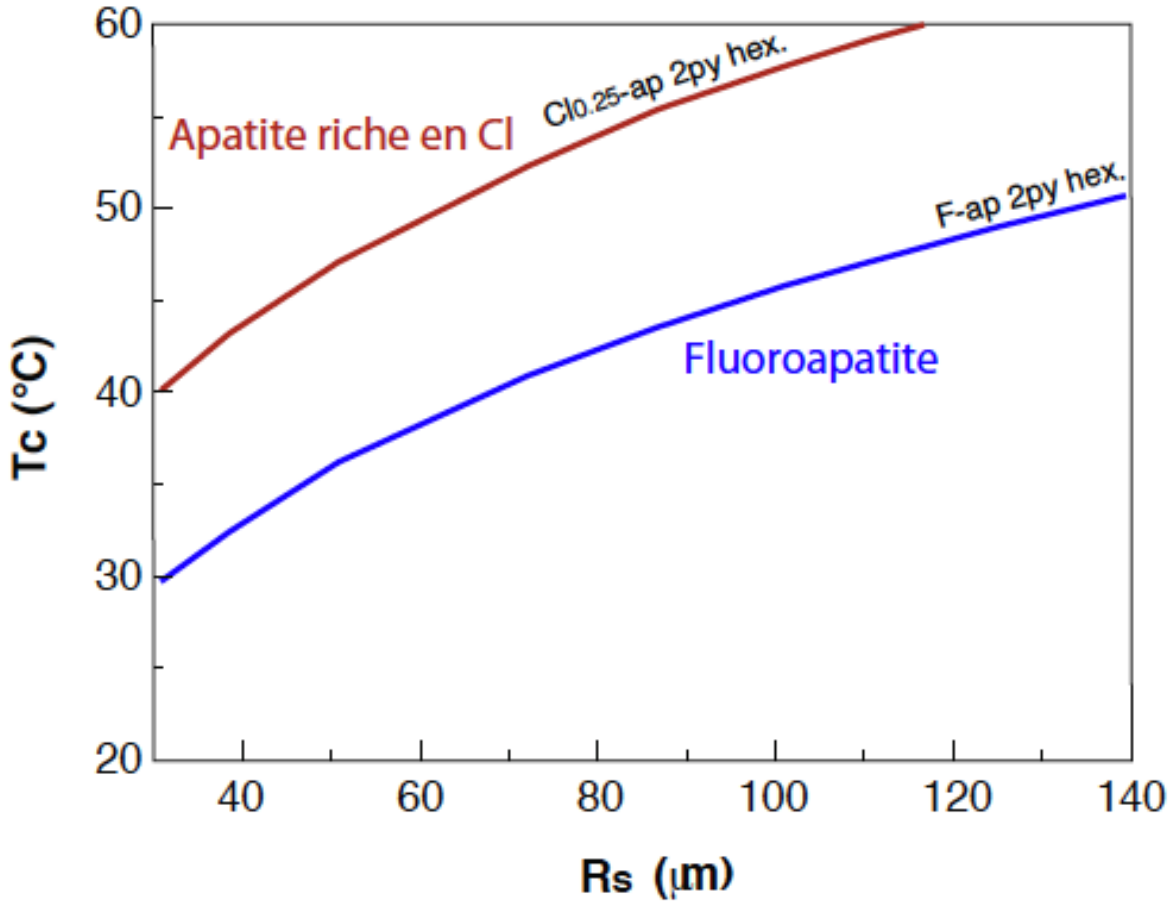


Figure I-12 : Impact de la composition chimique sur la température de fermeture (d'après Djimbi et al., 2015).

Les valeurs de température de fermeture ont été calculées à partir des coefficients de diffusion de Djimbi et al. (2015) et des cristaux en forme de prisme hexagonal à 2 pyramides, pour un taux de refroidissement constant de 10°C/Ma. La température de fermeture du système (U-Th-Sm)/He sur apatite augmente avec la proportion de substitution du fluor par le chlore. D'autre part, la diffusion est largement anisotrope pour la fluoroapatite ; le degré de substitution en chlore diminue cette anisotropie.

c) L'endommagement des cristaux

En 2005, Hendricks et Redfield ont remarqué un paradoxe notable dans les données thermochronologiques de Fennoscandie : les âges traces de fission sont inférieurs aux âges (U-Th)/He (le Sm n'était pas encore mesuré), bien que la température de fermeture des traces de fission soit supérieure à celle de l'hélium. Hendricks et Redfield (2005) ont suggéré que ce paradoxe est dû à une sous-estimation de la cinétique de cicatrisation des traces de fission. Au

contraire, Green et al. (2006) proposent que les traces de fission ont un comportement habituel, mais que la rétention de l'hélium dans l'apatite est anormalement élevée, et ne peut pas s'expliquer par les coefficients de diffusion habituels. A partir de ce moment, les mécanismes de rétention de l'hélium dans l'apatite ont été recherchés.

Shuster et al. (2006) ont démontré que l'endommagement naturel des cristaux par les particules alpha joue un rôle sur la cinétique de diffusion de l'hélium dans l'apatite. L'endommagement a pour effet de ralentir la diffusion, car les défauts cristallins agissent comme des pièges pour l'hélium. Shuster et al. (2006) proposent donc que l'énergie d'activation augmente avec la dose de particules alpha émises, de 120 kJ/mol (cristal non endommagé) à 150 kJ/mol (cristal endommagé). La figure I-13 (gauche) représente l'évolution de l'énergie d'activation en fonction de la dose d'atomes d'hélium produite. La diffusion ralentit donc en présence des dégâts d'irradiation alpha. La température de fermeture de l'hélium dans l'apatite augmente, d'environ 50°C pour une apatite non endommagée à 110°C pour une forte dose de alpha accumulée (figure I-13, droite). L'endommagement augmente donc la rétention d'hélium des cristaux d'apatite.

Suite à ces travaux, les modèles thermochronométriques les plus récents (Flowers et al., 2009 ; Gautheron et al., 2009) ont été élaborés. Ces deux modèles font varier les propriétés de diffusion en fonction de la concentration effective en uranium eU dans l'apatite (équation I-17). Le coefficient D diminue donc avec eU.

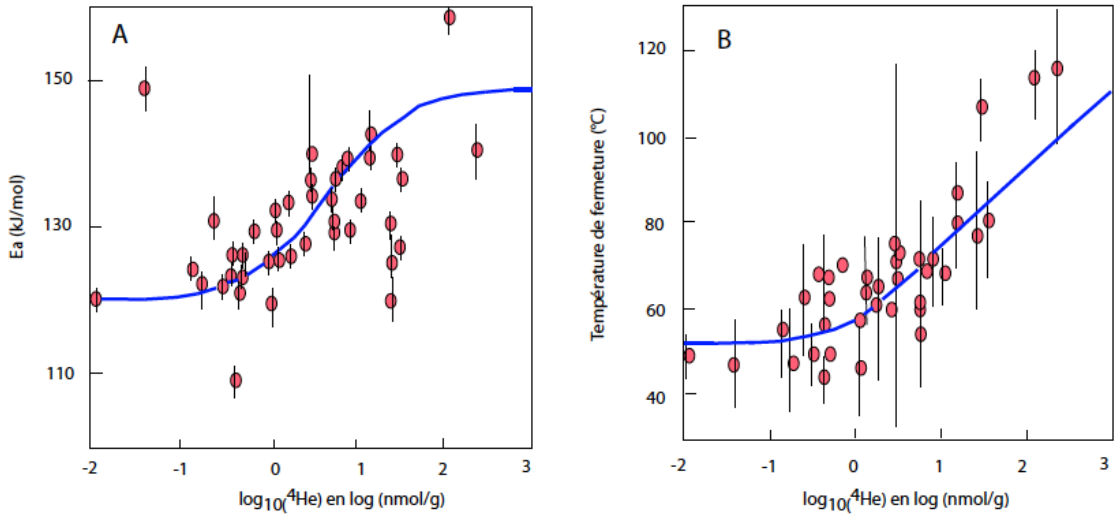


Figure I-13 : Endommagement et diffusion de l'hélium

(d'après Shuster et al., 2006)

A : Energie d'activation en fonction de la dose de particules alpha. Le modèle de rétention d'hélium dans les dommages cristallins prédit que l'énergie d'activation et la température de fermeture augmentent avec la dose de particules alpha (atomes d'hélium) produite, selon les courbes en bleu de la figure I-13. Les apatites endommagées sont donc plus rétentives. Les points rouges sont les données, avec leurs barres d'erreurs respectives. B : Température de fermeture en fonction de la dose de particules alpha.

Les modèles de 2009 ont innové en proposant une augmentation de la rétention d'hélium avec la dose de particules alpha produites. Ainsi, Flowers et al. (2009) ont proposé une courbe de l'évolution de la température de fermeture avec la densité effective de défauts, pour des densités de 10^4 à 10^7 traces/cm^2. Cette courbe est relativement proche de celle de Shuster et al. (2006) présentée figure I-13. Gautheron et al. (2009) adoptent une autre approche : la production de dommages est évaluée selon une équation physique, et la variation de la rétention est calibrée grâce à des échantillons naturels du Massif Central. Ces échantillons sont relativement âgés (40 à 196 Ma) et riches en uranium (18 à 114 ppm) et en thorium (1 à 70 ppm).

Gerin et al. (2017) ont compilé les valeurs des coefficients de diffusion obtenues par différents auteurs, en fonction de l'endommagement de l'apatite. Pour des concentrations de dommages inférieures à un seuil (de 1 à 10 %), les auteurs remarquent que le coefficient de diffusion diminue avec l'endommagement, comme illustré figure I-14. Ainsi, Gerin et al. (2017) proposent un nouveau modèle de diffusion dans lequel le coefficient de diffusion dans un cristal endommagé D^* est plus faible que dans le cristal parfait, et suit l'équation I-19, où D est le coefficient de diffusion dans le cristal parfait, f(x) la fraction de dommages, et h le facteur de cicatrisation (entre 0 et 1).

$$D^*(x,T) = \frac{D(T)}{1 + hf(x)\exp(\Delta Ea/RT)}$$

Équation I-19 : Coefficient de diffusion d'une apatite endommagée (d'après Gerin et al., 2017)

Selon ce nouveau modèle, la température de fermeture augmente exponentiellement avec l'endommagement, de 40 °C (cristaux non endommagés) à 120 °C (densité de défaut=10^7 traces/cm^2). Cette température dépendrait de la capacité des défauts alpha à stocker de l'hélium. Celle-ci est quantifiée par une énergie ΔE_a nécessaire pour que l'hélium quitte ces sites, une fois piégé. D'après Gerin et al. (2017), ΔE_a augmenterait avec l'accumulation des défauts : plus les défauts s'accumulent et mieux ils piègent l'hélium. Ainsi, l'énergie ΔE_a augmente avec le pourcentage d'endommagement, d'environ 25 kJ/mol pour 0.001% de dommages à 50 kJ/mol pour 1% de dommages (figure I-14). Les auteurs proposent une explication physique à cela. Au fur et à mesure de leur accumulation, les dommages pourraient se regrouper en « clusters », ce qui augmenterait leur capacité de stockage et donc la rétention d'hélium.

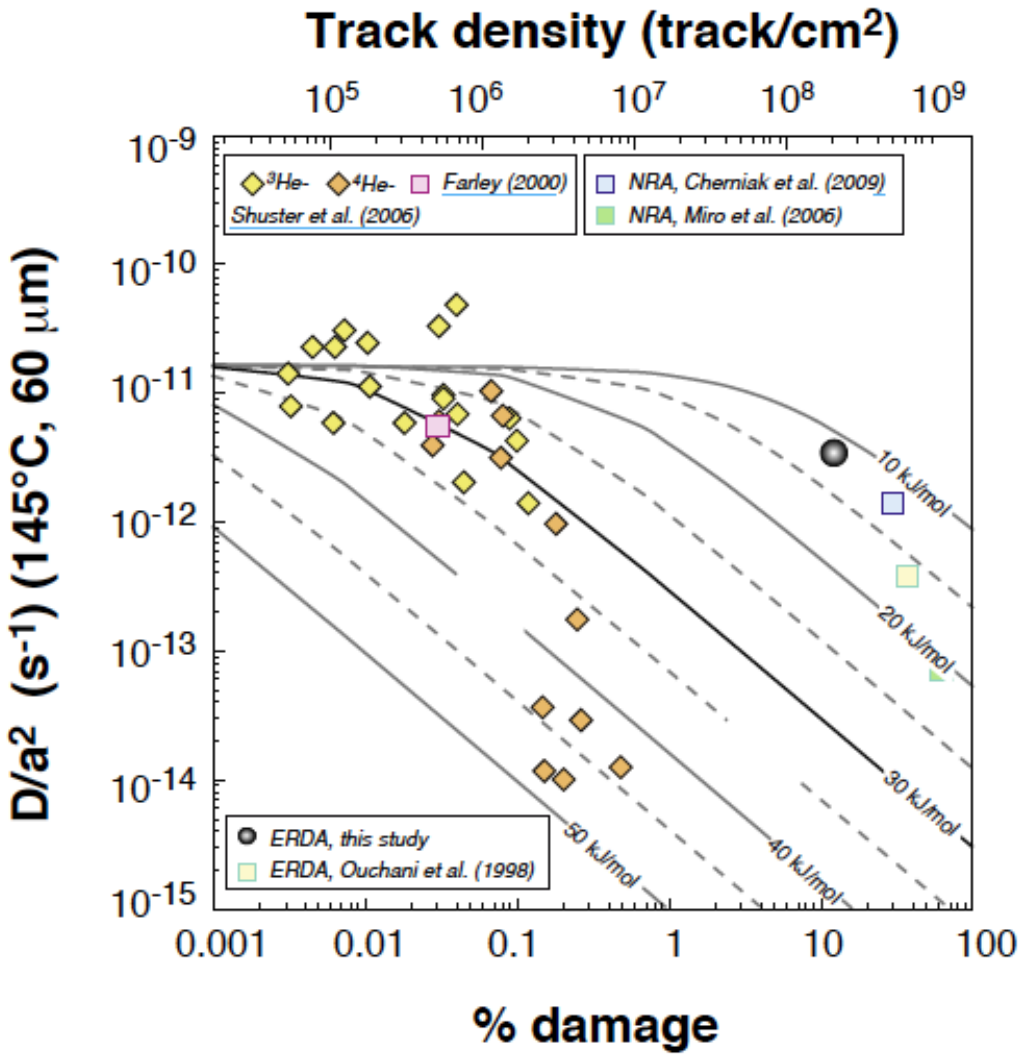


Figure I-14 : Coefficient de diffusion et endommagement

(d'après Gerin et al., 2017)

Gerin et al., 2017 a compilé les données de diffusion de la littérature en fonction de la concentration de dommages dans l'apatite. Les données montrent une diminution du coefficient de diffusion lorsque l'endommagement augmente. L'énergie ΔEa définie par Gerin et al. (2017) augmente également avec l'endommagement, de 25 kJ/mol pour des faibles concentrations de dommages à 50 kJ/mol pour des concentrations approchant les 1%.

Par analogie avec les traces de fission, il est communément admis que les dommages de recul cicatrisent également sous l'effet de la température. D'après des expériences de

chauffage d'apatite (Shuster et Farley, 2009), ce phénomène de cicatrisation aurait l'effet inverse de l'accumulation des défauts : la cicatrisation accélère la diffusion de l'hélium. Le modèle de Gautheron et al. (2009) tient compte de ce phénomène de cicatrisation, qui tend à diminuer la quantité de défauts présente dans l'apatite par rapport à la quantité produite – qui, elle, est proportionnelle à eU. Gautheron et al. (2009) utilisent une cinétique de cicatrisation similaire à celle qui a été auparavant déterminée pour les traces de fission, avec une loi de cicatrisation du type de celle de Laslett et al. (1987). La loi la plus récente est celle de Ketcham et al. (2007a), mais selon Gautheron et al. (2009) le coefficient de diffusion de l'hélium dans l'apatite est peu sensible à la nature de la loi utilisée. Ainsi, si l'on tient compte de la production et de la cicatrisation naturelle des défauts, les propriétés de diffusion et donc la température de fermeture dépendent de la densité effective de défauts présents dans l'apatite, c'est à dire la densité produite moins la densité cicatrisée.

4.2.3. Température de fermeture et zone partielle de rétention

Des propriétés de diffusion découle la notion de température de fermeture Tc, que l'on a définie précédemment (section 1). L'ensemble des données disponibles est résumé dans le Tableau I-3. D'après Farley (2000, 2002), la température de fermeture de l'hélium dans l'apatite découle des paramètres Ea et Do, et est de 70°C (pour une taille de grains de ≈ 80μm). Ce résultat est concordant avec celui de Wolf et al. (1996), pour qui Tc=75 ±7°C. Néanmoins, Tc, comme les propriétés de diffusion, dépend étroitement de la taille de grains, de leur forme, et du taux de refroidissement de la roche (figure I-1). Tc varie alors entre 60 et 90 °C pour des taux de refroidissement entre 1 et 100 °C/Ma.

D'autre part, Wolf et al. (1998) définissent le concept de zone de rétention partielle en hélium (HePRZ) comme la gamme de température au-delà de laquelle >90% de l'hélium radiogénique est perdu par diffusion ; tandis qu'en dessous il est retenu (<10% de perte). Les

premières études de Wolf et al. (1998) et Stockli et al. (2000) suggèrent que l'HePRZ est l'intervalle de 40 à 80-85 °C. Néanmoins, les travaux plus récents de Shuster et al. (2006) montrent que l'HePRZ peut aller jusqu'à 120°C.

Tc (°C)	Référence
75	Wolf et al., 1996
90-120	Warnock et al., 1997
68	Farley, 2000 (100 µm)
57-65	Shuster et al, 2006 (4-150 ppm d'eU, unknown grain size)
63-68	Flowers et al, 2009 (4-150 ppm d'eU, unknown grain size)
30-40	Djimbi et al, 2015 (40-140 µm, pas de défaut)

Tableau I-3 : Température de fermeture de l'hélium dans l'apatite

Ce tableau synthétise les valeurs des températures de fermeture de l'hélium dans l'apatite obtenues par les différents auteurs. Le modèle de Flowers et al. (2009) et de Shuster et al. (2006) ou de Farley (2000) sont basés sur un même type d'expérience, et donnent une valeur plus élevée que celle évaluée par les calculs DFT de Djimbi et al. (2015), utilisée par le modèle de Gerin et al. (2017).

Warnock et al. (1997) suggèrent que Tc dépende également de la composition de l'apatite, les apatites riches en Cl ou en OH ayant une plus faible Tc=55±30°C. Au contraire, Djimbi et al. (2015) prévoient que la Tc d'une fluoroapatite est plus faible que celle d'une chloroapatite, comme montré figure I-12. Comme expliqué précédemment, selon Flowers et al. (2009), la température de fermeture augmente avec eU. La figure I-15 montre cette augmentation de la température de fermeture avec eU, quelle que soit la valeur du taux de refroidissement. Par exemple, pour un taux de refroidissement de 1°C/Ma, Tc augmenterait de

50°C (eU=4 ppm) à 75°C (eU=150 ppm). La profondeur de l'HePRZ augmenterait également avec eU (Shuster et al., 2006 ; Gautheron et al., 2009). D'autre part, l'HePRZ varie dans le temps, en fonction de l'histoire thermique (taux de refroidissement, phases d'enfouissement), comme montré par Gautheron et al. (2009).

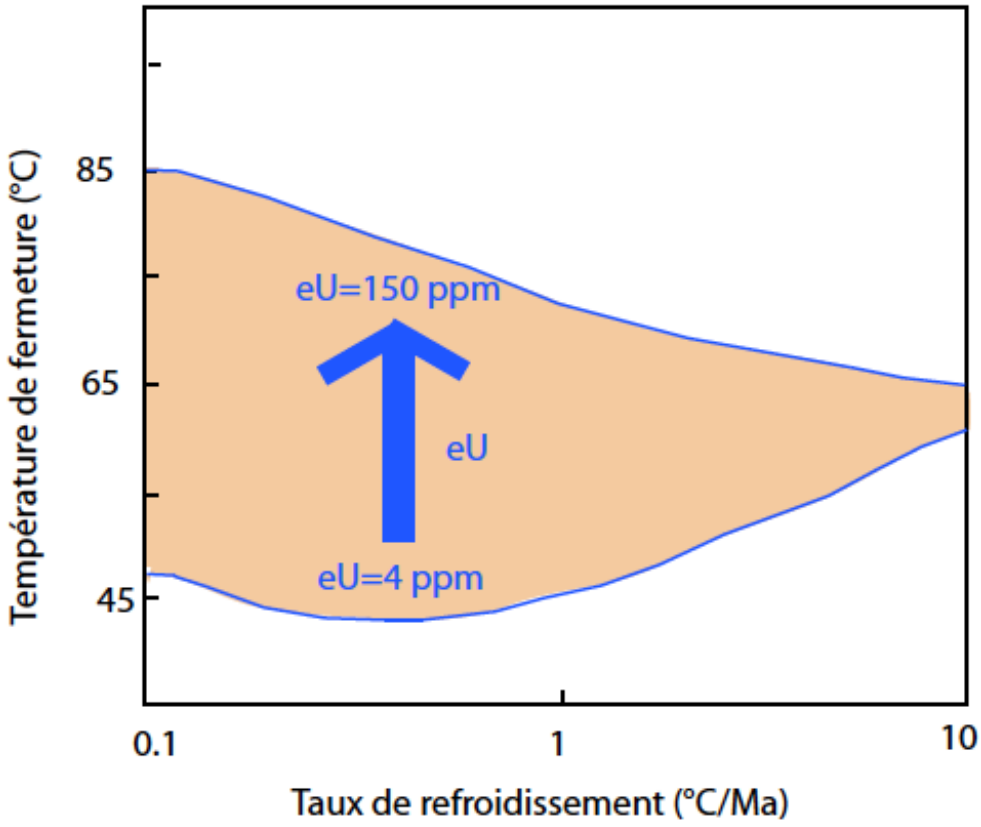


Figure I-15 : Température de fermeture et endommagement

(d'après Flowers et al., 2009)

Ce graphique représente l'évolution de la température de fermeture avec le taux de refroidissement, et ce pour différentes valeurs de eU. Lorsque l'endommagement augmente (eU augmente), la température de fermeture augmente et la courbe monte dans le sens de la flèche.

5. Modélisation des données thermochronologiques

5.1 Modélisation des données AFT et AHe

Comme nous venons de l'exposer, les données thermochronologiques sont multiples : âge trace de fission, distribution de longueurs de traces de fission, ou âge (U-Th-Sm)/He. Les modèles permettent de relier ces données à l'histoire thermique. Ils prennent en compte l'ensemble des connaissances sur l'accumulation et la cicatrisation des défauts dans l'apatite. L'objectif de cette section est : (i) de démontrer l'utilité de la modélisation pour déterminer l'histoire thermique d'une roche, et (ii) de comparer les résultats des différents modèles de diffusion, pour une histoire thermique donnée.

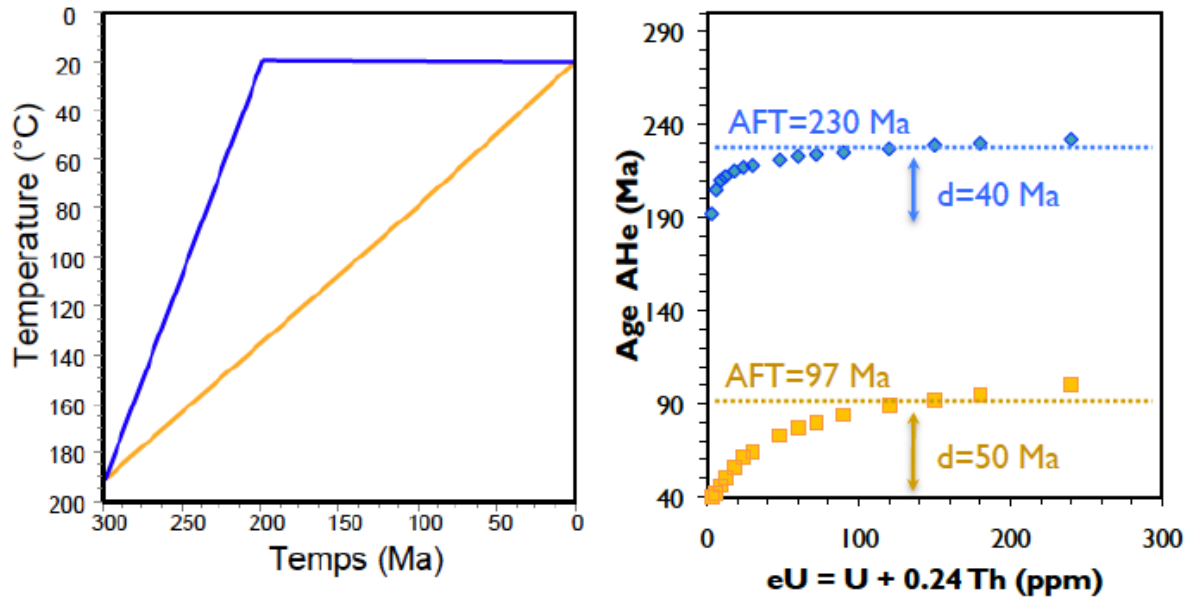


Figure I-16 : Simulations de la relation AHe vs eU pour des cas théoriques simples

Ces simulations ont été effectuées dans le logiciel HeFty (Ketcham 2005), en fixant les valeurs de eU et de Rs, et en utilisant le modèle de Flowers et al. (2009). La dispersion des âges d est relativement faible, et les âges thermochronométriques sont plus élevés pour un refroidissement rapide (chemin bleu) que pour un refroidissement lent (chemin jaune).

Le but de la modélisation est de discriminer l'histoire thermique à partir du jeu de données thermochronométriques. Prenons deux histoires thermiques simples : un refroidissement monotone rapide (représenté en bleu sur la figure I-16) et un refroidissement monotone lent (représenté en jaune sur la figure I-16). Simulons le jeu de données thermochronométriques obtenu pour chaque chemin temps/température, grâce au modèle de Flowers et al. (2009). Les résultats de ces simulations effectuées grâce au logiciel HeFTy (Ketcham, 2005) sont représentés sur la figure I-16 (à droite) en bleu et en jaune. Chaque point de la figure est le résultat d'une simulation effectuée en fixant la valeur de eU et de Rs (=60 μm).

Pour le refroidissement rapide, l'âge trace de fission et l'âge (U-Th-Sm)/He modélisés par les modèles actuels sont élevés : AFT = 230 Ma, et AHe = 190 à 230 Ma. Si le refroidissement est lent, les thermochronomètres ont passé la température de fermeture plus récemment, et les âges thermochronométriques sont donc beaucoup plus faibles : AFT= 97 Ma et AHe= 40-100 Ma. Ainsi, cet exemple théorique montre bien que deux histoires thermiques différentes conduisent à des données thermochronologiques distinctes. En mode inverse, les simulations permettent donc de retrouver l'histoire thermique grâce à l'âge trace de fission et l'âge AHe.

Actuellement, deux modèles d'âge (U-Th-Sm)/He sont utilisés pour interpréter les données : le modèle de Flowers et al. (2009), et celui de Gautheron et al. (2009). Des différences existent entre les deux, et notamment la température de fermeture utilisée pour l'apatite non endommagée. Le modèle de Flowers et al. (2009) utilise la cinétique de diffusion obtenue pour des cristaux de Durango ayant été préalablement réchauffés pour retirer les dommages (correspondant à une température de fermeture dans l'apatite non endommagée de 55 °C) selon le fit empirique, tandis que celui de Gautheron et al. (2009) utilise la cinétique de

diffusion de l'He des cristaux de Durango de Farley (2000), correspondant à une température de ~70°C.

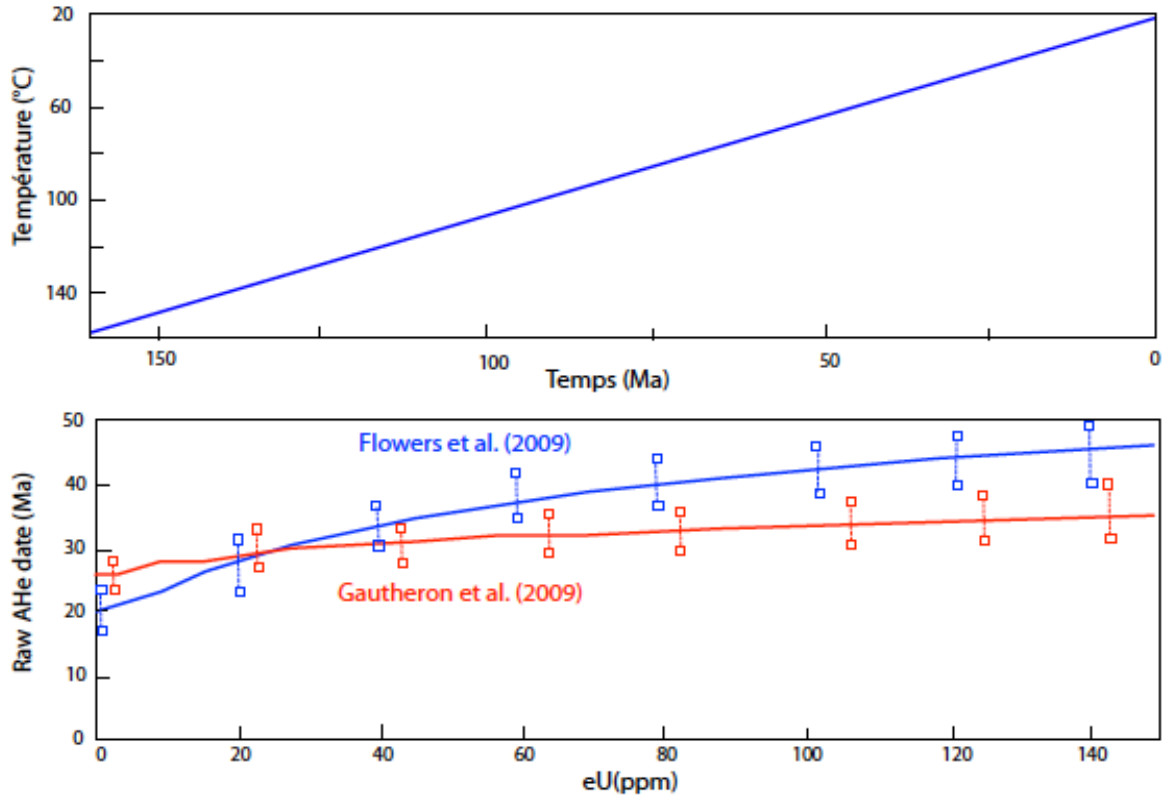


Figure I-17 : Comparaison entre le modèle de Flowers et al. (2009) et celui de Gautheron et al. (2009)

Pour une histoire thermique simple d'un refroidissement monotone (graphique du haut), nous avons prédit les âges selon le modèle de Flowers et al. (2009) en bleu, et avec le modèle de Gautheron et al. (2009) en rouge, représentés ici en fonction de eU. Les barres d'erreur correspondent à 10% de la valeur prédite, afin de concorder avec la gamme d'erreur analytique dans les mesures. Pour des valeurs élevées de eU (>50 ppm), le modèle de Flowers et al. (2009) est plus rétentif et prédit des âges légèrement plus élevés que le modèle de Gautheron et al. (2009). Les barres d'erreurs n'expliquent pas cette différence. Pour des très faibles valeurs de eU (<10 ppm) c'est l'inverse : le modèle de Gautheron prédit des âges plus élevés que le modèle de Flowers et al. (2009).

La relation entre l'endommagement et l'évolution de la température de fermeture est également différente entre les deux modèles. A fort eU, le modèle de Flowers et al. (2009) est plus rétentif que celui de Gautheron et al. (2009). Ainsi, pour des valeurs elevées de eU, les âges simulés par le modèle de Flowers et al. (2009) sont plus élevés que ceux simulés par le

modèle de Gautheron et al. (2009). A faible eU, c'est l'inverse. La figure I-17 représente la relation âge/eU simulée en mode direct par les deux modèles, pour une histoire thermique simple (refroidissement monotone). Ces modélisations ont été effectuées grâce au logiciel QTQt (Ketcham, 2012).

5.2. Logiciels

Comme indiqué précédemment, plusieurs logiciels sont utilisables pour modéliser les données thermochronologiques. Deux modes de simulations sont utilisables : le mode direct et le mode inverse. Pour le mode direct, l'on rentre aussi en paramètre d'entrée l'histoire thermique, la taille de grains, le paramètre de cicatrisation des traces (éventuellement le Dpar), et les concentrations en U, Th, et Sm (ou le eU).

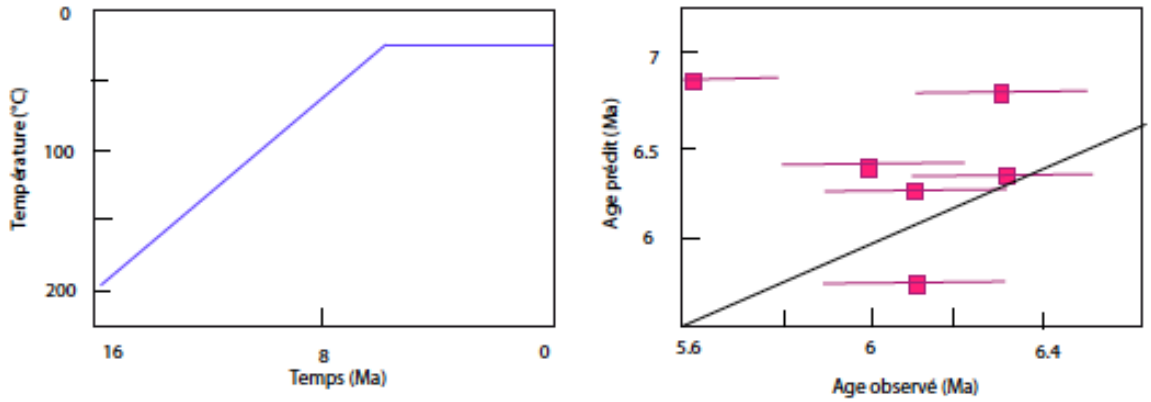


Figure I-18 : Simulation de l'âge AHe en mode direct avec QTQt (Gallagher 2012).

L'histoire thermique présentée dans le graphique de gauche est une donnée d'entrée de la simulation en mode direct. Le modèle prédit des âges bruts, qui sont comparés aux données observées. Le résultat de la simulation est le graphique de droite. Ici, la simulation est peu satisfaisante : les données du graphique de droite ne sont pas alignées sur la droite 1 : 1. Les données sont les données traces de fission mesurées dans les Alpes (voir chapitre 4, données de Valla et al., 2011) pour une altitude donnée pour un échantillon.

Les résultats des simulations peuvent être comparés aux données, soit par l'utilisateur soit via une interface graphique (sur QTQt, Figure I-18 à droite). L'inversion des données

consiste à procéder dans le sens opposé : les données thermochronologiques sont les paramètres d'entrée du modèle, tandis que l'histoire thermique est en sortie.

Pour inverser les données, chaque logiciel a son propre algorithme. Des différences méthodologiques existent donc entre HeFTy, et QTQt ; et l'histoire thermique obtenue pour un même jeu de données peut donc varier légèrement. De façon générale, la procédure d'inversion consiste à modéliser les données thermochronométriques successivement pour une large variété de chemins temps/température, puis de comparer pour chaque cas le résultat simulé aux données d'entrée. L'algorithme peut ainsi ne retenir que les histoires thermiques pour lesquelles le résultat simulé est suffisamment proche des données d'entrée. Dans QTQt, la quantité de données acceptées et de chemins thermiques testés peut être modulée par l'utilisateur. Les détails de la méthode d'inversion sont explicités dans Gallagher (2012) : la méthode utilise une chaîne de Monte Carlo, à l'aide des statistiques Bayésiennes (Gallagher et al., 2009). En entrée, des contraintes externes sur l'histoire thermique peuvent être ajoutées.

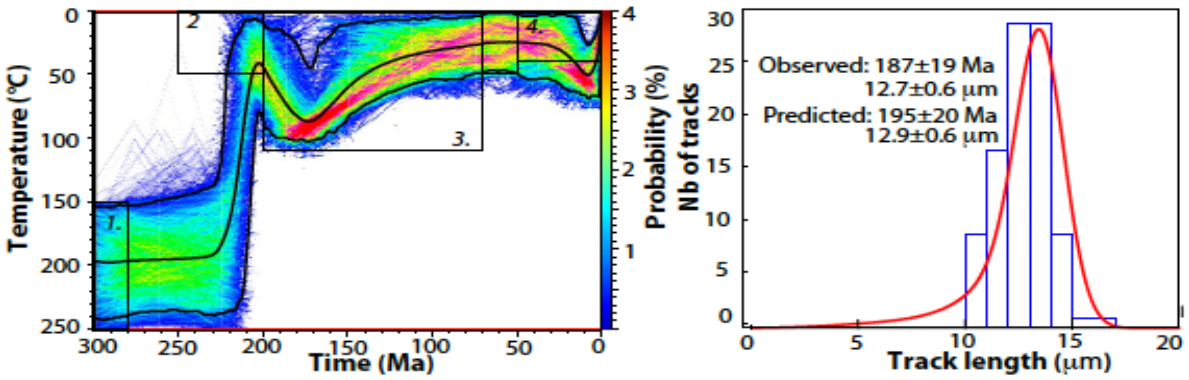


Figure I-19 : Simulation en mode inverse avec QTQt (Gallagher 2012).

Le résultat de l'inversion est l'ensemble des histoires thermiques probables qui expliquent le mieux les données. Ces histoires, représentées à gauche, sont colorées selon leur probabilité, du moins probable (bleu) au plus probable (rouge). Les données prédites peuvent être comparées aux observables, comme montré pour les traces de fission à droite. Ici, la simulation est satisfaisante pour les traces : l'âge et les longueurs prédits sont proches des observations. Les données inversées sont les données traces de fission issues du granite de Ploumanac'h, et le graphique à droite représente l'échantillon PL2.

Le logiciel QTQt permet d'examiner soit le modèle qui reproduit le mieux les données (par la méthode des moindres carrés), soit le modèle qui est le plus probable. Après inversion, l'utilisateur peut comparer les résultats du ou des modèles par rapport aux observations (figure I-19 à droite).

Une comparaison de HeFTy et de QTQt est réalisée par Vermeesch et Tian (2014). Les modèles utilisables varient entre les logiciels, notamment le modèle de Gautheron et al. (2009) n'est pas intégré à HeFTy ; et le nombre de données d'entrée est supérieur dans QTQt. Généralement, selon l'usage que l'on veut en faire, chaque auteur a ses préférences entre chacun des logiciels. Dans tous les cas, la modélisation inverse des données permet de déterminer une histoire thermique probable à partir des données thermochronologiques, permettant ainsi une interprétation géologique des données.

6. Perspectives de recherche

6.1 Améliorations à apporter aux modèles de diffusion d'hélium dans l'apatite

Les mécanismes de stockage d'hélium dans les défauts de recul des particules alpha restent mal connus. Selon le modèle de Gautheron et al. (2009), la rétention augmente linéairement avec le nombre de défauts créés. Selon celui de Flowers et al. (2009) l'augmentation de la rétention avec l'eU est plus franche pour les faibles doses de alpha émises, de façon non linéaire mais plutôt cubique. Afin d'améliorer ces modèles, il est nécessaire de déterminer la relation entre la rétention d'hélium et l'endommagement de l'apatite, via des expériences ou des calibrations sur échantillons naturels. Concernant ces échantillons naturels, une calibration sur des échantillons différents serait utile : des échantillons pauvres en défauts, i.e. ayant un âge thermochronologique jeune et une concentration faible en uranium et thorium (à faible eU), ou au contraire des échantillons ayant des âges thermochronologiques vieux (>200 Ma) avec des concentrations variables en

eU. Ainsi, l'on pourrait déterminer le lien entre rétention et endommagement pour des apatites peu ou très endommagées.

Toutes les études actuelles ont été réalisées sur des apatites non endommagées (Shuster et al., 2006), ou à des quantités d'endommagement relativement faibles (densités de traces effectives $<10^7$ tr/cm^2 pour Flowers et al., 2009 ; U<115 ppm pour Gautheron et al., 2009). Aucune étude n'a pour l'instant été réalisée sur des apatites très endommagées (très vieilles, ou à très fort eU). Néanmoins, ce cas a déjà été étudié pour le zircon par Ketcham et al. (2013) et Guenthner et al. (2013). En effet, d'après des expériences de diffusion d'hélium, ils ont déterminé l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la dose de particules alpha, et ce pour des doses allant de 10^{16} à 10^{19} α/g. Ces études confirment que la rétention d'hélium augmente avec la dose d'alpha reçue par le cristal pour des doses $<10^{18}$ α/g. Néanmoins, pour des doses élevées d'endommagement ($>10^{18}$ α/g), la rétention en hélium dans le zircon diminue drastiquement. Ketcham et al. (2013) expliquent ce phénomène par un processus d'interconnexion et de percolation des défauts. Lorsque les défauts sont nombreux, ils s'interconnecteraient, formant ainsi des chemins préférentiels de diffusion rapide de l'hélium. Le coefficient de diffusion augmenterait donc à forte dose de dommages de recul alpha. Il serait intéressant de refaire ces expériences avec des apatites, ou de déterminer la relation âge/dose pour des apatites à eU > 200 ppm ou pour des AHe > 200Ma, ou encore des densités de défauts $>10^7$ tr/cm^2.

D'autre part, la cinétique de cicatrisation des défauts de recul est inconnue. Par défaut, les lois utilisées pour les traces de fission sont empruntées (Laslett et al., 1987 ; Ketcham et al., 2007a). Cependant, il n'y a aucune raison que les traces de fission et les défauts de recul cicatrisent selon les mêmes lois, ou aux mêmes vitesses. En 2014 par exemple, Fox et Shuster suggèrent qu' « un raffinement des paramètres qui déterminent la cinétique de cicatrisation des dommages » permettrait de mieux expliquer les données AFT et AHe qui sont parfois en

conflit. Selon Fox et Shuster (2014) et Willet et al. (2017), les dommages de recul cicatriseraient plus doucement que les traces de fission à une température donnée. Il serait intéressant de savoir détecter et de quantifier les dommages de recul pour vérifier cela.

6.2 Thermochronologie et chimie des apatites

Comme indiqué précédemment, la concentration en chlore des apatites joue sur les âges traces de fission et les âges (U-Th-Sm)/He. Cependant, le rapport Cl/F n'est pas le seul facteur jouant sur les âges (Carlson et al., 1999 ; Barbarand et al., 2001, 2003b). Le taux de substitution du Ca par d'autres cations jouerait également sur la vitesse de cicatrisation des traces de fission. Les REE ne sont que modérément corrélées à l'âge trace de fission, et semblent jouer un rôle mineur. D'autre part, le fait que la cicatrisation des dommages alpha dépende de la concentration en chlore ne repose que sur l'hypothèse de base d'une similarité entre les dommages alpha et les traces de fission – fait qui n'est pas vérifié.

La question du lien entre la chimie des apatites et les âges thermochronométriques (AFT et AHe) n'est pas entièrement résolue actuellement. Le futur de ces méthodes reste donc ouvert et nécessite : (i) d'analyser systématiquement la chimie des apatites le plus complètement possible, (ii) de rechercher d'éventuelles corrélations entre âge et chimie, (iii) de déterminer quels paramètres chimiques sont primordiaux pour expliquer les données. Dans cette thèse, nous nous attellerons à investiguer ces questions dans chaque étude de cas naturels, et par une série d'expériences. Des outils numériques de traitement statistique et d'apprentissage serviront ensuite à déterminer informatiquement si les paramètres chimiques expliquent empiriquement le signal thermochronométrique ou si la chimie n'ajoute qu'un bruit de fond à ce signal.

6.3 Dispersion et géométrie des cristaux

Comme on l'a indiqué précédemment, la taille des grains influe sur l'éjection et sur la diffusion de l'hélium hors des cristaux. Les travaux récents de Beucher et al. (2013) et de Brown et al. (2013) montrent que la forme et l'état des cristaux (cassés ou non) joue également sur les âges individuels obtenus sur les grains d'apatite. La température de fermeture, et donc l'âge d'un cristal cassé est proportionnel à la longueur du fragment (figure I-20), et à la position du fragment dans le cristal intact (au cœur ou à la périphérie).

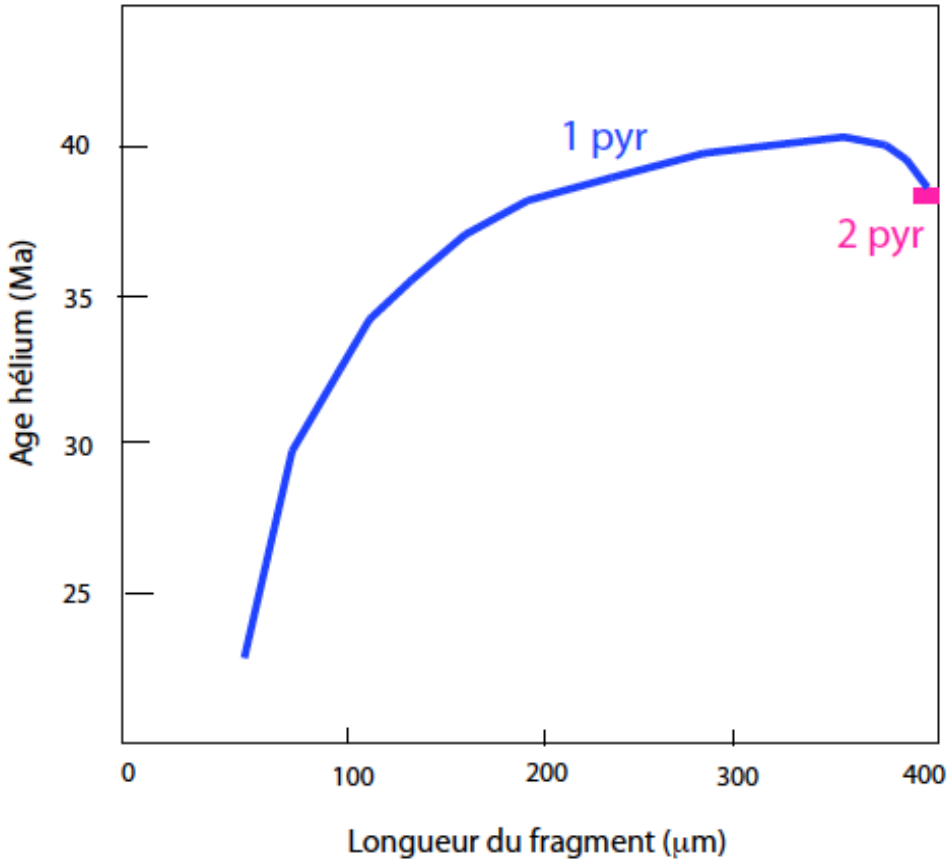


Figure I-20 : Impact de la longueur des fragments sur l'âge AHe (d'après Brown et al., 2013)

La courbe bleue représente l'âge des fragments à 1 pyramide en fonction de leur longueur. Le carré rose représente l'âge du grain entier (2 pyramides), d'une longueur de 400 µm. Ce graphique montre que l'âge des cristaux avec une unique pyramide (ou cassés) augmente avec la longueur du fragment, jusqu'à 380 µm. La dispersion des âges entre 20 et 40 Ma peut donc s'expliquer par une variation de la géométrie des grains, en présence de cristaux cassés ou non entiers.

En effet, la distribution de l'hélium dans l'apatite peut varier du cœur à la périphérie du cristal. L'âge d'un fragment d'apatite augmente avec la longueur du fragment, et est minimal pour un fragment à la périphérie du grain. Par exemple, pour un cristal entier de 400 µm, l'âge des fragments gardant 1 terminaison pyramidale varie entre 20 et 40 Ma selon la longueur du fragment (figure I-20). Brown et al. (2013) et Beucher et al. (2013) proposent donc un nouveau modèle, utilisant des grains d'apatite cassés de différentes formes. Ce nouveau modèle d'inversion permet de retrouver l'histoire thermique grâce à l'étude de la dispersion des âges de 15 à 20 cristaux plus ou moins cassés.

La dispersion naturelle des âges liée aux cassures des cristaux arrive essentiellement lors d'une longue résidence dans la zone de rétention partielle en hélium. Une des voies à explorer dans le futur est donc de reporter systématiquement et le plus précisément possible la géométrie complète des cristaux analysés : forme, dimensions, présence de cassure, etc… Cela facilitera la recherche de corrélations entre l'âge brut ou corrigé et la géométrie. Ainsi, le paramètre F_T pourrait être raffiné, et les modèles d'inversion des données pourraient tenir compte davantage de l'état des cristaux, à l'instar des travaux de Brown et Beucher. Dans la suite de ce travail, pour toutes nos études d'échantillons naturels, nous nous attellerons à cette question en reportant l'âge brut, l'âge corrigé du facteur F_T de Ketcham et al. (2011), et l'état/ les dimensions des cristaux.

7. Références bibliographiques du chapitre et de l'introduction

Abbassene F., Chazot G., Bellon H., Bruguier O., Ouabadi A., Maury R.C., Deverchère J., Bosch D., Monié P., 2016. A 17Ma onset for the post-collisional K-rich calc-alkaline magmatism in the Maghrebides : Evidence from the Bougaroun (Northeast Algeria)and geodynamic implications. Tectonophysics 674 : 114-134.

Arab M., Rabineau M., Deverchère J., Bracene R., Belhai D., Roure F., Marok A., Bouyahiaoui B., Granjeon D., Andriessen P., Sage F., 2016. Tectonostratigraphic evolution of the Eastern Algerian margin and basin from seismic data and onshore-offshore corrélation. Marine and Petroleum Geology 77 : 1355-1375.

Arrhenius S.A., 1889. Uber die dissociationswarme und den Einfluβ der temperatur auf den dissociationsgrad der Elektrolyte. Z. Phys. Chem. 4 : 96- 116.

Ault A., Flowers R.M., 2012. Is apatite U-Th zonation information necessary for accurate interpretation of apatite (U-Th)/He thermochronometry data ? Geochimica et Cosmochimica Acta 79: 60-78.

Balestrieri M.L., Bernet M., Brandon M.T., Picotti V., Reiners P., Zattin M., 2003. Pliocene and Pleistocene exhumation and uplift of two key areas of the Northern Appenines. Quaternary International 101-102: 67-73.

Ballentine C.J., and Burnard P.G., 2002. Production, release, and transport of noble gases in the continental crust. Reviews in Mineralogy and Geochemistry 47 : 481-538. In : Porcelli D., Ballentine C.J., Wieler R. (eds). Noble gases in geochemistry and cosmochemistry. Geochemical Society/Mineralogical Society of America.

Ballouard C., Poujol M., Jolivet M., Boulvais P., Tartèse R., Dubois C., Hallot E., Dabard M.P., Ruffet G., 2015. Geochronological and thermochronological constraints on the Carboniferous magmatism from the Armorican Massif : from the source to the e xhumation. Poster.

Bähr R., Lippolt H.J., Wernicke R.S., 1994. Temperature induced ^{4}He degassing of specularite and botryoidal hematite : a ^{4}He retentivity study. Journal of Geophysical Research 99 : 17695-17707.

Barbarand J., and Pagel M., 2001. Contrôle de la cicatrisation des traces de fission dans les cristaux d'apatites : le rôle de la composition chimique. C.R. Acad. Sci. Paris, Sciences de la Planete 332 : 259-265.

Barbarand J., Hurford T., Carter A., 2003a. Variation in apatite fission-track length measurement : implication for thermal history modeling. Chemical Geology 198 : 77-106.

Barbarand J., Carter A. , Wood I., Hurford T., 2003b. Compositional and structural control of fission-track annealing in apatite. Chemical geology 198 : 107-137.

Baxter E.F., 2010. Diffusion of noble gases in minerals. Reviews in Mineralogy and Geochemistry 72 : 509-557.

Bengston A., Ewing R.C., Becker U., 2012 . He diffusion and closure températures in apatite and zircon : A density functional theory investigation. Geochimica et Cosmochimica Acta 86 : 228-238.

Benaouali M.N.., Frizon de Lamotte D., Roca E., Bracene R., Faure J.L., Sassi W., Roure F., 2006 . Post-cretaceous kinematics of the Atlas and Tell systems in Central Algeria: Early foreland folding and subduction-related deformation.

Berger G.W., York D., 1981. Geothermometry from 40Ar/39Ar dating experiments. Geochimica et Cosmochimica Acta 45 : 795-811.

Bernet M., Brandon M.T., Garver J., Reiners P., Fitzgerald P.G., 2002. Determining the zircon fission-track closure temperature. Cordilleran section – 98th Annual Meeting.

Bernet M., 2009. A field-based estimate of the zircon fission-track closure temperature. Chemical Geology 259 (3-4): 181-189.

Bessin P., Guillocheau F., Robin C., Schroëtter J.M., Bauer H., 2015. Planation surfaces of the Armorican Massif (Western France): denudation chronology of a Mesozoic land surface twice exhumed in response to relative crustal movements between Iberia and Eurasia. Geomorphology 233: 75-91.

Beucher R., Brown R.W., Roper S., Stuart F., Persano C., 2013. Natural age dispersion arising from the analysis of broken crystals. Part II. : Practical application to apatite (U-Th)/He thermochronometry. Geochimica et cosmochimica Acta 120 : 395-416.

Brown R.W., Beucher R., Roper S., Persano C., Stuart F., Fitzgerald P., 2013. Natural age dispersion arising from the analysis of broken crystals. Part I. : Theoretical basis and implications for the apatite (U-Th)/He thermochronometer. Geochimica et Cosmochimica Acta.

Boyce J.W., Hodges K.V., 2001. Chemical variations in the Cerro de Mercado (Durango, Mexico) fluoroapatite : assessing the effect of heterogeneity on a geochronologic standard. EOS Transactions AGU, 82, no. 47, Fall. Meet. Supl., Abstract #V22C-1061.

Calk, L.C., and Naeser C.W., 1973. The thermal effect of a basalt intrusion of fission tracks in quartz monzonite. J. Geol. 81 : 189-198.

Carlson W.D., Donelick R.A., Ketcham R.A., 1999. Variability of apatite fission-track annealing kinetics : I. Experimental results. Am. Mineral. 84 : 1213-1223.

Cherniak D.J., Watson E.B., Thomas J.B., 2009. Diffusion of helium in zircon and apatite. Chemical Geology 268 : 155-166.

Copeland P., Watson E.B., Urizar S.C., Patterson D., Lapen T.J., 2007. Alpha thermochronology of carbonates. Geochimica et Cosmochimica Acta 71 (18): 4488-4511.

Crank J., 1975. The Mathematics of diffusion. Oxford University Press.

Cros A., Gautheron C., Pagel M., Berthet P., Tassan-Got L., Douville E., Pinna-Jamme R., Sarda P., 2014. 4He behaviour in calcite filling viewed by (U-Th)/He dating, 4He diffusion and crystallographic studies. Geochimica et Cosmochimica Acta 125: 414-432.

Damon P.E., Kulp J.L., 1957. Argon in mica and the age of the beryl Mt, N.H. Pegmatite. American Journal of Science 255: 697-704.

Djimbi D.M., Gautheron C., Roques J., Tassan-Got L., Gerin C., Simoni E., 2015. Impact of apatite chemical composition on (U-Th)/He thermochronometry : an atomistic point of view.

Dodson M.H., 1973. Closure temperature in cooling geochronological and petrological systems. Contr. Mineral. and Petrol. 40: 259-273.

Donelick R.A., Ketcham R.A., Carlson W.D., 1999. Variability of apatite fission-track annealing kinetics : II. Crystallographic orientation effects. Am. Mineral. 84 : 1224-1234.

Donelick R.A., O'Sullivan P.B., Ketcham R.A., 2005. Fission-track analysis. Reviews in Mineralogy and geochemistry 58 : 49-94.

Eliott J.C., 1980. Space group and lattice constants of $Ca_{10}(PO_4)_6CO_3$. Journal of Appl. Cryst. 13 : 618-621.

Elliott J.C., Dykes E., and Mackie P.E., 1981. Strcture of bromapatite and the radius of the bromide ion. Acta Cryst. B37 : 435-438.

Farley K.A., Wolf R.A., Silver T., 1996. The effects of long alpha-stopping distances on (U-Th)/He ages. Geochimica et Cosmochimica Acta 60 (21) : 4223-4229.

Farley K.A., Reiners P.W., Newow V., 1999. An apparatus for High-precision helium diffusion measurements from minerals. Anal. Chem. 71 : 2059-2061.

Farley K.A., 2000. Helium diffusion from apatite : general behavior as illustrated by Durango fluoroapatite. Journal of Geophysical Research 105 : 2903-2914.

Farley K.A., 2002. (U-Th)/He dating : techniques and applications. Reviews in Mineralogy and Geochemistry 47 : 819-844.

Fick A., 1855. Uber Diffusion, Annalen der Physik und Chemie 94 : 59-86.

Fleischer R.L., Price P.B., Walker R.M., 1975. Nuclear tracks in solids : principles and applications.

Flowers R.M., 2009. Exploiting radiation damage control on apatite (U-Th)/He dates in cratonic regions. Earth and Planetary Science Letters 277 : 148-155.

Flowers R.M., Ketcham R.A., Shuster D.L., Farley K.A., 2009. Apatite (U-Th)/He thermochronometry using a radiation damage accumulation and annealing model. Geochimica et Cosmochimica Acta 73 : 2347-2365.

Flowers R.M., Kelley S.A., 2011. Interpreting data dispersion and "inverted" dates in apatite (U-Th)/He and fission-track datasets: an example from the US midcontinent. Geochimica et Cosmochimica Acta 75 (18) : 5169-5186.

Fox M. , and Shuster D.L., 2014. The influence of burial heating on the (U-Th)/He system in apatite : Grand Canyon case study. Earth and Planetary Science Letters 397 : 174-183.

Gallagher K., Brown R., Johnson C., 1998. Fission track analysis and its application to geological problems. Annual review of Earth and Planetary Sciences 26 : 519-572.

Gallagher K., Charvin K., Storel N., Sambridge M., Stephenson J., 2009. Markov chain Monte Carlo (MCMC) sampling methods to determine optimal models, model resolution and model choice for Earth Science problems. Marine and Petroleum Geology 26 : 525-535.

Gallagher K., 2012. Transdimensional inverse thermal modeling for quantitative thermochronology. Journal of Geophysical Research 117.

Gautheron C., Tassan-Got L., Barbarand J. , Pagel M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. Chemical Geology 266 : 166-179.

Gautheron C., and Tassan-Got L., 2010. A Monte-Carlo approach to diffusion applied to noble gas/helium thermochronology. Chemical Geology 273 : 212-224.

Gautheron C., Tassan-Got L., Ketcham R.A., Dobson K.A., 2012. Accounting for long alpha-particle stopping distances in (U-Th-Sm)/He geochronology : 3D modeling of diffusion, zoning, implantation, and abrasion. Geochimica et Cosmochimica Acta 96 : 44-56.

Gautheron C., Barbarand J., Ketcham R.A., Tassan-Got L., van der Beek P., Pagel M., Pinna-Jamme R., Couffignal F., Fialin M., 2013. Chemical influence on α-recoil damage annealing in apatite : implications for (U-Th)/He dating. Chemical Geology 351 :
257-267.

Gerin C., Gautheron C., Oliviero E., Bachelet C., Djimbi D.M., Seydoux-Guillaume A.M., Tassan Got L., Sarda P., Roques J., Garrido F., 2017. Influence of damage on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scale. Geochimica et Cosmochimica Acta 197 : 87-103.

Gleadow A.J.W., Duddy I.R., Lovering J.F., 1983. Fission track analysis : a new tool for the evaluation of thermal histories and hydrocarbon potential. The APPEA Journal 23 (1): 93-102.

Green P.F., Duddy I.R., Gleadow A.J.W., Tingate P.R., 1985. Fission-track annealing in apatite : track length measurements and the form of the Arrhénius plot. Nucl. Tracks 10 (3) : 323-328.

Green P.F., Duddy I.R., Gleadow A.J.W., Tingate P.R., Laslett G.M.,1986. Thermal annealing of fission tracks in apatite : 1. A qualitative description. Chemical Geology 59 : 237-253.

Green P.F., 1988. The Relationship between track shortening and fission track age reduction in apatite : combined influences of inherent stability, annealing anisotropy, length bias and system calibration. Earth and Planetary Science Letters 89 (3-4) : 335-352.

Green P.F., Duddy I.R., Laslett G.M., Hegarty K.A., Gleadow A.J.W., Lovering J.F., 1989. Thermal annealing of fission tracks in apatite. 4. Quantitative modelling techniques and extension to geological timescales. Chemical Geology 79 (2) : 155-182.

Green P.F., Crowhurst P.V., Duddy I.R., Japsen P., Holford S.P., 2006. Conflicting (U-Th)/He and fission track ages in apatite : Enhanced He retention, not anomalous annealing behaviour. Earth and Planetary Science Letters 250 : 407-427.

Grimes R.W., and Catlow C.R.A., 1991. The stability of fission products in uranium dioxide. Philosophical transaction of the Royal Society 335 (1639).

Guenthner W.R., Reiners P.W., Ketcham R.A., Nasdala L., Giester G., 2013. Helium diffusion in natural zircon : radiation damage, anisotropy, and the interprétation of zircon (U-Th)/He thermochronology. American Journal of Science 313 : 145-198.

Hendricks B.W.H., and Redfield T.F., 2005. Apatite fission-track (U-Th)/He data from Fennoscandia : an example of underestimation of fission track annealing in apatite. Earth and Planetary Science Letters 236 : 443-458.

Hourigan J.K. Reiners P.W., Brandon M.T., 2005. U-Th zonation-dependent alpha-ejection in (U-Th)/He chronometry. Geochimica et Cosmochimica Acta 69 (13): 3349-3365.

Hughes J.M. and Rakovan J., 1989. Structural variations in natural F, OH, and Cl apatites. Am. Mineral. 74 : 870-876.

Hurford A.J., Green P.F., 1981. A reappraisal of neutron dosimetry and uranium-238 λf values in fission-track dating. Nuclear Tracks 5 (1-2): 53-61.

Hurley P.M., 1954. The helium age method and distribution and migration of helium in rocks. In *Nuclear Geology* (ed. H. FAUL) : 301-329.

Jonckheere R., Mars M., Van den Haute P., Rebetez M., Chambaudet A., 1993. The apatite from Durango, Mexico: analysis of a standard mineral for fission-track dating. Chem. Geol. 103: 141-154.

Jonckheere R., Van den Haute P., Ratschbacher L., 2015. Standardless fission-track dating of the Durango apatite age standard. Chemical Geology 417: 44-57.

Ketcham R.A., Donelick R.A., Carlson W.D., 1999. Variability of apatite fission-track annealing kinetics : III. Extrapolation to geological time scales. Am. Mineral. 84 : 1235-1255.

Ketcham R.A., Donelick R.A., Donelick M.B., 2000. AFTSolve : a program for multi-kinetic modeling of apatite fission-track data. Geological Materials Research 2 (1) :1.

Ketcham R.A., 2003. Observations on the Relationship between crystallographic orientation and biasing in apatite fission-track measurements. Am. Mineral. 88 : 817-829.

Ketcham R.A., 2005. Forward and inverse modeling of low-temperatrue thermochronometry data. Reviews in mineralogy and geochemistry 58 : 275-314.

Ketcham R.A., Carter A., Donelick R.A., Barbarand J. , Hurford A.J., 2007a. Improved modeling of fission-track annealing in apatite. Am. Mineral. 92 : 799-810.

Ketcham R.A., Carter A., Donelick R.A., Barbarand J., Hurford A.J., 2007b. Improved measurement of fission-track annealing in apatite using c-axis projection. Am. Mineral. 92 : 789-798.

Ketcham R.A., Gautheron C., Tassan-Got L., 2011. Accounting for long alpha-prticle stopping distances in (U-Th-Sm)/He geochronology : Refinement of the Baseline case. Geochimica et Cosmochimica Acta 75 : 7779-7791.

Ketcham R.A., Guenthner W.R., Reiners P.W., 2013. Geometric analysis of radiation damage in zircon, and its implications for helium diffusion. Am. Mineral. 98 : 350-360.

Ketcham R.A., 2015. Technical note : Calculation of stoichiometry from EMP data for apatite and other phases with mixing on monovalent anion sites. Am. Mineral. 100 : 1620-1623.

Laslett G.M., Green P.F., Duddy I.R., Gleadow A.J.W., 1987. Thermal annealing of fission tracks in apatite. 2. A quantitative analysis. Chemical Geology 65 : 1-13.

Li .W. , Wang L., Trautmann C., Ewing R.C., 2011. Thermal annealing mechanisms of latent fission tracks : apatite vs. Zircon. Earth and Planetary Science Letters 302(1-2) : 227-235.

Lippolt H.J., Wernicke R.S., Boschmann W., 1993. ^{4}He diffusion in specular hematite. Phys. Chem. Min. 20 : 415-418.

Lippolt H.J., Wernicke R.S., Bähr R., 1995. Paragenetic specularite and adularia (Elba, Italy) : concordant (U+Th)-He and K-Ar ages. Earth and Planetary Science Letters 132 : 43-51.

Luo X., Wang B., Zheng Y., 2009. First-principles study on energetics of intrinsic point defects in $LaAlO_3$. Physical review B. 80, 104115.

Medaouri M., Deverchère J., Graindorge D., Bracene R., Badji R., Ouabadi A., Yelles K., Bendiab F., 2014. The transition from Alboran to Algerian basins (Western Mediterranean Sea): chronostratigraphy, deep crustal structure and tectonic evolution at the rear of a narrow slab rollback system. Journal of geodynamics 77: 186-205.

McDougall I., and Harrison T.M., 1999. Geochronology and thermochronology by the ^{40}Ar/^{39}Ar method. 2d ed., Oxford University Press, New York.

McDowell F.W., McIntosh W.C., Farley K.A., 2005. A precise ^{40}Ar/^{39}Ar reference age for the Durango apatite (U-Th)/He and fission-track dating stnadard. Chemical Geology 214 (3) : 249-263.

Meesters A.G.C.A., and Dunai T.J., 2002a. Solving the production-diffusion equation for finite diffusion domains of various shapes. Part I : Implications for low-temperature (U-Th)/He thermochronology. Chemical Geology186 : 333-344.

Meesters A.G.C.A., and Dunai T.J., 2002b. Solving the production-diffusion equation for finite diffusion domains of various shapes. Part II: Application to cases with α-ejection and non homogeneous distribution of the source. Chemical Geology 186 : 347-363.

Meitner L., Hahn O., Strassmann F., 1937. Über die Umwandlungsreihen des Urans, die durch Neutronenbestrahlung erzeugt werden. Zeitschrift für physik 106 (3-4): 249-270.

Meitner L., Frisch O.R., 1939. Products of the fission of the uranium Nucleus. Nature 143 : 471-472.

Miro S., Studer F., Costantini J-M., Haussy J., Trouslard P., Grob J-J., 2006. Effect of composition on helium diffusion in fluoroapatites investigated with nuclear réaction analysis. Journal of nuclear materials 355 : 1-9.

Naeser C.W., and Faul H., 1969. Fission-track annealing in apatite and sphene. Journal of Geophysical Research74 : 705-710.

Naeser C.W., and Forbes R.B., 1976. Variation of fission track ages with depth in two deep drill holes. Trans. Amer. Geophys. Union 57, 353.

Ouchani S., Dran J-C., Chaumont J., 1997. Exfoliation and diffusion following hélium ion implantation in fluoroapatite : implications for radiochronology and radioactive waste. Applied Geochemistry 13 (6) : 707-714.

Price P.B., and Walker R.M., 1962a. Observations of charged-particle tracks in solids. Journal of Applied Physics 33, 3407.

Price P.B., and Walker R.M., 1962b. Chemical eching of charged-particle tracks in solids. Journal of Applied Physics 33, 3400.

Price P.B., and Walker R.M., 1963. Fossil tracks of charged particles in mica and the age of minerals. Journal of Geophysical Research 68 : 4847-4862.

Ravenhurst C.E., Roden-Tice M.K., Miller D.S., 2003. Thermal annealing of fission tracks in fluoroapatite, chloroapatite, manganonapatite, and Durango apatite: experimental results. Can. J. Earth Sci. 40 : 995-1007.

Reiners P.W., and Farley K.A., 1999. Helium diffusion and (U-Th)/He thermochronometry of titanite.

Reiners P.W., and Farley K.A., 2001. Influence of crystal size on apatite (U-Th)/He thermochronology : an example from the Bighorn Mountains, Wyoming. Earth and Planetary Science Letters 188 : 413-420.

Reiners P.W., Farley K.A., Hickes H.J., 2002. He diffusion and (U-Th)/He thermochronometry of zircon : initial results from Fish Canyon Tuff and Gold Butte.

Reiners P.W., Zhou Z., Ehlers T.A., Xu C., Brandon M.T., Donelick R.A., Nicolescu S., 2003. Post-orogenic evolution of the Dabie Shan, Eastern China, from (U-Th)/He and fission-track thermochronology. American Journal of Science 303 : 489-518.

Reiners P.W., Spell T.L., Nicolescu S., Zanett K.A., 2004. Zircon (U-Th)/He thermochronometry : He diffusion and comparisons with 40Ar/39Ar dating. Geochimica et cosmochimica Acta 68 (8) : 1857-1887.

Reiners P.W., Ehlers T.A., Zeitler P.K., 2005. Past, present, and future of thermochronology. Reviews in Mineralogy and Geochemistry 58 :1-15.

Reiners P.W., and Nicolescu S., 2006. Measurement of parent nuclides for (U-Th)/He thermochronometry by solution sector ICP-MS. ARHDL Report.

Rutherford E., 1905. Present problems in radioactivity. Pop. Sci. Monthly May : 1-34.

Rutherford E., Soddy F., 1902. The cause and nature of radioactivity I, II. Philosophical Magazine IV, 370-396, 569-585.

Shuster D.L., Farley K.A., Sisterson J.M., Burnett D.S., 2003. Quantifying the diffusion kinetics and spatial distribution of radiogenic ^{4}He in minerals containing proton-induced ^{3}He. Earth and Planetary Science Letters 217 :19-32.

Shuster D.L., Vasconcelos P.M., Hem J.A., Farley K.A., 2005. Weathering geochronology by (U-Th)/He dating of goethite. Geochimica et Cosmochimica Acta 69 (3) : 659-673.

Shuster D.L., Flowers R., Farley K.A., 2006. The influence of natural radiation damage on helium diffusion kinetics in apatite. Earth and Planetary Science Letters 249 : 148-161.

Shuster D.L., and Farley K.A., 2009. The influence of artificial radiation damage and thermal annealing on helium diffusion kinetics in apatite. Geochimica et Cosmochimica Acta 73 : 183-196.

Stockli D.F., Farley K.A., Dumitru T.A., 2000. Calibration of the apatite (U-Th)/He thermochronometer on an exhumed fault block, White Mountains, California. Geology 28(11): 983-986.

Strutt R.J., 1908. Helium and radio-activity in rare and common minerals. Proceedings of the royal Society of London 80 (542) : 572-594.

Valla P., Shuster D.L., Van der Beek P., 2011. Significant increase in relief of the European Alps during mid-Pleistocene glaciations. Nature Geoscience 4: 688-692.

Valla P., Van der Beek P., Shuster D.L., Braun J., Herman F., Tassan-Got L., Gautheron C., 2012. Late neogene exhumation and relief development of the Aar and Aiguilles Rouges massifs (Swiss Alps) from low-temperature thermochronology modeling and 4He/3He thermochronometry. Journal of Geophysical Research 117.

Valla P., Rahn M., Shuster D.L., Van der Beek P., 2016. Multi-phase late-Neogene exhumation history of the Aar massif, Swiss central Alps. Terra Nova28: 383-393.

Vermeesch P., and Tian Y., 2014. Thermal history modeling : HeFTy vs. QTQt. Earth-Science Reviews 139 : 279-290.

Warnock A.C., Zeitler P.K., Wolf R.A., Bergman S.C., 1997. An evaluation of low-temperature apatite U-Th/He thermochronometry. Geochimica et Cosmochimica Acta 61 (24) : 5371-5377.

Watson E.B., and Baxter E.F., 2007. Diffusion in solid-Earth systems. Earth and Planetary Science Letters 253 : 307-327.

Watson E.B., and Dohmen R., 2010. Non-traditional and emerging methods for characterizing diffusion in minerals and mineral aggregates. Reviews in Mineralogy and Geochemistry 72 : 61-105.

Willett C.D., Fox M., Shuster D.L., 2017. A helium-based model for the effects of radiation damage annealing on helium diffusion kinetics in apatite. Earth and Planetary Science Letters 477: 195-204.

Wolf R.A., Farley K.A., Silver L.T., 1996. Helium diffusion and low température thermochronometry of apatite. Geochimica et Cosmochimica Acta 60 : 4231-4240.

Wolf R.A., Farley K.A., Kass D.M., 1998. Modeling of the temperature sensitivity of the apatite (U-Th)/He thermochronometer. Chemical Geology 148 : 105-114.

Young E.J., Myers A.T., Munson E.L., Conklin N.M., 1969. Mineralogy and geochemistry of fluoroapatite from Cerro de Mercado, Durango, Mexico. U.S. Geol. Surv. Prof. Pap. 650-D, D84-93.

Zeitler P.K., Herczeg A.L., Mc Dougall I., Honda M., 1987. U-Th-He dating of apatite : a potential thermochronometer. Geochimica et Cosmochimica Acta 51 : 2865-2868.

Ziegler J.F., 1977. The stoppinf and range of ions in matter. Pergamon, New York.

Ziegler J.F., Biensack J.P., Litmark U., 1985. The stopping and range of ions in solids. Pergamon, New York.

Ziegler J.F., Ziegler M.D., Biensak J.P., 2008. SRIM : the stopping and range of ions in matter. cds.cern.ch

Chapitre 2 : Méthodologie et techniques analytiques

1. Introduction

De nombreuses techniques analytiques ont été mises en œuvre au cours de cette thèse dans le but de :

(i) réaliser des données de thermochronologie (U-Th-Sm)/He sur apatite,

(ii) mesurer la chimie des grains d'apatite, et

(iii) caractériser l'endommagement cristallin et la pétrologie des roches contenant les apatites.

Parmi les méthodes utilisées, on peut citer la microscopie (optique et électronique), la spectrométrie de masse des gaz rares, la spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif (ICP-MS), la spectroscopie rétrodiffusée de Rutherford (RBS), et la microsonde électronique. Nous exposons ici chacune d'entre elles, et détaillons leurs fondements théoriques ainsi que les réglages et paramètres utilisés.

La première étape est l'échantillonnage des roches qui ont servi à la thèse. Une première équipe, composée de Yves Missenard, Cécile Gautheron, et Julien Beucher, a collecté les échantillons du Massif Armoricain en 2010. L'échantillonnage des roches du Cap Bougaroun a été effectué grâce à la collaboration des collègues Algériens Fatiha Abbassene, Aziouz Ouabadi, et Nachida Abdallah. Enfin, les échantillons des Alpes Suisses avaient été collectés antérieurement (en 2010) par les équipes de Pierre Valla, Peter van der Beek, et collaborateurs.

Après cette collecte des échantillons, les lames minces polies des échantillons ont été réalisées au laboratoire Géosciences Paris Sud par Jean-Pierre Vilotte et Valérie Godard. Une étude pétrographique en microscopie optique de ces lames minces a été réalisée, puis les apatites ont été isolées selon les méthodes usuelles de séparation minérale : broyage, séparation chimique au bromoforme, séparation magnétique, puis tri optique sous la loupe binoculaire. Concernant les apatites des Alpes Suisses, elles ont été sélectionnées à partir d'une poudre de minéraux (apatite, zircon), provenant des études réalisées par Pierre Valla et Meinhert Rahn. Pour ces échantillons, nous n'avions donc pas de lames minces car l'étape de broyage avait déjà été réalisée, et la dernière étape de datation par (U-Th-Sm)/He a été effectuée au sein de Géosciences Paris Sud.

Les données AFT sur le Trégor, et l'Algérie ont été réalisées au sein de Geosciences Paris sud par Jocelyn Barbarand et Claire Boukari. Concernant les Alpes Suisses, ce travail avait déjà été fait par Rahn (1994, 2005) et publié par Valla et al. (2016). D'autre part, la composition chimique des apatites (majeurs, traces, éléments des terres rares) du Trégor et des Alpes Suisses a été analysée à l'ICP-MS respectivement au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) à Gif/Yvette et au laboratoire Géosciences Paris Sud (GEOPS).

Concernant la caractérisation de l'endommagement de la structure cristalline, les manipulations ont été effectuées sur des macro-cristaux d'apatite de Durango centimétriques. Le but des expériences est d'observer à l'échelle sub-micrométrique les défauts cristallins engendrés par une implantation d'atomes d'hélium ou d'or, et de caractériser/quantifier les déplacements atomiques. Pour ce qui est de l'observation, nous avons utilisé la microscopie électronique à transmission (MET) à la faculté des Sciences de Lyon, en collaboration avec Anne-Magali Seydoux-Guillaume de l'Université Saint-Etienne. Cette technique permet de fournir des images des matériaux jusqu'à l'échelle de l'angström (0,1 nm), et d'observer la

structure des rangées atomiques dont l'empilement constitue le cristal. Quant à la caractérisation des défauts (vacances ou déplacements atomiques), nous avons utilisé la spectroscopie rétrodiffusée de Rutherford canalisée (RBS/C) au Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM) à Orsay sur la plateforme Joint Accelerators for Nano-science and NUclear Simulation (JANuS) avec l'aide de Cyril Bachelet et Frederico Garrido. Cette technique permet de détecter les défauts atomiques en quantifiant l'énergie rétrodiffusée après focalisation d'un faisceau d'ions incident entre les rangées atomiques. Le protocole de préparation des échantillons a été inspiré de celui du travail de thèse d'Ouchani (1997 au CSNSM), qui a également préparé des cristaux d'apatite pour implantation afin d'étudier la diffusivité de l'hélium dans les défauts. Nous détaillerons tous les protocoles analytiques dans ce chapitre. Ces techniques sont plus largement discutées dans le chapitre 6 sur la caractérisation des défauts dans l'apatite.

2. Séparation des apatites

Les apatites ont été extraites des échantillons par un protocole usuel. Les granitoïdes ont d'abord été broyés dans un broyeur à mâchoires et le broyât a été tamisé. La fraction moyenne (63 μm < taille < 200 μm) est utilisée pour le tri des apatites. Les apatites ont été séparées des autres minéraux en deux étapes classiques par : (i) sélection des minéraux lourds par séparation densimétrique au bromoforme (Ewing, 1931), puis (ii) sélection de la fraction non magnétique par un séparateur Frantz (Samuel, 1936).

La sélection des apatites au sein de cette poudre est ensuite effectuée sous la loupe binoculaire (Olympus SZX12, grossissement ×145). Ce tri est une étape fondamentale du protocole d'analyse. Seuls les grains d'apatite présentant un caractère automorphe (forme hexagonale) ont été sélectionnés dans la poudre. D'autre part, leur épaisseur et leur forme sont bien distinguables de celles des zircons, généralement rectangulaires ou aplatis, dont les bords

sont à angle droit. Ces minéraux n'ont pas le même réseau cristallin. Les seuls cristaux sélectionnés sont les grains automorphes, dont la forme est bien caractéristique (en forme de prisme hexagonal, comportant éventuellement une ou deux pyramides terminales). Les bords de l'apatite apparaissent bien visibles, en noir, comme illustré figure II-1 sur des cristaux standards de FOR 3 (standard interne), tandis que les sections des zircons sont perpendiculaires et donc moins nettes.

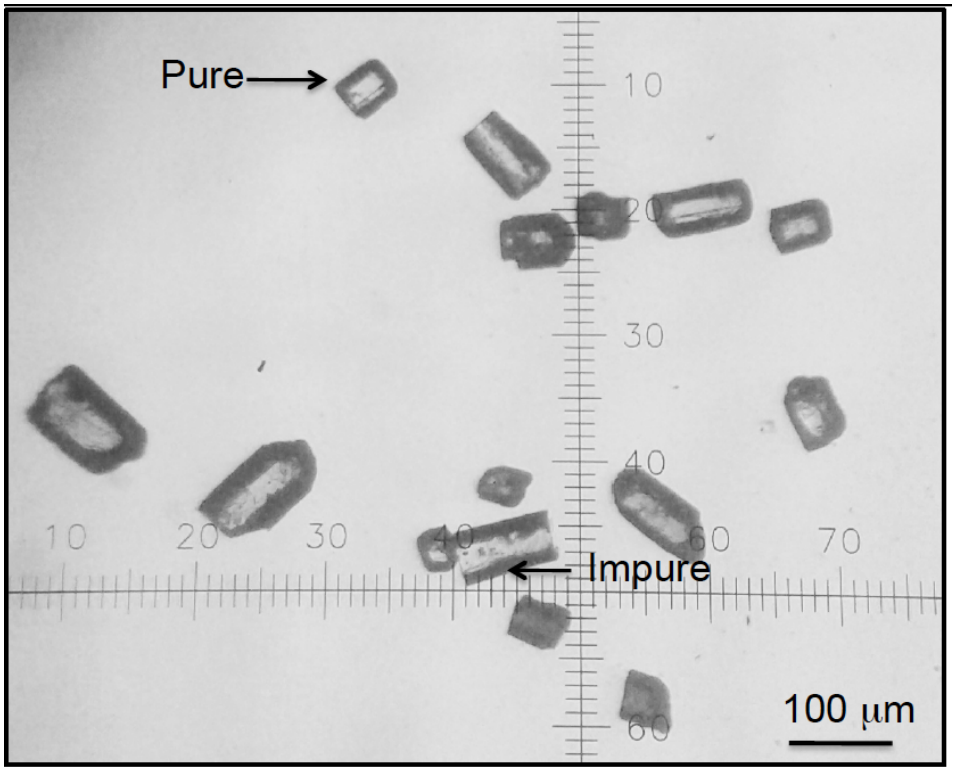


Figure II-1 : Photographie de cristaux d'apatites standard FOR3 (standard interne)

Observation à la loupe binoculaire, grossissement maximal (×145). La barre d'échelle permet la mesure des dimensions des cristaux : chaque graduation mesure 12.5 µm). Les apatites qui contiennent des inclusions minérales ou fluides ne sont pas sélectionnées pour la datation AHe. D'autre part, les apatites trop petites (comme celle à gauche de l'apatite impure) ne sont pas non plus choisies.

Pour l'analyse trace de fission, toutes les apatites peuvent être sélectionnées. On choisit donc généralement une centaine d'apatites par échantillon pour les coller sur un plot trace de fission. Les analyses AHe sont beaucoup plus restrictives, et les apatites datables sont beaucoup moins nombreuses. Les 3 principaux critères de sélection sont :

- la taille et la morphologie des cristaux. Pour les roches ignées, seuls les cristaux automorphes sont sélectionnés (figure II-1). Leur taille doit être suffisante pour que l'erreur sur le facteur de correction ne soit pas supérieure à 40% (Ehlers et Farley, 2003). Pour cela, l'épaisseur des cristaux doit être supérieure à 72 microns, valeur qui correspond à 4 fois la distance moyenne d'éjection.
- l'absence d'inclusions fluides et minérales visibles dans l'apatite qui peuvent apporter une source non négligeable d'He (figure II-1). Les inclusions minérales (thorite, uraninite, ou zircon) par exemple, contiennent des quantités importantes d'U, Th, et Sm, et apportent une quantité importante d'He radiogénique (e.g. Vermeesch et al., 2007).
- l'absence de fractures, qui altèrent la taille du domaine de diffusion.

Afin de vérifier ces trois critères, quelques gouttes d'éthanol sont versées sur les grains, pour les observer en lumière polarisée dans le noir. Les inclusions minérales dans les cristaux apparaissent alors en blanc lorsque le reste du cristal est éteint. Ainsi, l'on peut sélectionner uniquement les grains purs, dépourvus de toute inclusion minérale ou fluide (figure II-1).

La connaissance exacte de la géométrie des cristaux d'apatite est fondamentale pour l'interprétation des âges (U-Th-Sm)/He sur apatite. En effet, pour corriger les âges de la perte d'hélium par éjection, le facteur d'éjection F_T doit être calculé, comme expliqué au chapitre 1

(Ketcham et al., 2011). Les dimensions exactes de l'apatite sont donc mesurées finement grâce aux graduations de la loupe binoculaire (longueur, largeur, épaisseur). Pour tous les grains, une représentation de la morphologie et de la taille des grains sélectionnés est sauvegardée sur une feuille de manipulation. On utilise également la géométrie de la terminaison pyramidale (0, 1, ou 2 pyramides observables). La masse des échantillons, le rayon de la sphère équivalente, et le facteur F_T peuvent alors être déterminés via l'interface logicielle QtFT (Gautheron et al., 2012) décrite au chapitre 1.

3. Analyse des traces de fission

Après la séparation des apatites, une centaine de grains d'apatite sont montés dans une résine d'époxy. Après polissage, les apatites sont attaquées à l'acide nitrique (HNO_3 à 5 mol/L) pendant 20 secondes à 20 ±1°C (protocole de Green et al., 1986, utilisé par la plupart des laboratoires). L'on dispose ensuite une feuille de muscovite à faible concentration d'uranium, constituant le détecteur externe (Gleadow et Lovering 1977 ; Gleadow 1981). La technique de calibration des dosimètres est décrite dans Hurford et Green (1981a), et les standards de verre utilisés sont discutés dans Hurford et Green (1981b). Les échantillons sont empilés, avec trois standards de Durango : deux aux extrémités, et une au centre de la pile. Cette navette est alors envoyée à l'irradiation au réacteur de Garching de Munich, avec une fluence de 5×10^{15} neutrons/cm^2.

Après cette étape, les détecteurs sont retirés, et les traces induites par l'irradiation sont révélées par attaque chimique à l'HF (40%) pendant 20 minutes à 20±1°C. Les détecteurs et les grains sont déposés sur une lame de verre pour le comptage. Les traces sont mesurées et comptées sous un microscope au grossissement ×1250. Ce comptage a été effectué par Jocelyn Barbarand pour les échantillons de Bretagne, et par Claire Boukari pour les échantillons de Cap Bougaroun. Chacun d'eux a utilisé son facteur zêta.

4. Analyse de la concentration en hélium

4.1 Préparation des échantillons

Les grains d'apatite datables sont placés dans des capsules de platine, afin de pouvoir être dégazés et de déterminer leur concentration en hélium. Le platine est en effet adéquat car ce matériau est malléable, ce qui permet de faire facilement des capsules à partir de tubes (figure II-2). Pour cela, l'on ferme un côté du tube grâce à une pince fine (figure II-2B, II-2C) pour y introduire une apatite (figure II-2D). Enfin, l'on referme le deuxième côté (figure II-2E), afin d'obtenir une capsule bien plane (figure II-2F). De plus, ce matériau est très pur et dépourvu d'He, U, Th, et Sm. Enfin, le chauffage de ce matériau par le laser est homogène car le platine conduit bien la chaleur.

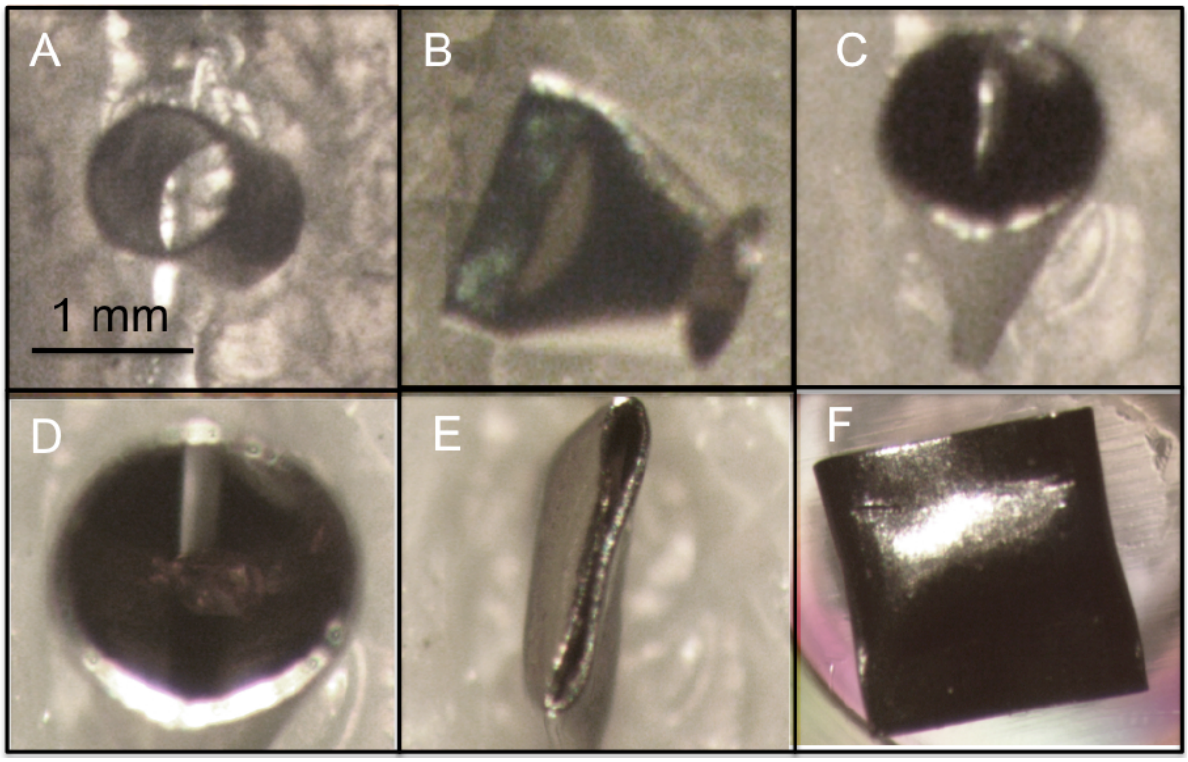


Figure II-2 : Etapes d'encapsulation d'une apatite

Photographies des étapes d'encapsulage d'une apatite prises sous la loupe binoculaire. A : Tube de platine. B et C : Capsules ouvertes. D : Introduction d'une apatite dans la capsule. E : Fermeture de la capsule. F : Capsule prête pour le dégazage.

4.2 Extraction et analyse de l'hélium

La ligne d'extraction, de purification, et d'analyse d'hélium de GEOPS, dédiée à la thermochronologie (U-Th)/He a été utilisée pour les analyses des apatites présentées dans cette thèse. Cette ligne est décrite également dans la thèse de Cros (2012). Un porte-échantillon en cuivre contient 25 positions, dans lesquels on peut disposer une à une les capsules de platine contenant un grain d'apatite (figure II-3). Les capsules sont placées de façon identique, parallèlement au porte-échantillon et sans inclinaison, afin que le chauffage soit homogène. Ce porte-échantillon est posé sur une platine mobile, pilotée selon deux axes X et Y, surmontée d'une fenêtre en saphir (figure II-3). L'avantage de ce matériau est qu'il laisse passer intégralement le faisceau laser (dans le domaine de l'infrarouge) et ne laisse pas diffuser l'He présent dans l'atmosphère.

Figure II-3 : Photographie du porte échantillon et de la fenêtre de saphir

Le porte-échantillon contient 24 capsules de platine contenant des échantillons, et 1 trou contenant une capsule vide (blanc).

Au-dessus de cette fenêtre se situent : (i) un laser infrarouge de longueur d'onde 1 μm, qui permet de chauffer la capsule et (ii) une caméra associée à une optique, reliée à un ordinateur, afin de pouvoir suivre la manipulation en temps réel et de visualiser la couleur de la capsule lors du chauffage (figure II-4). La température de la capsule est obtenue par traitement d'image, paramétrée par rapport à la couleur de la capsule selon les lois de rayonnement du corps noir. Le protocole de dégazage des apatites a été élaboré au laboratoire de façon à libérer les gaz de l'échantillon par chauffage en une unique étape de 5 minutes. La température choisie à cet effet est de 1050±50°C. Une deuxième étape de chauffage permet de vérifier que tout le gaz a bien été libéré. En l'absence d'inclusion, la quantité d'He dégazée lors de cette deuxième étape est similaire à celle du blanc.

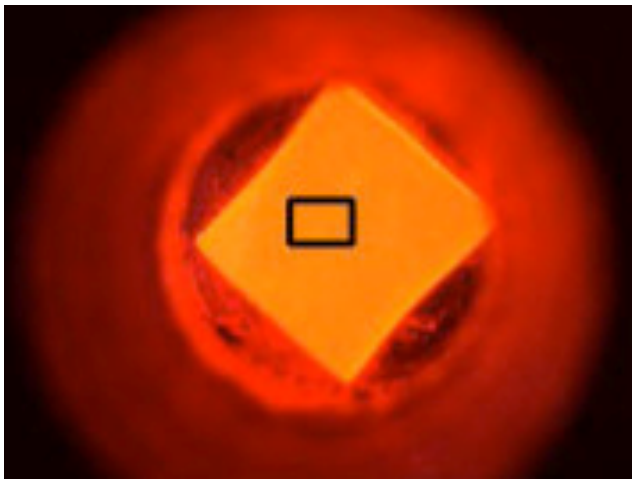


Figure II-4 : Photographie d'une capsule de platine lors d'un chauffage

L'image de la capsule est prise en direct au cours du chauffage par une caméra et l'on observe que le chauffage est bien homogène sur toute la capsule.

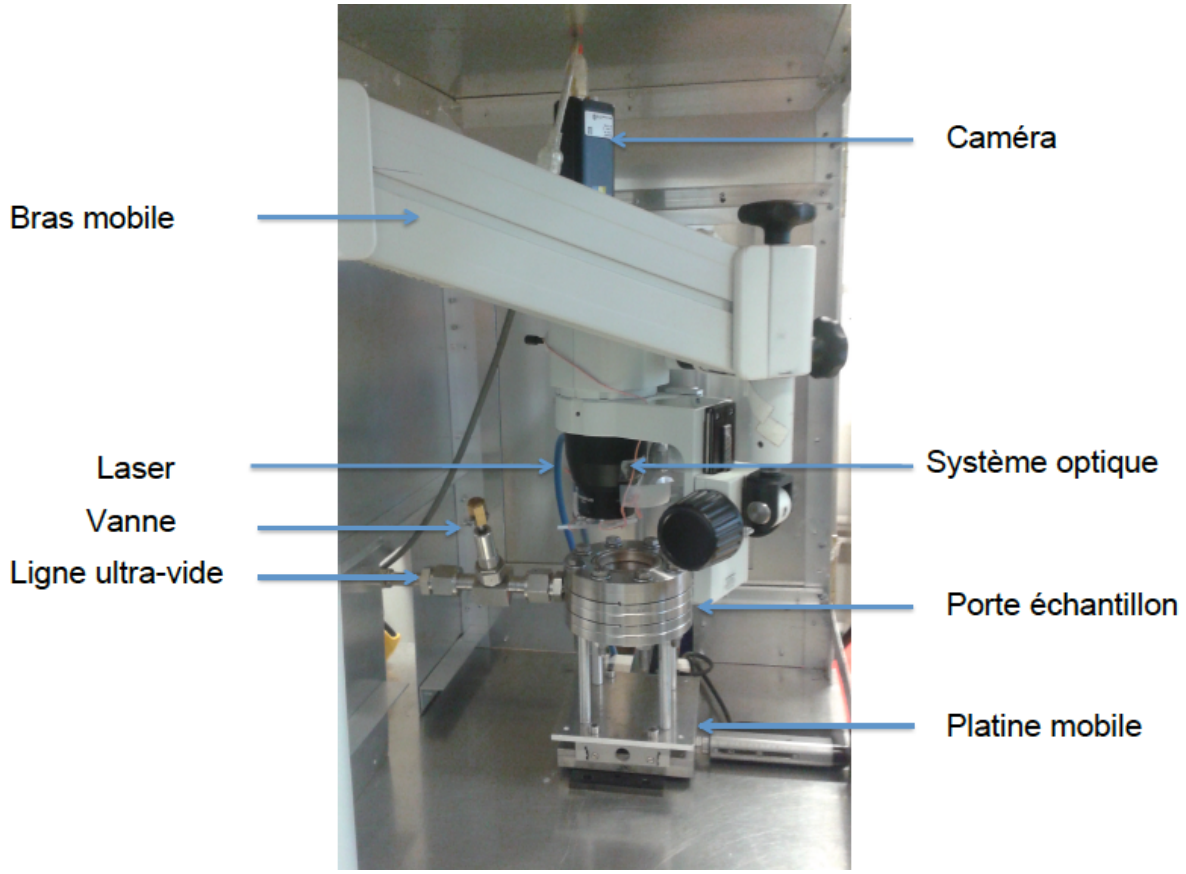


Figure II-5 : Entrée de la ligne hélium

Ceci est le sas d'entrée de la ligne hélium. Le porte-échantillon est placé sur une platine mobile, relié à la ligne ultra-vide par une vanne. Un système optique et une caméra permettent de filmer le chauffage en direct.

L'ensemble porte-échantillon/fenêtre de saphir/laser/caméra est compris dans une boîte de sécurité laser, et connecté à la ligne à ultra-vide (figure II-5). Cette ligne est constituée d'éléments en acier-inox, raccordés par des vannes. Le système est relié à : (i) deux pompes à vide (une pompe turbo-moléculaire et une pompe ionique), assurant un vide de 10^{-9} mbar, (ii) un getter, constituant un piège chimique adsorbant spécifiquement certains gaz comme H_2, H_2O, CO_2 et (iii) trois pièges froids constitués de charbon actif (CH1, CH2, CH3) refroidis à la température de l'azote liquide, assurant la purification physique des gaz et piégeant les gaz majeurs comme l'Ar. Le plan de la ligne est présenté page suivante (figure II-6), et sa photographie est montrée en figure II-7.

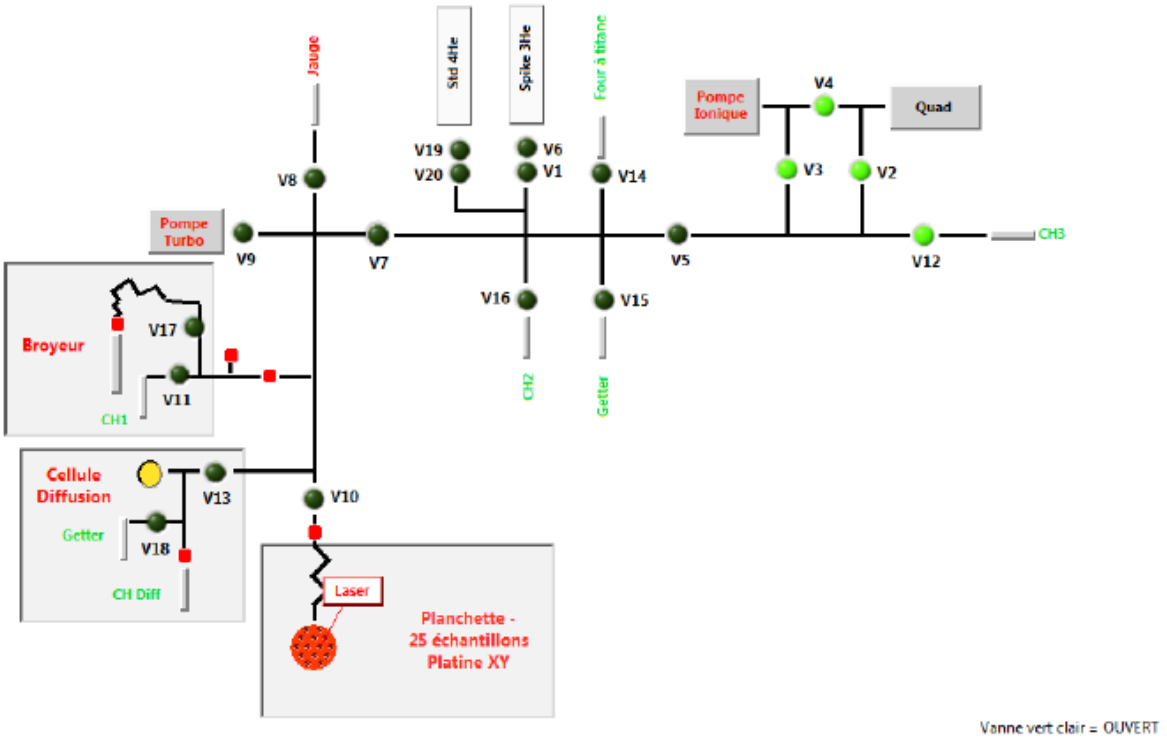


Figure II-6 : Copie d'écran du programme de pilotage des expériences, où les différents éléments de la ligne sont représentés.

La ligne est reliée à deux pompes et une jauge permettant de réguler la pression, trois pièges (charbons CH) et un getter qui retiennent les gaz, et une bombonne de ^{3}He et de standard que l'on mélange aux gaz issus des échantillons. Le quadrupôle permet d'analyser la composition des gaz purifiés.

Les pièges physiques et chimiques permettent d'éliminer pratiquement l'ensemble des gaz libérés par l'échantillon et le chauffage de la planchette en cuivre, à l'exception de l'hélium que l'on souhaite analyser. Les getters (SAES) sont des tubes de petite taille qui contiennent un alliage métallique à base de Zr et Al, et qui, lorsqu'ils sont chauffés, et une fois le vide effectué, piègent les gaz résiduels par adsorption et chimisorption. A la fin de la manipulation, les charbons actifs refroidis à la température de l'azote liquide sont désorbés.

La pompe turbomoléculaire permet d'atteindre un vide jusqu'à 10^{-7} mbar, et la pompe ionique fonctionne à ultra vide, à des pressions jusqu'à 10^{-9} mbar.

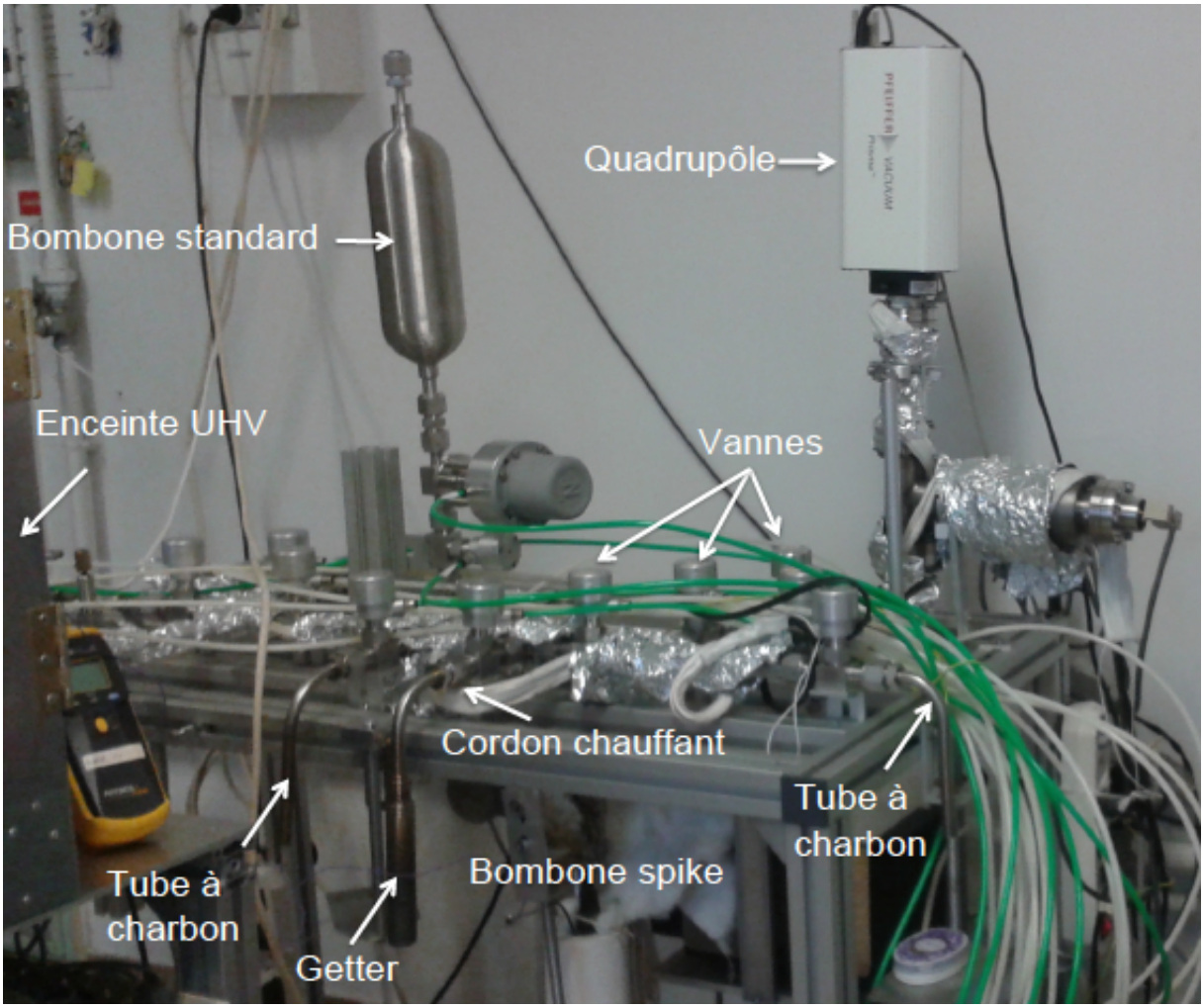


Figure II-7 : Photographie de la ligne hélium

La ligne hélium contient de nombreuses vannes, deux tubes à charbons, un getter, est alimentée par des bombonnes de standard et de spike, et se termine par l'analyse au quadrupôle. L'ensemble de la ligne est mis sous vide à l'aide de deux pompes (non visibles sur la photographie).

Un spectromètre de masse quadrupolaire prisma QMS 100 Pfeiffer est connecté à la ligne et permet la mesure de différents gaz tel que l'H_2, ^3He, ^4He, H_2O, Ar, CO_2 dans le gaz purifié. Ces concentrations sont affichées sur le tableau de bord (figure II-9). Les gaz purifiés sont ionisés, les ions sont accélérés, séparés dans l'analyseur quadripolaire, puis focalisés sur les détecteurs. Le dispositif est constitué d'une source, d'un analyseur quadripolaire, et d'un multiplicateur d'électrons, et les ions sont mesurés à l'aide du multiplicateur d'électrons. Le détecteur mesure un courant, dont l'ampérage est fonction de la pression du gaz.

4.3 Blancs et standards

Des standards externes, comme les apatites de Durango sont analysés régulièrement afin d'évaluer la reproductibilité des âges. Pour ces standards, l'âge hélium est connu : il est de 31.4±0.2 Ma (McDowell et al., 2005). Un exemple de la reproductibilité et de la justesse de nos analyses est reporté dans la figure II-8. Ces valeurs de standards sont bonnes : elles sont très reproductibles (à 1,2 Ma près, soit un écart-type de 4%), et l'âge obtenu est égal à l'âge standard (31±1.2 Ma). La détermination de la concentration en ^{4}He est réalisée par dilution isotopique, en ajoutant un volume connu de ^{3}He (« spikage »).

D'autre part, des blancs sont analysés avant chaque série d'échantillons. Ces blancs correspondent aux gaz relargués par le chauffage d'une capsule de platine vide (sans apatite) avec le même protocole de chauffage qu'un échantillon. Si le blanc est correct, il ne contient quasiment pas d'hélium mis à part le ^{4}He contenu dans la bonbonnne du spike de ^{3}He. Les blancs ont une concentration en ^{4}He proche de 0,15 nccSTP. Cette unité est le volume (en cm^{3}) d'hélium exprimé dans les conditions standard de pression et de température.

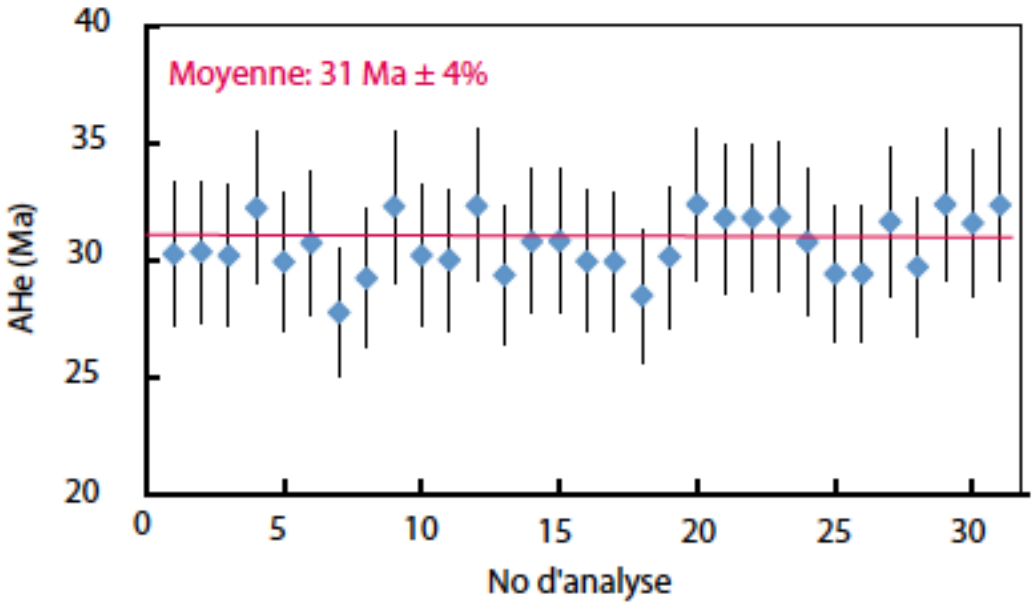


Figure II-8 : Reproductibilité des standards de Durango

Analyses effectuées au cours de la série d'échantillons du Cap Bougaroun. Ce graphique montre que les âges AHe des standards Durango sont reproductibles au cours de la série d'analyses, et sont justes : 31.02 ±1.2 Ma est indistingable de la valeur standard référencée par Mc Dowell et al. (2004).

Plusieurs gaz (H_2, CO_2, ^3He, Ar) sont également analysés à l'aide du quadrupôle, afin de vérifier l'absence d'éventuelles contaminations. La figure II-9 présente l'interface du programme d'analyse des échantillons, lors de l'analyse d'un blanc. L'image de la capsule rouge permet de vérifier que le chauffage a bien eu lieu au centre. Le rapport $^4He/^3He$ (donné en le multipliant par 100 pour une facilité de lecture) est relativement faible (0,018±0.002) par rapport à celui mesuré dans un échantillon (de l'ordre de 1,1±0,05 par exemple) car il s'agit d'un blanc. La faible quantité de ^4He dans le blanc implique en effet un rapport $^4He/^3He$ faible si la quantité de spike de ^3He est donnée. Néanmoins, ce rapport $^4He/^3He$ varie en fonction de la quantité de gaz ^3He restant dans la bombonne de spike. L'analyse du blanc suivant donnera donc un rapport $^4He/^3He$ plus élevé que celui-ci. Les valeurs obtenues en H_2, ^4He, Ar, CO_2 correspondent aux nombres encadrés. Elles sont faibles, mais sont exprimées en ampère (et non en nccSTP/g) et ne sont pas calibrées.

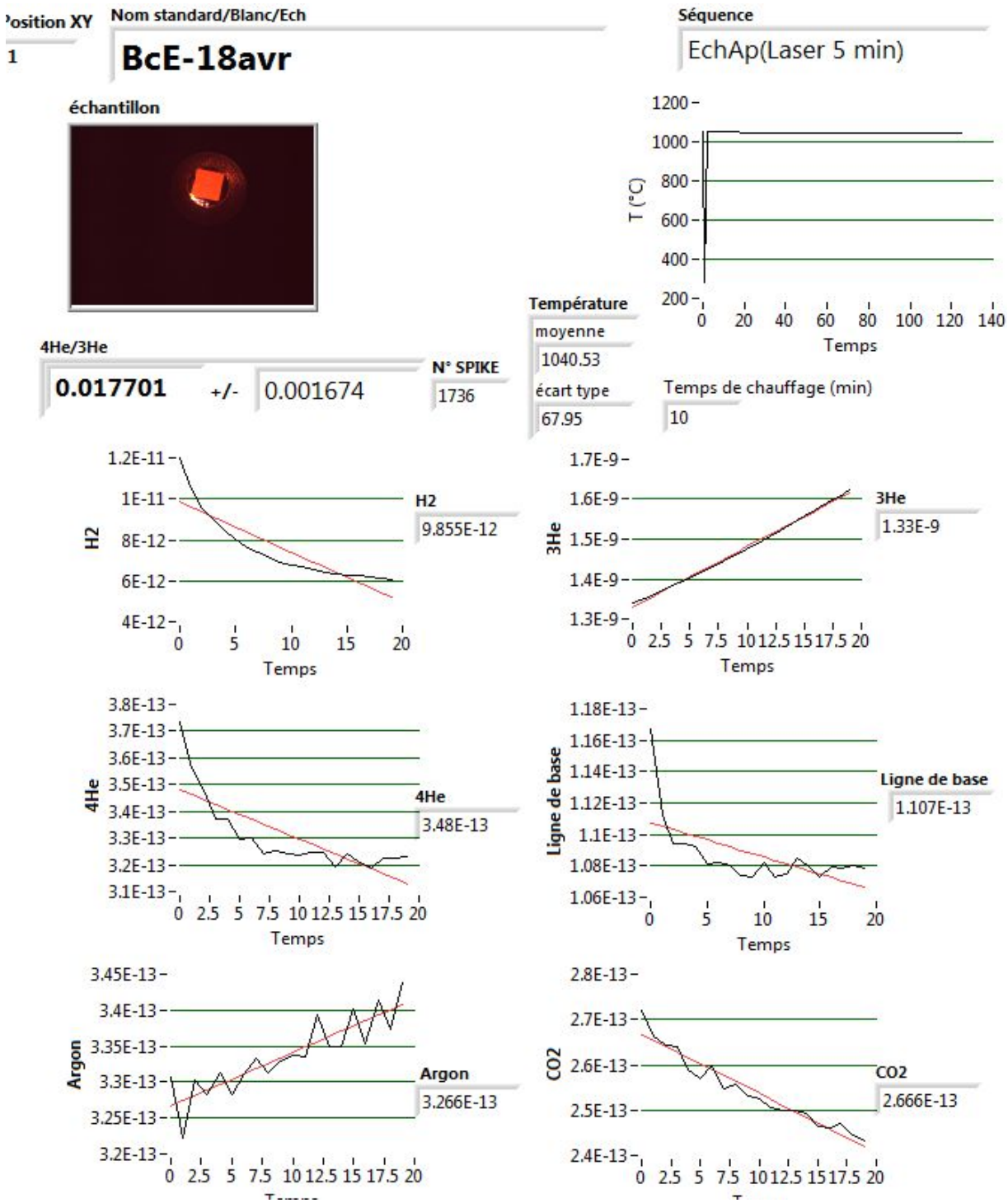


Figure II-9 : Interface résumant pour chaque analyse les différents résultats

La photo de la capsule, prise avec la caméra, permet de vérifier que le chauffage est homogène et à la bonne température. Le premier cadre indique la valeur de $^4He/^3He$, qui doit être d'environ 0.01 à 0.02 pour les blancs. Notez que l'on multiplie le rapport $^4He/^3He$ par un facteur 100 pour rendre la lecture plus simple. Puis pour chaque gaz choisi (H_2, ^3He, ^4He, Ar, CO_2), l'interface présente un graphique de l'évolution de la composition avec le temps de mesure, et une valeur encadrée, qui correspond à l'ampérage extrapolé linéairement au temps d'entrée du gaz. Pour les blancs, la valeur de ^4He doit être faible (3×10^{-13}). L'absence de contamination est vérifiée car les ampérages associés à l'Ar, et au CO_2 sont également faibles.

Elles sont donc inutilisables telles quelle, et servent donc uniquement de témoin de l'absence de contamination. Les graphiques montrent l'évolution du signal de chaque gaz en fonction du temps d'analyse, et ne sont pas utilisés ni reportés dans le cahier de manipulation.

5. Dosage des éléments mineurs et traces dans l'apatite

Les teneurs des éléments chimiques des cristaux d'apatite ont été analysées à l'aide d'un spectromètre de masse à plasma à couplage inductif (ELEMENT XR à GEOPS et Xserie II au LSCE, Giff sur Yvette) et une microsonde électronique (EPMA, à ISTerre, Université de Grenoble). L'avantage de l'ICP-MS est de pouvoir mesurer des très faibles concentrations (de l'ordre du ppt) d'éléments en solution. Cette technique a été utilisée selon deux séquences analytiques : la première pour mesurer uniquement les concentrations en U, Th, et Sm ; et la deuxième pour analyser les éléments majeurs, mineurs, et traces. L'avantage de la microsonde électronique est la rapidité du protocole, et la non destruction des échantillons. Cette technique a été utilisée pour quantifier les éléments majeurs et certains éléments mineurs d'apatites montées en résine.

Un volet analytique conséquent de la thèse a consisté à caractériser la composition chimique des apatites (majeurs, traces, éléments des terres rares) à l'ICP-MS, en coopération avec Louise Bordier (LSCE), Rosella Pinna, et Frédéric Haurine (GEOPS). Pour réaliser ces analyses, les apatites ont été dissoutes dans de l'acide nitrique. Je présente ici d'abord le protocole de dissolution des apatites, puis celui d'analyse à l'ICP-MS.

5.1. Protocole de dissolution des apatites

La préparation des solutions à passer dans l'ICP-MS (solutions de calibration, blancs, standards, échantillons) s'est faite en salle grise à GEOPS, afin de limiter le risque de

contamination externe et se protéger de l'acidité concernant l'U, Th, Sm. Pour être analysées, les apatites doivent être dissoutes afin d'être prélevées sous forme liquide par le micronébuliseur. Pour cela, chaque cristal est dissous dans 50 microlitres d'acide nitrique 5N, et « spiké» en U, Th, Sm pour l'analyse par dilution isotopique (1ère étape, figure II-10). Chaque grain est donc mis en solution dans un tube de propylène.

Après chauffage pendant 3h à 60°C, l'on complète par 1,4 millilitre d'acide nitrique 1N. La température de chauffe de 60°C permet de ne pas fondre le tube, mais de tout de même dissoudre les apatites. Après avoir remué le mélange, l'on prélève 150 microlitres (2ème et 3ème étapes, figure II-10). Ce volume a été choisi par facilité pour l'analyse, en fonction du volume que l'on souhaite analyser. La solution est alors bien remuée. Un standard interne de Gallium, Germanium, et Rhodium a ensuite été ajouté en très petite quantité (10 microlitres) dans chaque récipient (dernière étape, figure II-10), afin de pouvoir détecter une éventuelle dérive de l'ICP-MS. Etant donné que l'on connaît bien la quantité injectée de standard interne, le signal doit être constant et toute dérive est due à la machine. Cette méthode suppose l'absence de gallium, germanium, et rhodium dans nos échantillons.

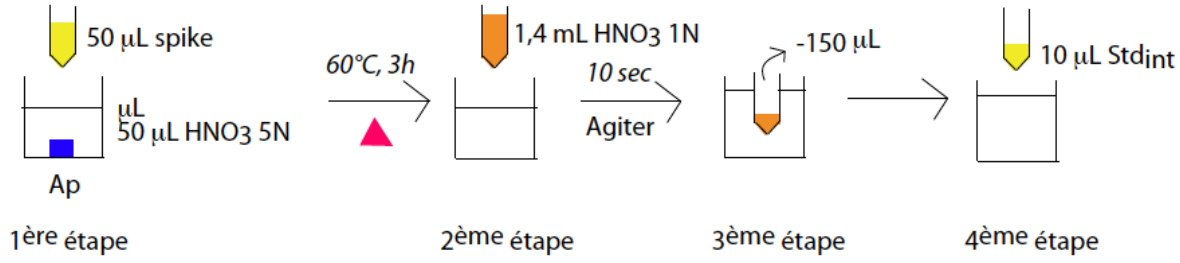


Figure II-10 : Protocole de préparation des échantillons pour l'ICP-MS

Ce schéma présente les étapes de dissolution des échantillons d'apatite. La 1ère étape est l'ajout du spike et de l'acide 5N. Puis, après chauffage pendant 3h à 60°C, l'on ajoute de l'acide 1N. Après avoir agité la solution, la 3ème étape est de prélever 150 microlitres à la solution, afin d'obtenir le volume souhaité. Puis l'on ajoute enfin le standard interne.

5.2. Analyses élémentaires et isotopiques avec l'ICP-MS

Pour ma thèse, nous avons utilisé un micro nébulistateur avec un débit d'aspiration de 50 microlitres/min. La solution est ionisée à l'aide de la torche à plasma et les ions sont envoyés vers le spectromètre, et séparés selon leur rapport masse/charge. Les détecteurs comptent le nombre de coups, proportionnels à la concentration chimique. Pour les éléments majeurs, mineurs, et traces, la relation entre la concentration et le nombre de coups détectés a été calibrée pour chaque élément grâce à des standards de concentration connue (matériaux de référence certifiés). Pour l'U, le Th, et le Sm, l'analyse quantitative a été réalisée grâce à un protocole de dilution isotopique, impliquant un étalon enrichi en isotopes.

5.2.1. Analyse de la concentration en U, Th, et Sm

Le protocole d'analyse de l'uranium, du thorium, et du samarium est basé sur la méthode de dilution isotopique, dont les principes sont décrits par Evans et al. (2005). Appliqué à la calcite, le protocole est également décrit dans la thèse de Cros (2012) et dans Cros et al. (2014). L'optimisation des durées de prélèvement de solution, et le choix des solutions de calibration, des standards, des spike, et de l'élaboration d'une technique de rinçage à l'HF efficace mais non délétère pour la machine (car dilué) ont été effectués au LSCE. Au cours de ma thèse, j'ai utilisé ce protocole, décrit ci-dessous.

La méthode consiste à ajouter à tous les échantillons une solution en très petite quantité (10 µL), dont la concentration en ^{235}U, ^{230}Th, et en ^{149}Sm est connue. Cette solution s'appelle le « spike ». Pour toutes nos analyses, nous avons choisi un spike contenant 3 à 4 ppb d'^{235}U, ^{230}Th et de ^{149}Sm. Ces concentrations ont été choisies de façon à ce que les concentrations en ^{238}U, ^{232}Th, et ^{147}Sm dans le spike soient faibles par rapport à celles de l'échantillon, tandis que les concentrations en d'^{235}U et de ^{230}Th et de ^{149}Sm sont très

majoritaires par rapport à celles des échantillons. Les rapport isotopiques $^{235}U/^{238}U$, $^{232}Th/^{230}Th$, et $^{149}Sm/^{147}Sm$ sont mesurés dans chaque échantillon spiké. Le rapport isotopique de l'échantillon $^{235}U/^{238}U$ est constant et vaut 0,0072. La concentration de ^{238}U est calculée à partir du rapport isotopique $^{235}U/^{238}U$ mesuré dans l'échantillon spiké, selon l'équation II-1 déterminée par Evans et al. (2005) :

$$^{238}U_{atoms} = {}^{238}U_{sp} \times \frac{(RU_{éch} - RU_{sp})}{(RU_{ap} - RU_{éch})}$$

Équation II-1 : Calcul de la concentration d'^{238}U

(Evans et al., 2005)

où $RU_{éch}$ est le rapport isotopique dans l'échantillon spiké, RU_{sp} le rapport dans le spike seul, et RU_{ap} le rapport isotopique dans l'apatite naturelle (sans spike, c'est-à-dire 0,0072). De même, ^{230}Th, et ^{149}Sm étant majoritaires dans le spike, l'on déduit la concentration de ^{232}Th et de ^{147}Sm à partir des rapports isotopiques $^{230}Th/^{232}Th$ et $^{149}Sm/^{147}Sm$ mesurés dans les échantillons spikés.

Une solution standard (SS), et une solution d'uranium (U_{nat}) dont la composition isotopique est donnée, sont ensuite analysées pour contrôler que la valeur du rapport isotopique est correcte (Tableau II-1). La solution U_{nat} est une solution d'uranium naturel ayant un rapport $^{235}U/^{238}U$=0,0072. C'est la valeur qui est observée partout dans la nature. La solution standard est une solution artificielle marquée isotopiquement en U, Th, et Sm, enrichie en ^{235}U, ^{232}Th, et ^{149}Sm. Son analyse régulière permet de vérifier que le spike est bien calibré et qu'il n'y a pas de dérive des rapports isotopiques. D'autre part, un blanc d'acide nitrique spiké est analysé pour les trois isotopes.

	$^{235}U/^{238}U$	$^{230}Th/^{232}Th$	$^{149}Sm/^{147}Sm$
BSP	16,3	5	240
Unat	0,0072	-	-

Tableau II-1 : Compositions isotopiques des solutions standards et du spike

Ce tableau donne les compositions isotopiques du blanc spiké (BSP), et de la solution d'uranium naturel (Unat). Avant de commencer les analyses, il est nécessaire de vérifier que ces valeurs sont bien obtenues.

Plusieurs blancs sont analysés, afin de contrôler la quantité d'U, de Th, et de Sm dans l'acide nitrique, le platine de la capsule, et le spike. Ces blancs permettent de vérifier l'absence de contamination, et si besoin l'on soustrait ces blancs aux concentrations mesurées. Le « blanc final » est constitué d'acide ultrapropre, utilisé pour le fonctionnement de l'ICP-MS. Le blanc « Blc ch » est un blanc d'acide ultrapur préparé en salle grise. Le blanc « Blc » a, lui, été préparé à partir d'acide nitrique classique. Le « Blc Pt ch » contient une capsule de platine vide qui a subi exactement les mêmes étapes que les échantillons. Les blancs « BSP » ont été spikés. La composition des blancs est indiquée dans le Tableau II-2 ci-dessous. Ils sont tous quasiment dépourvus d'U, Th, et Sm.

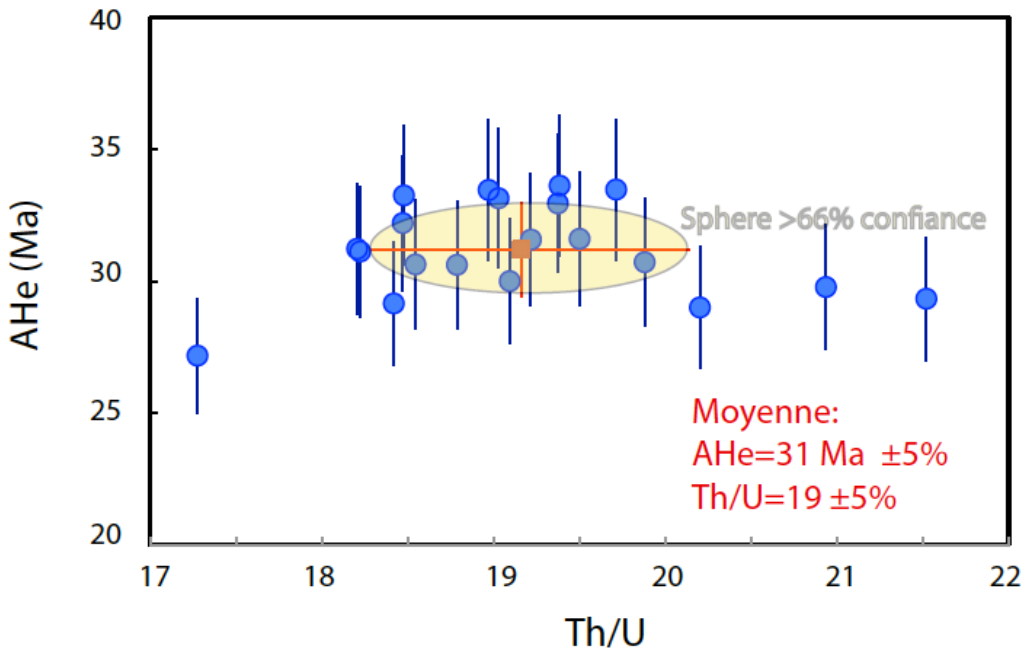


Figure II-11: Mesure d'âges AHe et de rapports Th/U des standards de Durangos

Nom	^{238}U (ng)	^{232}Th (ng)	^{147}Sm (ng)
Bcl final	5	3	1
Blc	27	8	2
Blc ch	14	5	1
Blc Pt ch	0,002	0,010	0,002

Tableau II-2 : Composition des blancs d'acides en radionucléides

Ce tableau indique les analyses effectuées dans les blancs. Le Blc a été préparé avec de l'acide classique. Le Blc ch a été préparé avec de l'acide ultrapur. Le Blc Pt ch aussi, mais une capsule de platine vide est présente. Le Blc final est le blanc préparé à l'acide ultrapur, après rinçage. Les Blancs ch sont plus propres que les blancs préparés à partir d'acide classique. Ainsi, il vaut mieux utiliser de l'acide ultrapropre.

Afin de vérifier la reproductibilité des analyses U, Th, Sm, on analyse la série de cristaux de Durango préalablement analysée en hélium. Leur âge est de 31 Ma (figure II-11). Le rapport Th/U est d'environ 19 (Boyce et Hodge, 2005 ; McDowell et al., 2005). Les concentrations en U, Th, Sm et He sont ensuite utilisées pour calculer les âges (U-Th-Sm)/He. L'erreur attendue sur l'âge (U-Th-Sm)/He est de 10%.

5.2.2. Analyse de la concentration en majeurs, mineurs, et traces

Les solutions d'apatites dissoutes analysées en U, Th, Sm ont été préparées en suffisamment grande quantité (1,5 ml) pour être réutilisées pour l'analyse élémentaire. En effet, lors de l'analyse de U, Th, et Sm, seuls 300 microlitres sont prélevés par le micronébulisateur. Le protocole utilisé est la méthode du standard externe (Cros et al., 2014). Comme pour tout spectromètre de masse, les ions issus du plasma sont accélérés et séparés selon leur rapport masse/charge. Le signal détecté par le collecteur de l'ICP-MS pour chaque masse est converti en une concentration grâce à des solutions de calibration. L'usage d'un standard externe permet de confirmer la fiabilité des concentrations obtenues sur un matériau certifié, et de calculer les erreurs de mesures.

a. Calibration

La première étape est la calibration de l'ICP-MS, qui consiste à analyser des solutions de concentration connue pour déterminer la relation entre le nombre de coups détectés et la concentration effective. L'équipe a acquis des solutions mères de concentration connues : des solutions mono-élémentaires de calcium (10,000 ppm) et de phosphore (1000 ppm), et des solutions multi-élémentaires d'éléments majeurs d'une part (1000 ppm), de terres rares

d'autre part (100 ppm). Le choix des solutions mono-élémentaires pour le calcium et le phosphore a été fait car ces deux composés sont majoritaires dans le cas de l'apatite et la calibration nécessite donc une solution concentrée en Ca et P, contrairement aux autres éléments.

Afin de choisir les concentrations des solutions de calibration, il est nécessaire de déterminer la gamme de concentrations élémentaires des apatites à laquelle s'attendre. Des premiers tests ont été effectués au LSCE sur des standards Durango et des FOR3 (Standard interne à GEOPS). Ces échardes et cristaux d'apatite ne sont pas des standards certifiés, donc la concentration élémentaire varie d'un cristal à l'autre et nous ne les avons pas utilisés comme standard. Néanmoins, leur composition varie de moins qu'un facteur 10, et nous connaissons la gamme de concentration à laquelle on peut s'attendre. Par exemple, la composition des cristaux de Durango est renseignée par les références de GEOREM : elle est d'environ 3007 à 4285 ppm de La par exemple.

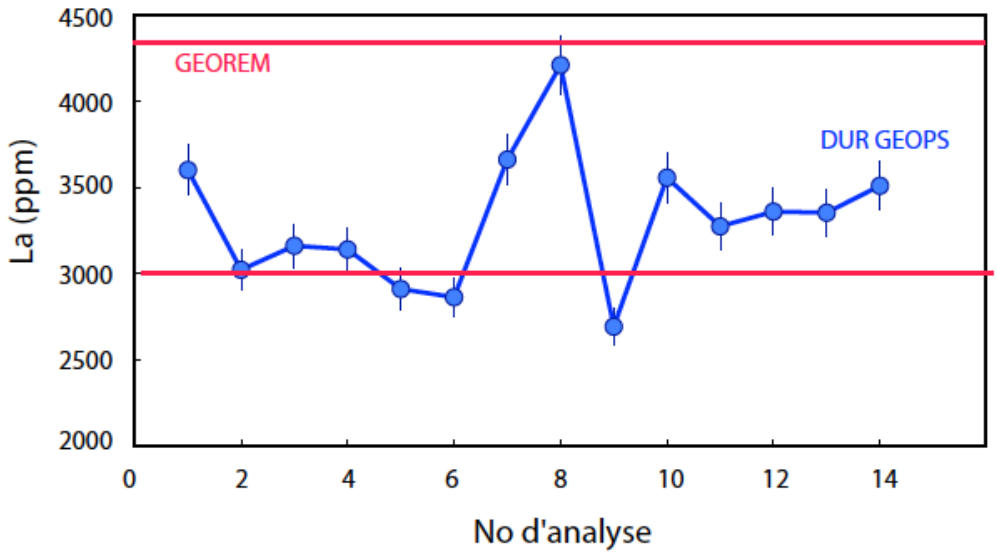


Figure II-12 : Analyse en La des cristaux d'apatite de Durango

Les analyses ont été effectuées à l'ICP-MS de GEOPS. Les barres d'erreurs correspondent à 4%, déterminées à partir de l'analyse des standards. La plupart des cristaux sont dans la gamme de concentrations attendues par GEOREM.

	C_{sol} min (ppb)	C_{sol} max (ppb)
Ca	87	6970
Mn	0,3	31
Sr	0,2	14
Ba	0,4	18
La	0,1	20
Ce	0,8	59
Pr	0	7
Nd	0,1	37
Sm	0,03	13
Gd	0,03	13
Tb	0,003	2
Dy	0,02	11
Ho	0,005	2
Er	0,4	227
Tm	0,001	0,7
Yb	0,005	5
Lu	0	0,6
Eu	0,001	0,5
Th	0	11
U	0,9	299
Yb	0	5

Tableau II-3 : Gamme de concentrations en solution

mesurées dans différentes apatites collectées dans le Massif Armoricain (France)

Ces concentrations élémentaires ont été mesurées au Q-ICP-MS de Gif/Yvette dans 1 mL de solution d'apatite dissoute, après calibration sur les cristaux de Durango et de FOR 3. Le calcium est un élément majeur, présent en quantité de quelques ppm. Les autres éléments sont mineurs, jusqu'à une centaine de ppb maximum. Ces valeurs extrêmes de concentrations ont été utilisées pour la calibration de l'ICP-MS de GEOPS.

Nous avons vérifié que les analyses sont reproductibles et tombent dans cette gamme de concentration (voir figure II-12). Les échantillons du massif Armoricain, issus de la côte du Trégor (voir chapitre 3) ont alors servi de standard interne pour évaluer la gamme de concentrations élémentaires des apatites naturelles. En effet, les apatites de Durango et de FOR3 ont une chimie particulière. Durango est par exemple très enrichie en terres rares (4000 ppm de lanthane par exemple), ce qui n'est à priori pas le cas de toutes les apatites.

Aucune donnée bibliographique n'existait auparavant sur les apatites du Trégor. La gamme de concentration déterminée au LSCE est indiquée dans le Tableau II-3. A partir de ces données, le protocole de calibration de la nouvelle machine ICP-MS de GEOPS a été élaboré. Il est scindé en deux : (i) calibration du calcium et du phosphore, pour toute concentration entre 100 ppb et 5 ppm, puis (ii) calibration des majeurs et des terres rares, pour toute concentration entre 1 ppt et 1 ppm.

La calibration nécessite de fabriquer des solutions filles à différentes concentrations, par dilution des solutions mères. Par exemple, afin d'établir une courbe de calibration du calcium pour toute concentration entre 100 ppb et 5 ppm, nous avons utilisé six solutions filles à 5, 2, 1 ppm et 500, 250, et 100 ppb de calcium. Nous sommes conscients que certaines apatites ont des concentrations plus élevées (~ 7 ppm) néanmoins elles sont rares. Nous avons choisi de calibrer uniquement jusqu'à 5 ppm. Une courbe de calibration permet la conversion du signal électrique (nombre de coups) en concentration. Afin de gagner en précision, lors de la préparation, la concentration exacte des solutions filles a été calculée à l'aide d'un tableau de pesée établie lors de la dilution, selon l'équation II-2 où $m_{mère}$ est la masse de la solution mère et m_{acide} la masse d'acide ajoutée.

$$C_{fille} = m_{mère} \times \frac{C_{mère}}{m_{mère} + m_{acide}}$$

Équation II-2 : Calcul de la concentration des solutions filles

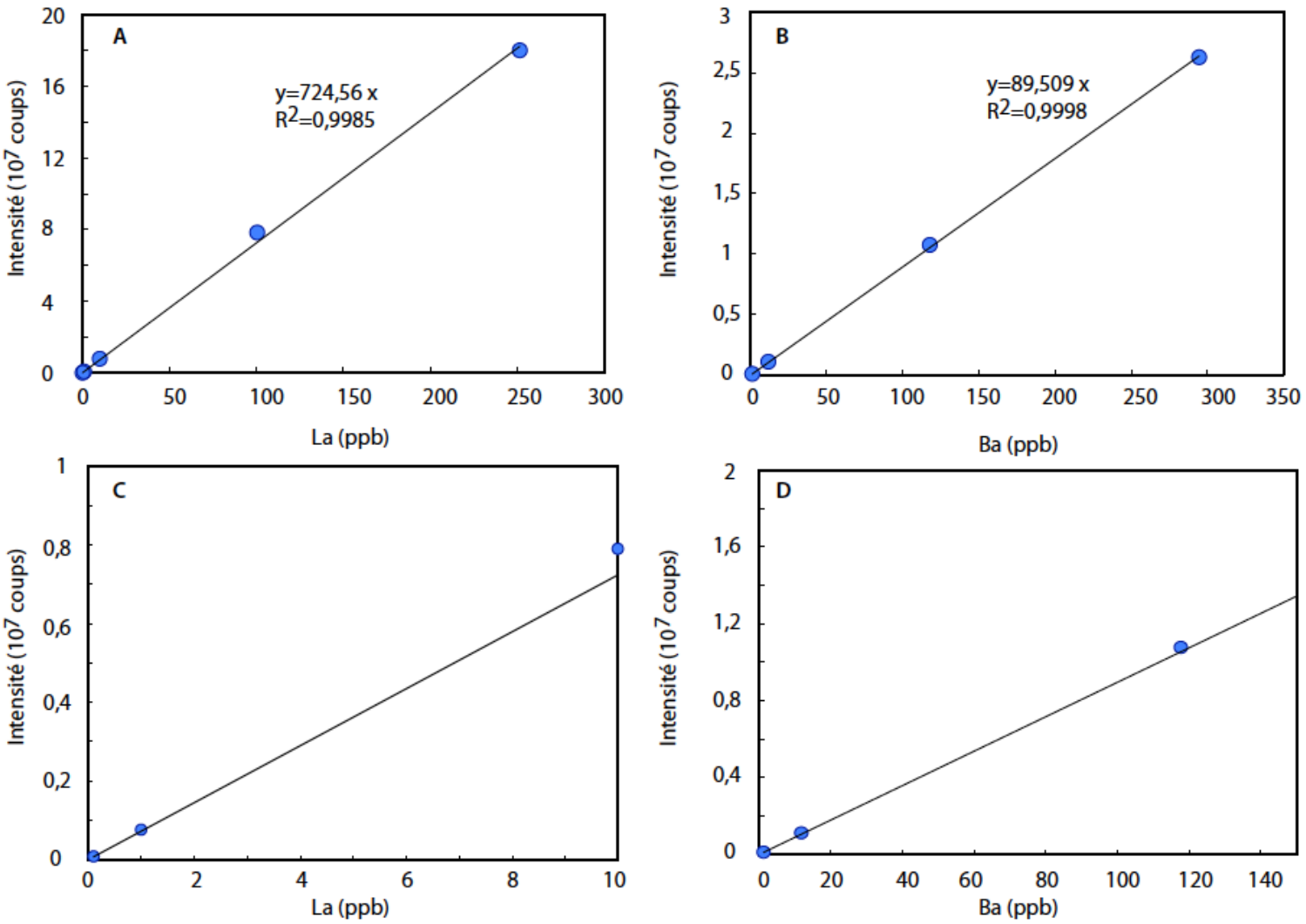


Figure II-13 : Droites de calibration en La et Ba

Cette étape de calibration a nécessité un développement analytique, afin que la réponse de l'ICP-MS soit linéaire. En effet, la courbe de calibration doit être une droite, quel que soit l'élément choisi (figure II-13). Deux difficultés nous ont préoccupés pour obtenir cette réponse linéaire : (i) une surestimation du nombre de coups pour les solutions filles à faibles concentrations (<250 ppb), et (ii) la présence d'interférences entre éléments. Le premier problème a été résolu en utilisant un acide ultrapur, qui diminue les concentrations dans les blancs : dans le Tableau II-2, les blancs préparés à l'acide ultrapur (Blc ch) ont des concentrations plus faibles que les blancs préparés à l'acide classique (Blc). Le deuxième a été résolu en utilisant par exemple le canal du calcium en haute résolution et non en moyenne ou basse résolution. Une autre raison de choisir la haute résolution pour le calcium est que les concentrations de Ca dans les apatites sont parfois très élevées. Le signal en HR est cent fois plus faible qu'en LR, ce qui permet de mesurer des concentrations élevées sans saturer le détecteur.

b. Standards :

Nous validons ensuite cette calibration par l'analyse de standards externes : la solution NIST 1640a (National Institute of Standards and Technology) pour les éléments majeurs et mineurs, et la solution BCR-1 (Basalt Columbia River) pour les éléments des terres rares (standard fourni par l'United State Geological Survey). Ces matériaux de références ont une concentration certifiée, indiquée dans la figure II-14 ci-après (https://nemo.nist.gov/srmors/view_detail.cfm?srm=1640a; Raczek et al., 2001). Nous vérifions que la concentration mesurée par l'ICP MS à l'issue de la calibration soit suffisamment proche de celle référencée internationalement pour le standard externe (Tableau II-4).

Element	Mass Fraction (mg/kg)		
Calcium	5.570	±	0.016
Magnesium	1.0502	±	0.0034
Potassium	0.5753	±	0.0020
Silicon	5.169	±	0.017
Sodium	3.112	±	0.031
	(µg/kg)		
Lithium	0.4034	±	0.0092
Rubidium	1.188	±	0.011

Element	Mass Fraction (µg/kg)		
Aluminum	52.6	±	1.8
Antimony	5.064	±	0.045
Arsenic	8.010	±	0.067
Barium	150.60	±	0.74
Beryllium	3.002	±	0.027
Boron	300.7	±	3.1
Cadmium	3.961	±	0.072
Chromium	40.22	±	0.28
Cobalt	20.08	±	0.24
Copper	85.07	±	0.48
Iron	36.5	±	1.7
Lead	12.005	±	0.040
Manganese	40.07	±	0.35
Molybdenum	45.24	±	0.59
Nickel	25.12	±	0.12
Selenium	19.97	±	0.16
Silver	8.017	±	0.042
Strontium	125.03	±	0.86
Thallium	1.606	±	0.015
Uranium	25.15	±	0.26
Vanadium	14.93	±	0.21
Zinc	55.20	±	0.32

Figure II-14 : Concentrations certifiées du standard NIST 1640a

(extrait du certificat d'analyse)

Ces données de référence proviennent de l'institut national des standards et technologie (NIST), qui référence un certain nombre de matériaux standards (SRM), tel que le NIST 1640a (https://nemo.nist.gov/srmors/view_detail.cfm?srm=1640a;)

MAJEURS	*Mesure (ppt)*	*Certification (ppt)*	*Erreur (%)*	*Standard*
Ca	5090	5570	-9	NIST
P	3262	3025	8	BCR-1
MINEURS				
Sr	130	125	4	NIST
Ba	163	151	8	NIST
Mg	1162	1050	11	NIST
Al	54	53	2	NIST
K	603	575	5	NIST
Mn	40	41	-2	NIST
Fe	40	36,5	10	NIST
Na	2266	2340	-3	BCR-2
Sc	89	62	44	BCR-1
REE				
La	24	25	-4	BCR-2
Ce	54	53	2	BCR-2
Pr	7,2	7	3	BCR-2
Nd	29	28	4	BCR-2
Sm	6,4	7	-9	BCR-2
Eu	4,5	3,76	20	BCR-1
Gd	6,2	7	-11	BCR-2
Tb	0,9	1	-10	BCR-2
Ho	0,9	1	-10	BCR-2
Tm	1,15	1,04	11	BCR-1
Yb	7,6	6,5	17	BCR-1
Lu	1,1	0,97	13	BCR-1

Table II-4 : Analyse des standards

Elément	**Valeur réf. (ppm)**	**Analyses (ppm)**
Mn	94	40-100
Sr	445-491	447-557
Y	400-911	700-1053
La	3007-4285	2692-4209
Ce	3584-5405	3683-4872
Pr	284-496	278-393
Nd	925-1745	833-1041
Sm	117-244	92-188
Eu	15-22	13-18
Gd	98-206	82-123
Tb	12-28	9-14
Dy	65-154	46-75
Ho	13-32	9-14
Er	33-83	25-41
Tm	4-10	3-5
Yb	26-59	18-29
Lu	4-34	2-4
Th	151-320	151-209
U	7-20	9-13

Tableau II-5 : Valeurs de référence et analyse des apatites de Durango

Ces concentrations élémentaires ont été mesurées à l'ICP-MS de GEOPS sur 14 cristaux d'apatites de Durango. Les valeurs de référence sont les gammes de concentration attendues par GEOREM. On remarque que les analyses donnent des résultats concordants avec la gamme de concentration attendue.

D'autre part, nous avons également analysé des cristaux de Durango, dont les concentrations élémentaires sont connues et peu variables. La gamme de concentrations

attendues pour ces cristaux est référencée par GEOREM (voir tableau II-5). Nous avons donc vérifié que la gamme de concentrations analysées est conforme à celle du standard. Cela a permis une double validation des droites de calibration présentées ci-dessus.

c. Rinçages et blancs

Entre chaque analyse, une solution de rinçage est prélevée par le micronébulisateur. Elle contient de l'acide nitrique 1N ultrapropre, ainsi que de faibles doses d'acide fluorhydrique. Cette solution permet le nettoyage de l'appareil entre deux échantillons, et l'élimination de tous les éléments chimiques. Ainsi, l'analyse d'un échantillon ne contient pas de résidus chimiques de l'échantillon précédent. On analyse la composition de la solution de rinçage à chaque étape, pour vérifier son efficacité.

Afin de vérifier la pureté chimique et la propreté de la ligne, on analyse régulièrement des blancs. Les blancs d'acide pur consistent en 1 mL d'acide 1N. Ils sont analysés pour vérifier la pureté chimique de l'acide. De plus, des blancs d'acide + standard interne ont été préparés par adjonction de 10 microlitres de standard interne à l'acide pur, afin de vérifier la pureté du standard interne. Ces blancs ont été préparés en salle grise dans les mêmes conditions et avec le même acide que les autres solutions analytiques. D'autre part, des blancs appelés « blancs machines » ont aussi été fabriqués directement en salle ICP-MS à partir de l'acide ultra-propre utilisé pour la machine.

Il est important que les concentrations dans les blancs soient minimales, car ce sont ces concentrations qui contrôlent la gamme de concentration à partir de laquelle l'on peut interpréter les mesures de concentration : cette concentration minimale est 3 fois supérieure à celle dans les blancs. Un travail analytique conséquent a été réalisé au laboratoire pour améliorer la propreté des blancs : (i) utilisation d'acides ultrapropres, qui sont plus purs que les acides supraprop res, (ii) nettoyage régulier des cônes de l'ICP-MS, (iii) travail sur les

matériaux du matériel de stockage des solutions. Ce dernier point peut sembler anodin, mais les matériaux des tubes contenant les solutions dissoutes peuvent dans certains cas contaminer en partie l'échantillon, ce qui rajoute un bruit de fond indésirable aux analyses. L'utilisation de tubes en propylène, est préférable par rapport au polystyrène, et ne trouble pas les données. Les valeurs obtenues sont satisfaisantes : elles permettent d'obtenir une limite de quantification inférieure aux concentrations minimales que l'on souhaite mesurer dans l'apatite.

d. Traitement des données

Les concentrations élémentaires obtenues doivent tout d'abord être standardisées. Pour cela, la concentration mesurée dans le standard de référence (NIST pour le Ca et les majeurs) est corrigée par rapport à la valeur de référence (5,57 ppm de Ca par exemple). Toutes les autres concentrations sont corrigées de la même façon. Puis, la dérive machine de l'ICP-MS doit être corrigée. Pour cela, plusieurs techniques d'évaluation de la dérive temporelle sont possibles (e.g ; Cheatham et al., 1993). Au LSCE, nous avons estimé la dérive par rapport à des analyses régulières (tous les 10 échantillons) du standard externe. Nous avons corrigé cette dérive pendant un intervalle de temps linéairement. A GEOPS, nous avons estimé la dérive par ajout de 10 microlitres de standard interne dans chaque solution. La dérive instrumentale est calculée par rapport à ce standard. Cette technique est également utilisée par Sinclair et al. (1998). Elle a l'avantage d'économiser du standard externe, très coûteux ; mais l'inconvénient est de devoir ajouter du standard interne pendant la préparation – cela rajoute une étape dans la préparation, qui augmente le temps de préparation et le risque d'accident. Après ces traitements, l'on vérifie que les concentrations mesurées sont supérieures à trois fois la valeur du blanc – le cas échéant les données ne pourraient pas être interprétées.

5.3. Analyse des apatites par microsonde électronique

L'utilisation de la microsonde électronique a permis d'analyser les apatites datées par traces de fission, ainsi que d'autres apatites collées sur des plots. La préparation des échantillons est simple : les cristaux d'apatite sont séparés à la main, et sélectionnés avec une épingle sous la loupe binoculaire. La microsonde électronique, ou microsonde de Castaing, est une méthode d'analyse élémentaire in situ (Reed, 1975, 2005). La nouvelle microsonde JEOL JXA 6230 du laboratoire ISTerre à Grenoble a été utilisée.

Les apatites sont bombardées avec des électrons. Sous l'effet de ce bombardement, les atomes de l'apatite sont excités, et émettent des rayons X. Un détecteur WDS permet de séparer les photons X. Le spectre obtenu est caractéristique de la chimie de l'échantillon : l'énergie des pics dépend de l'élément chimique, la hauteur des pics dépend de la concentration élémentaire. L'analyse d'un verre standard et des apatites de Durango, permet de calibrer la relation entre l'intensité des pics et la concentration (Jarosewitch et al., 1980). La résolution de l'analyse est submicrométrique, ce qui est un atout notamment pour révéler des zonations chimiques au sein d'un même grain. Le Tableau II-6 présente la reproductibilité des analyses sur ce standard de Durango. La sensibilité de l'appareil est de quelques ppm, et la précision est de 0,01 wt% pour les majeurs.

Les valeurs mesurées dans les standards sont comparées à la valeur de référence (40,8 wt % de P_2O_5 et 54,0 wt% de CaO) afin de déterminer si les concentrations dans les échantillons ont été légèrement sur- ou sous-estimés et d'apporter un facteur de correction en conséquence. La dérive temporelle est corrigée linéairement par rapport à l'analyse régulière (toutes les 20 analyses) de ce standard.

Nous avons ensuite écarté : (i) les analyses dont les erreurs de comptage sur le spectre des rayons X étaient trop importantes (>60%) et (ii) celles des minéraux dont la composition

en Ca et P différait trop significativement de celle d'une apatite. Ces minéraux avaient par exemple : 0% de phosphore, et contiennent une grande quantité de silicium (SiO_2= 16 à 87%) et d'OH (12-60%). Sur 400 minéraux analysés, 23 était dépourvus de phosphore. Si l'on se fie à leur composition chimique, certains d'entre eux seraient des grains de quartz, et d'autres contiennent à la fois du calcium et du silicium (comme l'anorthite).

La quantité d'OH reste inexpliquée, et de tels grains sont normalement éliminés lors de la séparation au bromoforme et ne ressemblent pas à des apatites. Néanmoins, l'hypothèse d'une erreur de tri reste envisageable, si l'erreur ne vient pas de l'analyse elle-même. Dans le doute, nous avons décidé de faire les statistiques sur les autres grains, dont la nature est plus sûre. Notez que lors du dégazage hélium, aucun grain anormal de ce genre n'a été repéré, qui aurait impliqué une erreur de tri : tous les grains avaient du gaz. Néanmoins, nous n'avons pas analysé les mêmes grains en He et à la sonde donc il est difficile de comparer.

	P_2O_5 (%)	CaO (%)	F (%)	Cl (%)	La_2O_3 (%)	Ce_2O_3 (%)
DUR 1	41,05	53,94	3,51	0,40	0,47	0,61
DUR 2	40,97	53,94	3,53	0,39	0,44	0,55
DUR 3	40,06	54,12	3,55	0,40	0,49	0,47
DUR 4	39,54	54,04	3,41	0,38	0,47	0,51
DUR 5	39,35	54,24	3,45	0,38	0,48	0,57
DUR 6	39,46	54,24	3,49	0,37	0,45	0,58
DUR 7	40,58	54,27	3,56	0,39	0,43	0,55
DUR 8	40,86	54,29	3,51	0,39	0,49	0,58
DUR 9	40,72	54,30	3,49	0,38	0,49	0,61
DUR 10	40,64	54,13	3,36	0,39	0,47	0,53
DUR 11	40,63	54,29	3,45	0,40	0,50	0,54
DUR 12	41,61	54,19	3,49	0,39	0,46	0,59
DUR 13	41,72	54,20	3,51	0,38	0,52	0,58
DUR 14	41,63	54,24	3,49	0,39	0,48	0,57
Moyenne	**40,72**	**54,17**	**3,49**	**0,39**	**0,47**	**0,56**
Ecart Type σ	0,74	0,12	0,05	0,01	0,02	0,04
RSD= σ/m (%)	**1,8**	**0,2**	**1,6**	**2,1**	**4,7**	**6,8**
Référence	**40,8**	**54,02**				

Tableau II-6 : Reproductibilité des standards de Durango à la sonde électronique

Ce tableau renseigne la composition des standards de Durango en Ca, P, La, Ce, F, Cl, qui sont les éléments les plus abondants dans l'apatite. Chaque grain de Durango est appelé DUR1 à DUR 14, et chaque ligne représente sa composition. La moyenne, l'écart type, et l'écart relatif à la moyenne (RSD) de l'ensemble des cristaux sont indiqués en bas du tableau. La valeur moyenne en P et Ca correspond bien à la valeur de référence indiquée en dernière ligne (d'après Barbarand et al., 2003).

6. Caractérisation expérimentale des défauts de l'apatite

6.1. Implantation des apatites en hélium et en or

La préparation des échantillons a été faite au CSNSM, en collaboration avec Cyril Bachelet en s'inspirant du travail expérimental de thèse d'Ouchani (1997) et des manipulations de Gerin (2017). Des macro-cristaux d'apatite de Durango ont été découpés en tranches de 1 mm à la microscie diamantée, perpendiculairement à l'axe c. Cette étape a été réalisée grâce à la microscie de Lucie Delauche, au CSNSM. Les tranches ont été collées sur un plot avec de la colle cristal, puis polies, et enfin la colle a été dissoute dans de l'acétone. Puis, les échantillons polis ont été transférés sur une lame de métal. Afin d'éliminer d'éventuels défauts de polissage, les échantillons ont été chauffés à 1000°C pendant 24 h. En effet, le chauffage cicatrise les défauts (comme pour les traces de fission). Cette élimination des défauts rend les apatites blanches après la cuisson. Pour cette dernière étape, nous avons utilisé le four mis à notre disposition par l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay (IPN). La figure II-15 est une photographie des sections ainsi préparées.

Afin de simuler expérimentalement la création de défauts, nous avons implanté dans les apatites des atomes légers d'He, et dans d'autres cristaux des atomes lourds d'Au. Nous avons choisi d'implanter de l'hélium pour simuler les particules alpha, et de l'or pour simuler les dégâts engendrés par le recul des noyaux. Pour cela, nous avons utilisé l'implanteur d'ions IRMA, situé au Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM) d'Orsay, en collaboration avec Cyril Bachelet, Frédérico Garrido, et Sandrine Picard.

Figure II-15 : Sections polies d'apatites de Durango préparées pour l'implantation

Les apatites ont été sciées en sections fines, collées sur une lame de métal à la colle cristal, et rangées dans une boîte à membrane avant chauffage.

Cet implanteur fait partie d'une plateforme analytique : la plateforme JANNuS (Joint Accelerators for Nano-science and NUclear Simulation, dont les lignes sont représentées figure II-16), qui combine un accélérateur de particules ARAMIS de type Van de Graaff et Tandem (2 MV) et l'implanteur IRMA, ainsi qu'un microscope électronique en transmission (MET). Le MET peut être utilisé pendant l'implantation mais ce n'est pas l'expérience que nous avons choisi de faire car nous avons obtenu du temps de faisceau MET à l'Université de Lyon et non pas au CSNSM où il est plus demandé.

L'implanteur IRMA permet d'irradier le matériau par un flux d'ions à une certaine fluence (Nguyen, 2013). Cela modifie les échantillons sur une profondeur inférieure à 500 nm, en y implantant des éléments au choix. Pour cela, il peut accélérer tous les éléments,

grâce à une source d'ions Bernas-Nier (figure II-16). Cette source produit un plasma grâce à une cathode chaude, dans lequel sont injectés les particules à ioniser sous forme gazeuse. L'énergie du courant ainsi produit peut-être choisie entre 5 et 190 keV. Nous avons choisi pour nos analyses une énergie de 15 à 30 keV pour les implantations d'hélium, et de 1.2 MeV pour les implantations d'or. Les particules ainsi accélérées sont projetées à la surface de l'échantillon, et implantées à une certaine profondeur (quelques centaines de nanomètres).

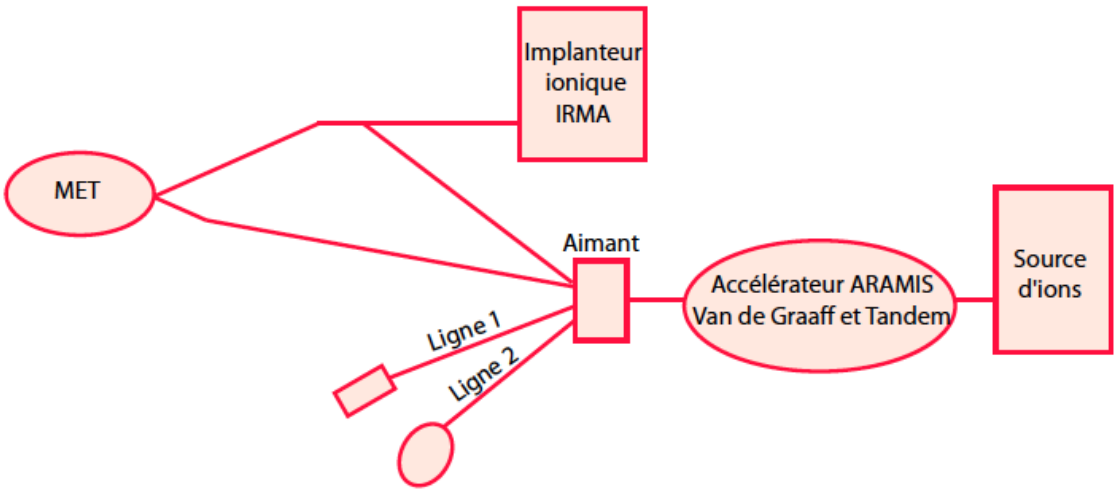


Figure II-16 : Schéma des lignes de JANNuS, au CSNSM (d'après Nguyen 2013)

La plateforme JANNuS, localisée au Centre de Sciences Nucléaires et de Sciencse de la Matière d'Orsay, couple un accélérateur de particules ARAMIS (2MV) et un implanteur ionique IRMA (190kV), ainsi qu'un microscope électronique à transmission. Ce dernier peut être utilisé in-situ pour observer et implanter simultanément.

Les plaquettes métalliques supportant les échantillons ont été collées à la colle cristal sur un porte-objet, qui a été inséré dans l'implanteur. La Table II-9, ci-après, résume l'ensemble des expériences d'implantation effectuées au cours de la thèse. D'après des simulations SRIM effectuées en 2016 concernant la dernière implantation, la profondeur maximale d'endommagement de l'apatite est de 400 nm, que ce soit avec de l'or ou de

l'hélium. Le but de notre partie expérimentale est d'observer et de caractériser les défauts engendrés par cette implantation.

Date	Atome	Fluence (at/cm^2)	Energie (keV)	Profondeur (nm)
2014	He	10^{15}	15	100-200
2015	He	10^{15} à 10^{17}	15	100-200
2016	He	5.10^{13} à 10^{15}	30	0-400
2016	Au	3.10^{11} à 8.10^{12}	1200	0-400

Table II-7 : Synthèse des expériences d'implantation

Quatre sessions d'implantation ont été effectuées, à des fluences variables, afin d'obtenir des profondeurs d'implantation variables et potentiellement visibles en microscopie électronique à transmission et en spectroscopie RBS.

6.2. Microscopie électronique en transmission

6.2.1 Principe :

La microscopie électronique consiste à bombarder un échantillon ultrafin (< 100 nm) avec des électrons, et à exploiter l'interaction entre ces électrons et la matière pour déterminer sa nature et ses propriétés. La technique est très bien décrite dans les cours de Nicolas Menguy (*ext.impmc.upmc.fr/~menguy/PDFs/5P440/5P440_2016_C5_TEM_A.pdf*), et par C. Willaime (1987) dans son initiation au MET. Elle est exhaustivement décrite également par Williams et Carter (1996).

Le principe de la technique est simple. Des électrons sont formés par un canon à électrons formé d'un filament cathodique traversé par un courant électrique. Le faisceau d'électrons est ensuite focalisé grâce à un système d'association de lentilles

électromagnétiques, pour finir par traverser l'échantillon. L'intensité du faisceau transmise à travers l'échantillon peut alors être étudiée grâce à un collecteur.

6.2.2. Préparation des échantillons

Afin d'observer les apatites en microscopie électronique, des lames ultra-fines ont été préparées par faisceau d'ion focalisé (FIB). La découpe FIB a été effectuée par Stéphanie Reynaud, Ingénieure de recherche à l'Université Jean Monnet de Saint-Etienne. Ces lames de 10 µm de largeur et 15µm de longueur, mesurent ≈100 nm d'épaisseur, ce qui permet aux électrons de traverser la matière. La technique d'amincissement FIB est décrite par Watkins et al. (1986) et Giannuzzi et Stevie (1999). La surface du cristal d'apatite est tout d'abord protégée par une couche de platine de 1 à 2 µm. Puis la découpe a lieu grâce à la projection d'un faisceau de gallium par le FIB. En effet, ce métal a un faible point de fusion, donc est utilisé comme liquide ionique pour abraser l'échantillon dans le FIB. Deux tranchées parallèles sont effectuées à l'avant et à l'arrière de la lame, laissant apparaître une tranche d'apatite (figure II-17A).

Les bords de la tranche sont sectionnés, de façon à extraire les tranches fines, puis à les transférer et les souder à un micro-manipulateur (figure II-17B). L'observation est rendue possible par le couplage entre faisceau ionique et électronique. Enfin, le bord libre de la lame est soudé à une grille de microscopie électronique (figure II-17C). La tranche est ensuite amincie jusqu'à environ 100 nm d'épaisseur par abrasion due aux chocs avec les particules de gallium (figure II-17E). L'épaisseur de la lame doit être constante afin que les propriétés de transmission électronique ne varient pas selon l'épaisseur mais uniquement selon les propriétés du matériau.

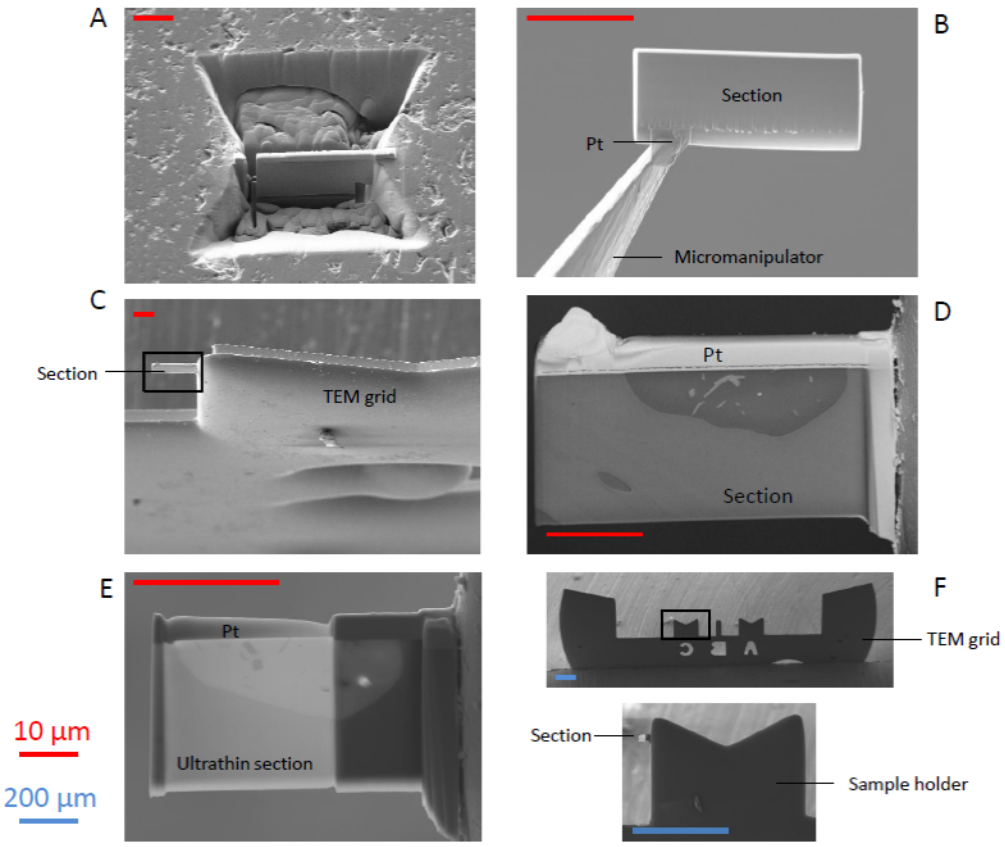


Figure II-17 : Etapes d'extraction d'une lame FIB

Ces images ont été réalisées lors de la confection de lames FIB issues d'un échantillon de formation rubanée riche en fer archéen, au cours de mon Master 2, à l'Institut de Minéralogie et de Physique des Matériaux Condensés par Imène Estève. Chaque étape a été imagée par le couplage FIB/MEB. J'ai assisté à cette confection, puis à celle d'autres lames à l'Université de Lille par David Troadec. Ces images sont placées ici de façon à illustrer la technique d'extraction d'une lame FIB, qui diffère peu de celle utilisée pour les apatites au cours de la thèse.

6.2.3 Principales manipulations effectuées

L'interaction du faisceau électronique avec la matière produit une série de rayonnements. Chaque rayonnement peut être exploité pour apporter des informations cruciales sur le spécimen. Nous avons utilisé le microscope électronique à transmission pour : (i) l'imagerie MET en champ clair, (ii) l'imagerie à haute résolution (HRTEM), et (iii) les clichés de diffraction en sélection d'aire (SAED). La microscopie électronique à transmission image les échantillons jusqu'à une forte résolution (de quelques angströms). Plusieurs modes

d'imagerie peuvent être utilisés. L'imagerie en champ clair exploite les électrons transmis, en produisant des images dont le contraste révèle la proportion d'électrons transmis. Les électrons diffractés élastiquement sont utilisés en diffraction électronique et en imagerie à haute résolution.

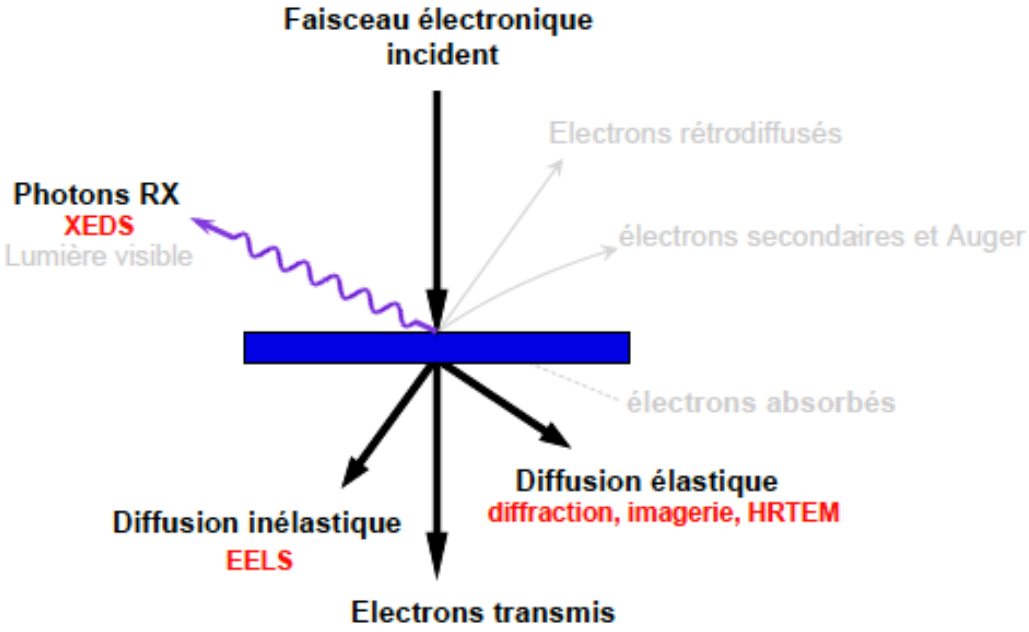


Figure II-18 : Intéraction électron/matière

Dans une image en champ clair, les zones les plus sombres sont celles qui ont collecté le moins d'électrons, en raison d'une forte absorption ou diffraction. Ces zones sombres correspondent à : (i) des zones à fort numéro atomique Z (lourdes), (ii) des zones épaisses, ou (iii) des zones cristallisées (comparées aux zones amorphes).

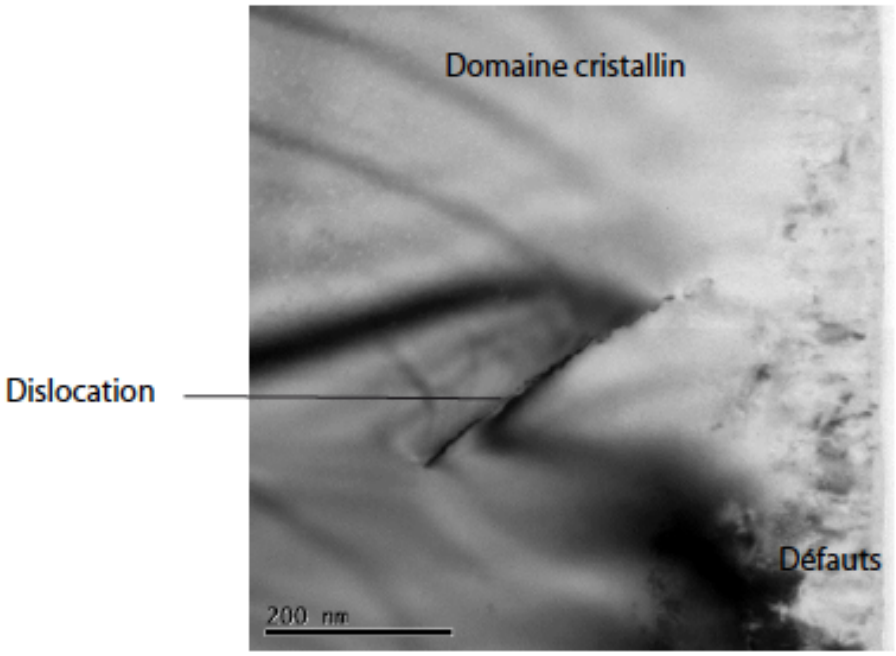


Figure II-19 : Image en champ clair d'une apatite (échantillon témoin)

Les images à haute résolution permettent de déterminer l'arrangement atomique: les matériaux cristallins font apparaître des successions de colonnes atomiques bien nettes (Figure II-20). La diffraction électronique renseigne également sur la nature cristallographique du matériau. Si le matériau est amorphe (par exemple, dans le carbone), le cliché est constitué d'une série d'anneaux concentriques diffus. En revanche, si le matériau est cristallisé, alors le cliché de diffraction est une succession de rangées de spots de diffraction, dont l'organisation est caractéristique du réseau cristallographique (figure II-21). La loi de Bragg permet de déduire du cliché de diffraction les paramètres de maille, et donc d'identifier le matériau.

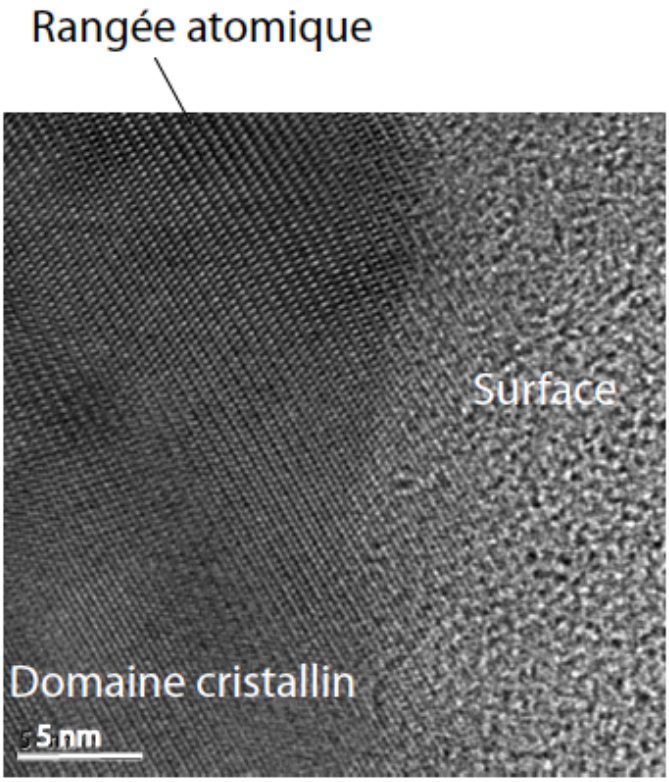


Figure II-20 : Image HRTEM d'une apatite irradiée à l'or (Au_3)

L'image a été prise juste sous la surface de la lame FIB. L'apatite est constituée d'un domaine cristallin et d'un domaine amorphe. Les rangées atomiques sont bien visibles dans l'apatite. Sur la partie droite de l'image c'est totalement amorphe.

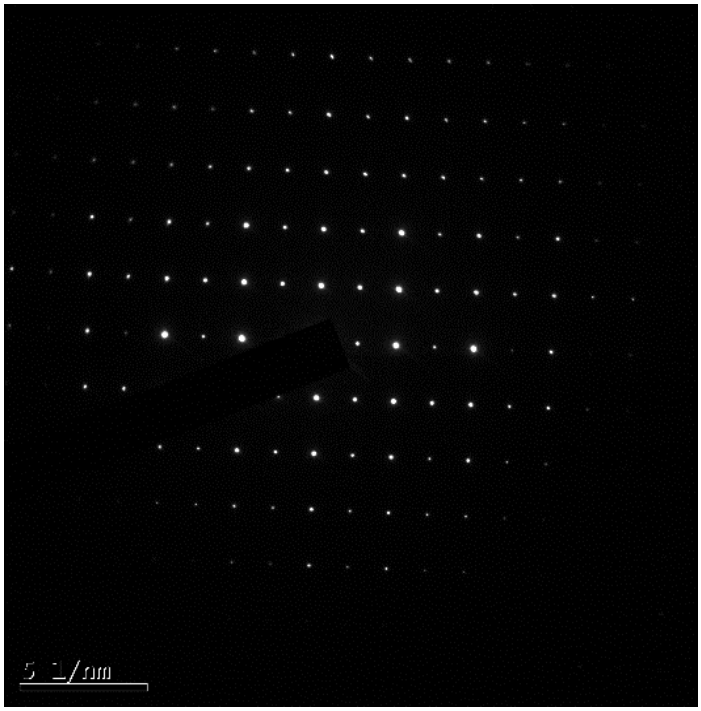


Figure II-21 : Cliché en sélection d'aire (SAED) de diffraction d'une apatite (échantillon témoin)

Ce cliché de diffraction montre que le matériau est bien cristallisé. L'indexation du cliché permet de montrer qu'il s'agit bien d'une apatite cristalline, et donc qu'elle n'est pas endommagée ni transformée.

6.2.4 Observation des défauts

Les défauts ponctuels ne distordent pas le réseau : ce sont des lacunes (atomes manquant), des atomes supplémentaires (atomes interstitiels), ou des atomes ayant été remplacés (défauts de substitution). Ils sont difficilement détectés en microscopie électronique, car trop petits. Cela dit, dans certains matériaux, avec les MET modernes, on peut arriver à les voir. Au contraire, les défauts de dimension 1 (dislocations) sont très remarquables sur les images MET : ils apparaissent plus sombres sur les images en champ clair ou déforment les lignes des images à haute résolution. L'imagerie combinée aux clichés de diffraction permet donc de caractériser les défauts cristallins, à l'exception des défauts ponctuels.

Le but du chapitre 6 sera de caractériser les défauts dans des cristaux d'apatites ayant subi une implantation d'Hélium ou d'Or. Pour cela, une lame témoin d'apatite ainsi que les lames ayant été implantées ont été observées et caractérisées successivement en termes de défauts et d'état de cristallinité grâce à l'imagerie en champ clair, l'imagerie à haute résolution, et les clichés de diffraction SAED.

6.3. Spectroscopie rétro-diffusée de Rutherford (RBS/C)

6.3.1 : Principe

Après l'implantation, certaines des sections ont été utilisées pour des expériences de spectroscopie. La spectroscopie rétro-diffusée de Rutherford est basée sur l'interaction élastique entre un projectile et une cible (Gentils 2003, Nguyen, 2013). Elle consiste à focaliser un faisceau d'ions He+ sur l'échantillon, et à exploiter la rétro-diffusion d'ions par ce matériau, mesurée par un détecteur (voir figure II-22). La quantité de particules rétrodiffusées dépend étroitement des propriétés physiques (présence de défauts) et chimiques (nature des atomes) du matériau. En effet, si un défaut atomique est présent (représenté en rouge figure II-22), il sera responsable de la rétrodiffusion du faisceau vers le détecteur. L'énergie du faisceau va de 100 keV à quelques MeV, permettant de sonder le matériau sur quelques micromètres d'épaisseur.

Hors canalisation, c'est à dire si le faisceau est orienté aléatoirement, l'énergie rétrodiffusée dépend de la masse de l'atome rencontré. Le spectre contient des pics d'énergie caractéristiques de la chimie du matériau (voir figure II-23).

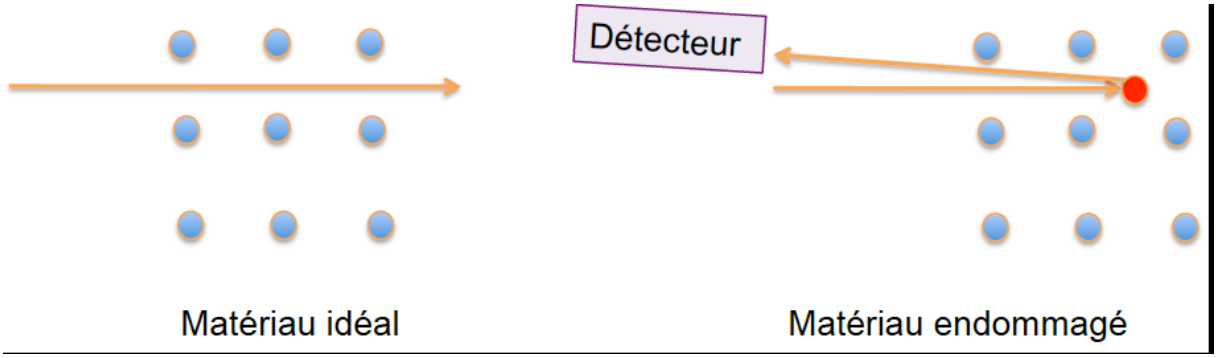


Figure II-22 : Principe de la technique de canalisation

La technique de canalisation consiste à orienter le cristal de façon à aligner le faisceau avec les rangées atomiques. Dans un matériau idéal (sans défauts), le faisceau circule donc entre les rangées atomiques. Au contraire, si le matériau est endommagé, le faisceau peut rencontrer un défaut (en rouge), et être rétrodiffusé. Le détecteur mesure alors une énergie rétrodiffusée non minimale.

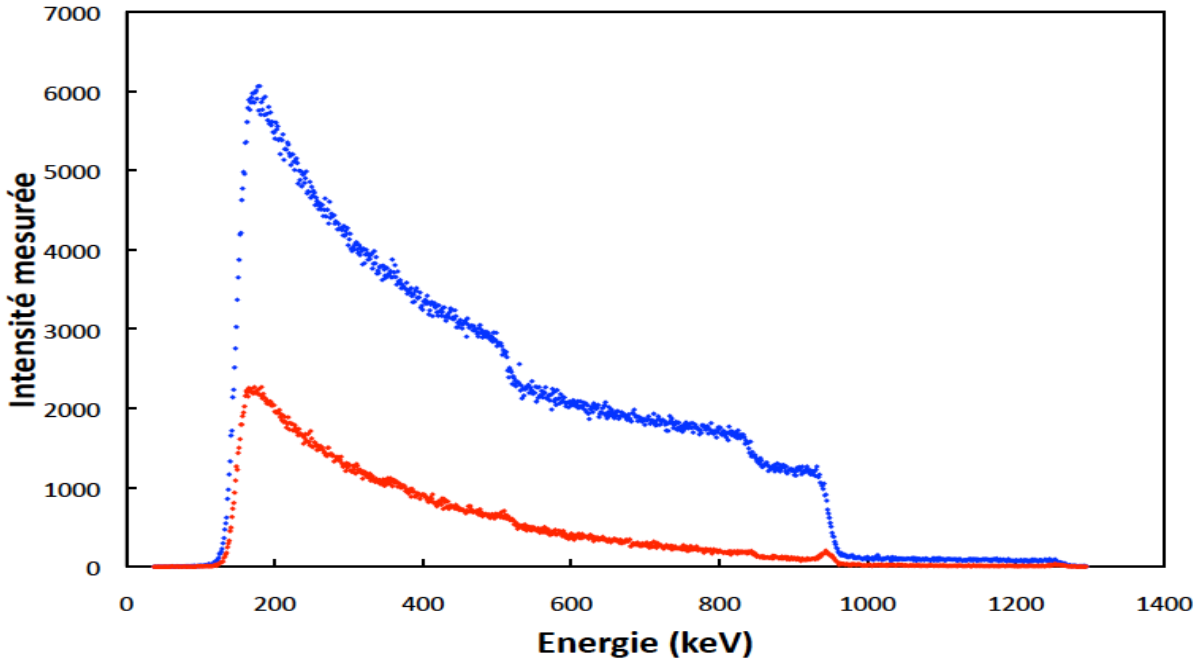


Figure II-23 : Spectres aléatoires et canalisés d'une apatite

Le spectre bleu a été acquis avec un faisceau orienté aléatoirement, tandis que le spectre rouge a été produit en conditions canalisées. L'intensité rétrodiffusée en canalisée en très inférieure à celle en conditions aléatoires : le spectre rouge est sous le spectre bleu.

Ainsi, le spectre aléatoire d'une apatite, représenté figure II-23 en bleu, contient : un pic à 500 keV, correspondant à l'excitation de l'O, une marche à 850 keV associée aux

atomes de phosphore, et une dernière marche à 900 keV associée à la présence de Ca. Cette technique permet donc d'analyser la composition de l'échantillon. Notamment, la présence de terres rares est visible dans certains échantillons par une marche à 1200 keV.

La technique de canalisation (RBS/C) permet de détecter et de localiser les défauts cristallins dans des monocristaux (Jagielski et al., 2004 ; Garrido et al., 2006 ; Jagielski et Thomé, 2007 ; Thomé et al., 2012). Le faisceau d'ion est canalisé sur le matériau : il est aligné avec l'axe de symétrie cristalline (les rangées cristallines). Pour cela, un goniomètre permet de faire varier l'orientation du cristal au degré près. En l'absence de défauts, le faisceau traverse les rangées cristallines sans encombre (figure II-22). En présence de défauts cristallins au contraire, une partie du faisceau est rétrodiffusée (figure II-22). L'énergie du faisceau rétrodiffusé augmente avec la concentration de défauts, et est nettement inférieure à celle obtenue aléatoirement. Pour chaque manipulation, l'on mesure le spectre hors canalisation, et en conditions canalisées, pour des énergies allant de 100 à 1000 keV.

Lors de l'expérience de canalisation, beaucoup moins d'événements de rétrodiffusion ont lieu que si le faisceau est orienté aléatoirement. Ainsi, l'énergie collectée par le détecteur en conditions canalisées est minimale. Le spectre en conditions canalisées est sous le spectre aléatoire. La figure II-23 présente ces deux spectres, pour un échantillon d'apatite témoin non implanté. Le rapport entre l'intensité mesurée en mode canalisé et celle mesurée en mode aléatoire est de 1/3.

En présence de défauts cristallins, l'énergie rétrodiffusée en conditions canalisées est plus élevée que pour un matériau idéal. Ainsi, le spectre d'une apatite endommagée est au-dessus de celui d'une apatite parfaite (entre les spectres rouges et bleus de la figure II-23). D'autre part, l'énergie des pics enregistrés en RBS/C permet de caractériser les atomes déplacés lors de l'endommagement. La RBS/C est donc une technique de quantification et de

caractérisation des défauts cristallins. L'interprétation des spectres canalisés permet de déterminer combien et quels atomes sont déplacés, et à quelle profondeur.

7. Références bibliographiques du chapitre

Barbarand J., Carter A., Wood I., Hurford T., 2003. Compositional and structural control of fission-track annealing in apatite. Chemical Geology 198 : 107-137.

Boyce J.W.., and Hodge K.V., 2005. U and Th zoning in Cerro de ercado (Durango, Mexico) fluoroapatite : insights regarding the impact of recoil redistribution of radiogenic 4He on (U-Th)/He thermochronology. Chemical Geology 219 (1)4) : 261-274.

Cheatham M.M., Sangrey W.F., White W.M., 1993. Sources of error in external calibration ICP-MS analysis of geological samples and an improved non-linear drift correction procedure. Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy 48(3) : 487-506.

Cros A., 2012. Influence des propriétés cristallochimiques de la calcite sur la diffusion de l'hélium et essai de datation (U-Th-Sm)/He de calcite filonienne et de remplissage de brèche. PhD Université Paris Sud.

Cros A., Gautheron C., Pagel M., Berthet P., Tassan-Got L., Douville E., Pinna-Jamme R. , Sarda P., 2014. 4He behavior in calcite filling viewed by (U-th)/He dating, 4He diffusion and crystallographic studies. Geochimica et Cosmochimica Acta 125 : 414-432.

Ehlers T.A., and Farley K.A., 2003. Apatite (U-Th)/He thermochronometry : methods and application to problems in tectonic and surface processes. Earth and Planetary Science Letters 206 : 1-14.

Evans N.J., Byrne J-P., Keegan J.T., Dotter L.E., 2005. Determination of Uranium and Thorium in Zircon, Apatite, and Fluorite : application to laser (U-Th)/He thermochronology. Journal of Analytical Chemistry 60 (12) : 1300-1307.

Ewing C.J.C., 1931. A comparison of the methods of heavy mineral séparation. Geological Magazine 68(3) : 136-140.

Gautheron C., Tassan-Got L., Ketcham R.A., Dobson K.J., 2012. Accounting for long alpha-particle stopping distances in (U-Th-Sm)/He geochronology : 3D modeling of diffusion, zoning, implantation, and abrasion. Geochimica et Cosmochimica Acta 96 : 44-56.

Garrido F., Nowicki L., Thomé L., 2006. Channeling investigation of the crystalline structure of U_4O_{9-y}. Phys. Rev.

Gentils A., 2003. Effets d'irradiation et comportement des produits de fission dans la zirone et le spinelle. PhD Université Paris Sud.

Gerin C., Gautheron C., Oliviero E., Bachelet C., Djimbi D.M., Seydoux-Guillaume A.M., Tassan Got L., Sarda P., Rocques J., Garrido F., 2017. Influence of vacancy damage on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scales. Geochimica et Cosmochimica Acta 197 : 87-103.

Giannuzzi L.A., and Stevie F.A., 1999. A review of focused ion beam milling techniques for TEM spécimen préparation. Micron 30 (3) : 197-204.

Gleadow A.J.W., and Lovering J.F., 1977. Geometry factor for external detectors in fission track dating. Nuclear Track Detection 1 (2): 99-106.

Gleadow A.J.W., 1981. Fission-track dating methods: what are the real alternatives ? Nucl. Tracks 5 (1-2): 3-14.

Green S., Duddy I.R., Gleadow A.J.W., Tingate P.R., Laslett G.M., 1986. Thermal annealing of fission tracks in apatite : 1. A qualitative description. Chemical Geology : Isotope Geoscience section 59 : 237-253.

Hurford A.J., Green P.F., 1981a. A reappraisal of neutron dosimetry and Uranium-238 λf values in fission-track dating. Nucl. Tracks 5 (1-2): 53-61.

Hurford A.J., Green P.F., 1981b. Standards, dosimetry and the Uranium-238 λf decay constant: a discussion. Nucl. Tracks 5 (1-2): 73-75.

Jagielski J., Gentils A., Thomé L., Nowicki L., Garrido F., Klaumünzer S., 2004. Channeling study of the damage induced in zirconia irradiated with High-energy heavy ions. Nuclear instruments and methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with materials and atoms 219-220 : 626-630.

Jagielski J., and Thomé L., 2007. Accumulation of radiation damage in spinel crystals : quantitative analysis and interprétation of RBS/C data. Nuclear Instruments and methods in Physics Research section B : Beam interactions with materials and atoms 261 (12) : 1155-1158.

Jarosevitch E., Nelen J.A., Norberg J.A., 1980. Reference samples for electron microprobe analysis. Geostandards and Geoanalytical Research 4(1) : 43-47.

Ketcham R.A., Gautheron C., Tassan-Got L., 2011. Accounting for long alpha-particle stopping distances in (U-Th-Sm)/He geochronology : refinement of the Baseline case. Geochimica et Cosmochimica Acta 75 : 7779-7791.

Menguy N., 2016. Transmission electron microscopy. Master training at University Pierre and Marie Curie. *www-ext.impmc.upmc.fr/~menguy/PDFs/5P440/5P440_2016_C5_TEM_A.pdf*

McDowell F.W., McIntosh W.C., Farley K.A., 2005. A precise 40Ar-39Ar reference age for the Durango apatite (U-Th)/He and fission-track dating standard. Chemical Geology 214 (3) : 249-263.

Nguyen T.H., 2013. Channeling investigation of the behaviour of urania Under low-energy ion irradiation. PhD Université Paris Sud.

Ouchani S., 1997. Etude par faisceaux d'ions des effets de la désintégration alpha sur la fluoroapatite: implications pour le stockage des déchets nucléaires. PhD Univ. Paris Sud XI, Orsay., 166 pp.

Raczek I., Stoll B., Hofmann A.W., Jochum P., 2001. High-precision trace element data for the USGS reference materials BCR-1, BCR-2, BHVO-1, BHVO-2, AGV-1, AGV-2, DTS-1, DTS-2, GSP-1, and GSP-2 by ID-TIMS and MIC-SSMS. Geostandards and Geoanalytical Research 25 : 77-86.

Rahn M., 1994. Incipient Metamorphism of the Glarus Alps : Petrology of the Taveyannaz Sandstone and fission track dating. PhD

Rahn M., 2005. A revised late-stage exhumation history of the Aar and Gotthard crystalline ocks based on FT data. 3d Swiss Gescience Meeting, Zurich.

Reed S.J.B., 1975. Electron microprobe analysis.

Reed S.J.B., 2005 Electron Microprobe analysis and scanning electron microscopy in Geology. Second édition.

Samuel G.F., 1936. Magnetic separation methods and means. US Patent 2,056, 426.

Sinclair D.J., Kinsley L.P.J., McCulloch M.T., 1998. High resolution analysis of trace elements in corals by laser ablation ICP-MS. Geochimica et Cosmochimica Acta 62 : 1889-1901.

Thomé L., Moll S., Debelle A., Garrido F., Sattonay G., Jagielski J., 2012. Use of channeling for the study of radiation effects in nuclear materials. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section B : Beam interactions with Materials and Atoms 290 : 6-12.

Valla P., Rahn M., Shuster D.L., Van der Beek P.A., 2016. Multi-phase late-Neogene exhumation history of the Aar massif, Swiss Central Alps. Terra Nova 28 : 383-393.

Vermeesch P., Seward D., Latkoczy C., Wipf M., Güntner D., Baur H., 2007. α-emitting mineral inclusions in apatite, their effect on (U-Th-/He ages, and how to reduce it. Geochimica et Cosmochimica Acta 71 : 1737-1746.

Watkins R.E.J., Rockett P., Thoms S., Clampitt R., Syms R., 1986. Focused ion beam milling. Vacuum 36 : 961-967.

Willaime C., 1987. Initiation à la microscopie électronique par transmission. Société Française de Minéralogie et de Cristallographie, 437 pp. insu-00849927

Williams D.B., and Carter C.B., 1996. Transmission electron microscopy. Springer

PARTIE II : RETENTION D'HELIUM ET DISPERSION DES AGES (U-TH-SM)/HE SUR APATITE – ETUDE DE CAS NATURELS

CHAPITRE 3 : RETENTION ACCRUE D'HELIUM ET DISPERSION DES AGES DANS LE MASSIF ARMORICAIN : LE CAS DU TREGOR 129

1. INTRODUCTION : CHOIX DU SITE D'ETUDE 129

2. CONTEXTE GEOLOGIQUE 130
2.1. LOCALISATION DE L'ETUDE 130
2.2. HISTOIRE(S) GEOLOGIQUE(S) 133
2.3. DEVELOPPEMENTS RECENTS : ETUDE DES PALEO-SURFACES MESO-CENOZOÏQUES 137
2.4. LE PLUTON DE PLOUMANAC'H 139

3. APPORTS D'UNE ETUDE THERMOCHRONOLOGIQUE DU MASSIF 143
3.1 AMELIORATIONS METHODOLOGIQUES 143
3.2 INTERET GEOCHIMIQUE D'UNE APPROCHE DE « BIG DATA » 143
3.3 INTERET GEOLOGIQUE : PRECISER L'HISTOIRE THERMIQUE 144

4. APPORTS SUR LE PIEGEAGE D'HELIUM DANS LES DEFAUTS 146

5. APPORTS SUR L'HISTOIRE THERMIQUE DU MASSIF ARMORICAIN 195
5.1. INVERSION DES DONNEES TRACES DE FISSION 195
5.2. COMBINAISON AFT ET AHE 198

6. CONCLUSION GENERALE 202

7. BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 205

CHAPITRE 4: ETUDE THERMOCHRONOLOGIQUE DES MASSIFS DE L'AAR ET DES AIGUILLES ROUGES, ALPES SUISSES 209

1. INTRODUCTION : CHOIX DU SITE D'ETUDE 209

2. EVOLUTION TECTONIQUE DE LA VALLEE DU RHONE SUISSE 212

3. DONNEES THERMOCHRONOMETRIQUES DU MASSIF DE L'AAR 214

4.APATITE (U-TH-SM)/HE THERMOCHRONOMETRY IN THE AIGUILLES ROUGES AND AAR MASSIFS (SWITZERLAND): HOW TO INTERPRET DATA DISPERSION? 221

5. BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 255

Chapitre 3 : Rétention accrue d'hélium et dispersion des âges dans le Massif Armoricain : le cas du Trégor

1. Introduction : choix du site d'étude

Comme indiqué dans l'introduction, l'utilisation de la thermochronométrie (U-Th-Sm)/He sur apatite dans les domaines de socle est intéressante d'un point de vue géologique, car elle permet de déterminer l'histoire thermique. Celle-ci peut être polyphasée, avec plusieurs phases de dénudation et d'enfouissement, qui peuvent être detectées par l'utilisation de la thermochronometrie basse température. Notamment, la thermochronométrie montre que des zones qui en apparence sont stables, comme les cratons par exemple, ne le sont pas en réalité car elles ont subi plusieurs phases d'enfouissement et d'érosion.

Nous avons choisi de travailler sur une zone d'étude considérée comme relativement stable géologiquement. En France, les plus anciennes roches contiennent des zircons datant de 2.2 ± 0.044 Ga (ages U-Pb sur zircon ; Piton, 1985) : elles affleurent au niveau du socle Icartien, au sein de la chaîne varisque formée il y a 600 Ma. Notre choix s'est porté sur le Massif Armoricain, qui inclut ces roches anciennes, ainsi que des intrusions de granites Hercyniens. La zone d'étude est donc une ancienne chaîne de montagne qui a été érodée, pénéplanée, et ne présente actuellement pas d'activité tectonique significative. De plus, la zone est intrudée par de nombreux plutons de granitoïdes hercyniens dont la lithologie est adaptée à la thermochronométrie basse température sur apatite.

L'objectif principal de l'étude est méthodologique. Nous avons choisi d'échantillonner un pluton de faible taille (rayon d'environ 6 km), dont l'altitude est constante (à quelques

mètres à dizaines de mètres au-dessus du niveau de la mer), hétérogène d'un point de vue lithologique, et qui n'est traversé par aucune faille majeure : il s'agit du pluton de Ploumanac'h, dans les Côtes d'Armor. Ainsi, cela permet de prélever des échantillons qui ont subi une même histoire thermique. Nous avons également échantillonné une granodiorite dans le batholithe du Trégor, au sein duquel est intrudé le pluton de Ploumanac'h (échantillon PL10). Le but est d'étudier la variabilité des âges (U-Th-Sm)/He obtenus pour cette histoire thermique commune. L'étude thermochronométrique de ce pluton nous permettra donc d'étudier le lien entre les âges thermochronologiques et la nature pétrographique ou la chimie des apatites et le contenu en uranium effectif eU. Cela est présenté dans les sections 3 et 4 de ce chapitre.

Le deuxième objectif de ce chapitre est géologique. La thermochronologie permettra de mieux contraindre l'histoire de la dénudation du Massif Armoricain. Une des questions à résoudre est de savoir depuis quand le massif a été à l'affleurement. Plusieurs cycles de transgression – régression marine ont été enregistrés au Mésozoïque. Une transgression eustatique d'ordre 1 a eu lieu au Jurassique, avec un maximum à la fin du Jurassique. Le Massif Armoricain était-il une île à cette époque, ou était-il immergé ? Peut-on contraindre l'ampleur des éventuelles phases de sédimentation sur le massif ? Nous tenterons de répondre à ces questions dans la section 5 de ce chapitre.

2. Contexte géologique

2.1. Localisation de l'étude

Le massif armoricain, situé à l'ouest de la France (figure III-1), est délimité par le bassin de Paris à l'Est, la mer de la Manche au Nord, et l'Océan Atlantique au sud et à l'ouest. Il est constitué d'un socle de roches magmatiques et métamorphiques, recouverts par des

métasédiments – l'ensemble ayant été déformé et modelé par l'orogenèse varisque (Peucat, 1986 ; Pin et Peucat, 1986 ; Chantraine et al., 2001 ; Ballèvre et al., 2009, 2012).

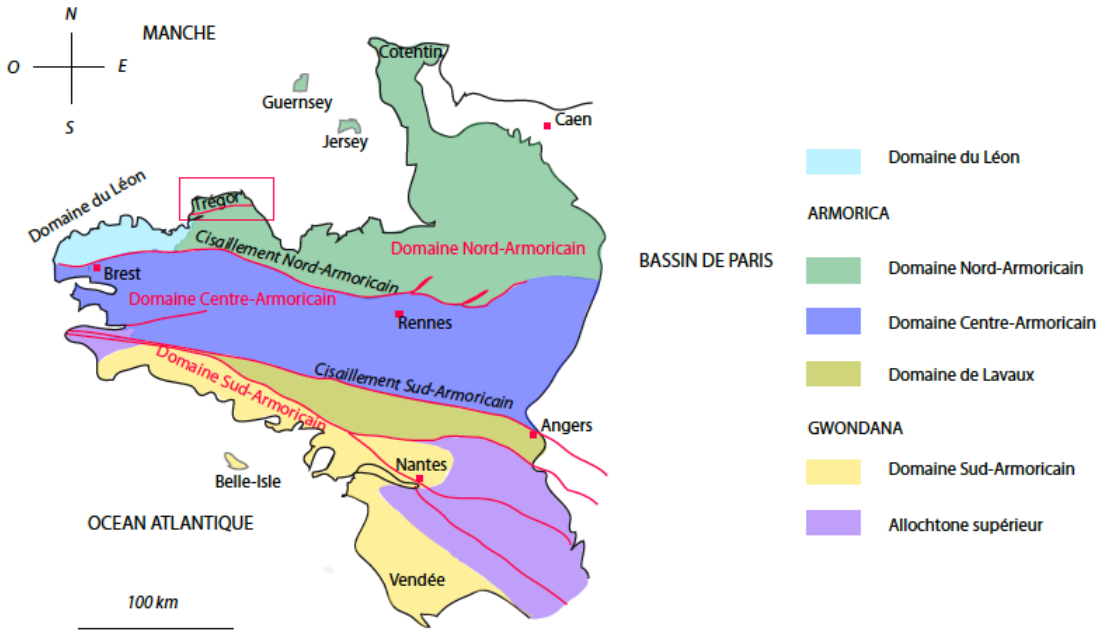


Figure III-1 : Schéma structural du Massif Armoricain, et localisation du Trégor (d'après Ballèvre et al., 2009).

Le massif armoricain est délimité par le Basin de Paris, l'Océan Atlantique, et la Manche. Il est subdivisé en 4 unités, délimitées par les principales zones de cisaillement : les cisaillements nord-armoricain et sud-armoricain. Le Trégor est localisé au nord-ouest du Domaine Nord-Armoricain, délimité au sud par un cisaillement orienté O-E. En rouge : zones de cisaillement.

Il est affecté par deux cisaillements de très grande taille, recoupant l'ensemble du massif en direction WNW-ESE : le cisaillement Sud Armoricain, et le cisaillement Nord-Armoricain (figure III-1). Ces deux cisaillements délimitent trois blocs du Massif Armoricain (Ballèvre et al., 2012) : (i) le domaine Sud-Armoricain, du sud de Nantes jusqu'en Vendée ; (ii) le domaine Centre Armoricain, et (iii) le domaine Nord-Armoricain, de Brest à la Normandie (figure III-1).

.

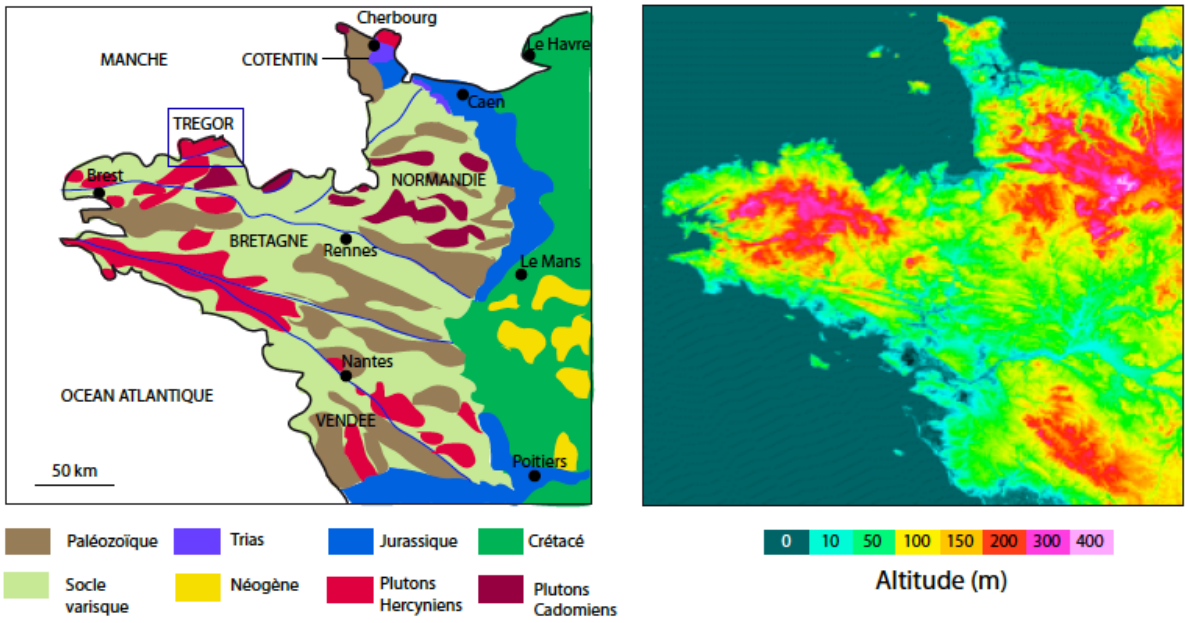


Figure III-2 : Cartes géologique et topographique du Massif Armoricain (d'après la carte au 1 :1 000 000, BRGM 1996).

D'après la carte géologique de France du BRGM et topographic-map.com. La carte illustre les dépôts sédimentaires et les intrusions plutoniques du Massif Armoricain et la bordure du bassin de Paris. Le Trégor est encadré. Les altitudes n'y dépassent pas 50 m.

Le Trégor est localisé dans le bloc Nord Armoricain (figures III-1, III-2). Il est constitué d'un complexe volcano-plutonique daté à ~ 615 Ma (Graviou et al., 1984 ; Chantraine et al., 2001), le batholithe du Trégor, intrudé lui-même dans le socle Icartien (≈2 Ga, Rb-Sr, Adams, 1976 ; U-Pb sur zircon, Auvray et al., 1980 ; Vidal et al., 1981). Le Trégor fait partie de la côte de granite rose, qui affleure en bord de Manche à moins de 50 m d'altitude (figure III-2). Ces granites roses font partie des nombreux plutons Hercyniens intrudés dans le socle du Massif Armoricain, incluant des granites roses, des leucogranites comme ceux décrits par Bernard-Griffiths et al. (1985) et par Ballouard et al. (2015a, b, 2017), et des granites gris, cf. Carron et al. (1994).

Le pluton de Ploumanac'h est un de ces plutons granitiques, intrudé au sein du batholithe du Trégor, et daté à 300± 5 Ma ou 293 ±15 Ma (respectivement par Adams, 1967 et Vidal, 1976 par Rb/Sr). Il est composé d'un granite rose externe, à large phénocrystaux, entourant le cœur du pluton constitué de granites blancs à grains fins (Barrière, 1977).

2.2. Histoire(s) géologique(s)

Quasiment aucun sédiment ne recouvre le massif. Les seuls sédiments méso-cénozoiques présents se trouvent dans les bassins adjacents (Bassin de Paris à l'est, Bassins offshore dans la Manche), et datent du Trias au Quaternaire. Du fait de cette absence de sédiments onshore, deux scénarios sont envisageables : soit (i) le massif est resté émergé après la pénéplénation post-hercynienne, soit (ii) le massif a été enfoui sous des sédiments lors d'épisodes transgressifs, sédiments qui auraient ensuite été détruits par l'érosion. Ci-après, nous synthétisons la chronologie des dépôts et des périodes d'érosion ayant affecté le Massif Armoricain depuis le Trias.

2.2.1 Le Trias : une période d'érosion

Le Trias affleure largement à l'est de la France (à l'est du Bassin de Paris). Pendant le Trias, le bassin de Paris se remplit de sédiments continentaux et subside (Bourquin et al., 2002). Néanmoins, les séries s'amincissent vers l'ouest du Bassin de Paris. Des sédiments continentaux datant du Trias affleurent dans le Cotentin, et les reconstructions sismiques ou d'après forage suggèrent la présence de dépôts permo-triassiques offshore en fond de Manche et dans le bassin des Western Approaches (Ziegler et al., 1987), bassin situé dans l'océan Atlantique à l'ouest des îles britanniques, en Manche Occidentale.

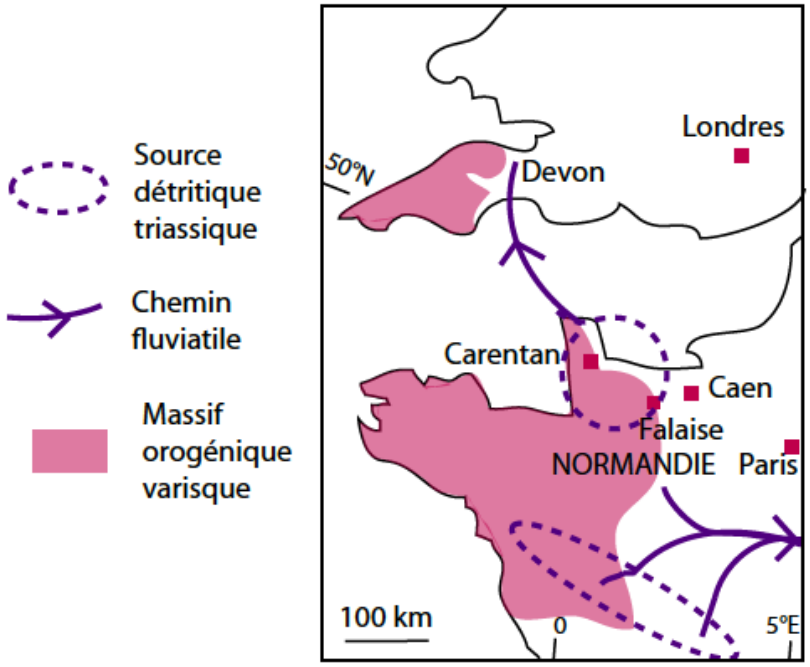


Figure III-3 : Carte des sources fluviatiles du Trias inférieur (d'après Ballèvre et al., 2012).

Au Trias inférieur, deux sources détritiques étaient issues de l'érosion du Massif Armoricain. La première provient de Normandie et du Cotentin, dans la région de Falaise et de Carentan, et est responsable de la présence de dépôts continentaux dans la Manche et sur la côte du Devon. La deuxième source est la zone de cisaillement Sud-Armoricain, qui a irrigué le Bassin de Paris vers l'est, jusque dans les Vosges. Le traçage des sources et des paléocourants est fait sur des critères sédimentologiques (distribution des faciès, orientation des litages, variations séquentielles d'épaisseurs, etc.).

Ces roches détritiques sont interprétées par Ballèvre et al. (2012) comme des dépôts issus de l'érosion d'une source continentale en Normandie (figure III-3). Ils indiqueraient une phase d'érosion fluviatile éliminant les dépôts triassiques continentaux de la Normandie vers les bassins plus au nord et de la Vendée vers l'est (Ballèvre et al., 2012, figure III-3). Ainsi, le Massif Armoricain aurait subi une période d'érosion au Trias.

2.2.2 Le Jurassique : une période de sédimentation marine

Une grande partie de l'Europe, dont le bassin de Paris, a été immergée et affectée par une sédimentation marine au Jurassique, à la faveur d'une transgression marine d'ordre 1. Dans le bassin de Paris, les dépôts marins datent de l'Hettangien au Tithonien. A l'Est de l'Ile de France, ils sont épais de 500 m à 1.8 km sous le Soissonais entre Paris et Reims (données de forage BRGM, InfoTerre ; Guillocheau et al., 2000). Sur la bordure du bassin, l'épaisseur est beaucoup plus faible (environ 200 m à la limite des Ardennes). Ces dépôts affleurent sur la bordure ouest du Bassin de Paris (figure III-2), et sont discordants sur le Trias sur toute la bordure ouest du bassin de Paris.

Aucun témoin sédimentaire jurassique n'affleure au cœur du Massif Armoricain. Néanmoins, en basse Normandie se trouvent des sédiments datant au moins du Pliensbachien-Toarcien (Dugué et al., 2007a, b), et dans le Cotentin se succèdent des alternances marno-calcaires marines datant de l'Hettangien liées à des cycles de transgression/régression jurassiques (Dugué et al., 2005). De plus, certains auteurs envisagent l'existence d'une couverture Jurassique au cœur du Massif Armoricain (dans le bassin de Rennes, Wyns et al., 2002), d'une épaisseur de 200-250 m (Guillocheau et al., 2003). En mer (au nord de la faille d'Ouessant, Guillocheau et al., 2003 et en Manche occidentale, Ruffel, 1995), des séries jurassiques auraient des épaisseurs de 800 m au moins..

2.2.3 Le Crétacé : une période d'exhumation

Un épaulement de rift aurait ensuite exhumé une partie du massif au début du Crétacé (Berriasien à Aptien - Guillocheau et al., 2003). L'accrétion océanique liée à l'ouverture du Golfe de Gascogne date de l'Aptien. Le Crétacé inférieur est ainsi une période de dénudation importante (Bessin et al., 2014). Cependant, cet épisode de soulèvement laisse rapidement place à une phase d'aplanissement.

Dès l'Albien, la bordure Sud-Armoricaine est le siège d'une sédimentation de craie, dans un environnement de dépôt de type plaine côtière (Guillocheau et al., 2003). Des dépôts Cénomaniens sont également retrouvés en Vendée, en Mayenne, en Manche (Poncet, 1961 ; Gautier 1970 ; Durand et al., 1973 ; Louail 1984 ; Juignet et Louail 1987), ainsi que sur la bordure du bassin de Paris et dans le Cotentin (Poncet 1961 ; Durand et al., 1973 ; Louail et Moreau, 1979). Dans la province du Léon et le Finistère, au nord-ouest du Massif (figure III-1), se trouvent des séries carbonatées datant du Campanien au Maastrichtien (Andreieff et al., 1972). Louail (1984) et Guillocheau et al. (2003) interprètent ces dépôts comme les témoins d'un ennoiement du Massif Armoricain partiellement aplani à cette période. Néanmoins, Deunff (1985) suggère que les affleurements de craie sur la côte Nord du Finistère ne sont en fait pas en place mais résulteraient de délestages opérés par bateau.

2.2.3 Le Cénozoïque : phase de dénudation

Une dernière phase de surrection a lieu à partir de la fin du Crétacé (au Maastrichtien), en réponse à des épisodes de déformation et d'uplift des Pyrénées en lien avec la convergence N-S de l'Afrique et de l'Eurasie. Cette compression est marquée par exemple par une inversion tectonique offshore, au sud-ouest du Massif Armoricain. La phase pyrénéenne atteint son paroxysme à l'Eocene moyen et terminal (Guillocheau et al., 2003). L'enregistrement sédimentaire éocène - notamment des silcrètes près du Mans (Crié, 1878) et en Bretagne (Estéoule-Choux, 1970) - confirme que la période tardi-Crétacé et Eocène constitue une phase de dénudation (Bessin et al., 2014).

Suivent des épisodes de déformation Paléogène et Miocène. Les archives sédimentaires Pléistocènes sont rares dans le Massif Armoricain, mis à part dans le Cotentin et à l'embouchure de la Vilaine, mais l'histoire Quaternaire du massif n'est pas l'objet de notre étude.

2.3. Développements récents : étude des paléo-surfaces méso-cénozoïques

Comme indiqué en section 2.1, la quasi-absence de sédiments onshore peut résulter soit d'une absence totale de sédimentation (le massif étant émergé), soit de l'action d'une ou plusieurs phases de dénudation majeures ayant érodé les sédiments. Les transgressions marines enregistrées dans le Cotentin ou à la bordure ouest du Bassin de Paris ont-elles ennoyé le Massif tout entier, ou étaient-elles limitées aux bassins adjacents ?

Guillocheau et al. (2003) sont en faveur de cette première hypothèse, et suggèrent que le Massif Armoricain aplani au Trias a été recouvert de sédiments jurassiques. L'argument décisif, s'il est avéré, est la présence de séries jurassiques sous le bassin de Rennes (Wyns et al., 2002). Néanmoins, Guillocheau et al. (2003) indiquent qu'un forage profond dans le bassin de Rennes reste à effectuer pour confirmer l'interprétation des lignes sismiques de Wyns et al. (2002).

Bessin et al. (2014) soutiennent également ce scénario. Malgré l'absence de réel enregistrement sédimentaire, les auteurs datent les surfaces de pénéplanation du Massif Armoricain en utilisant leur morphologie, et la présence de pédiments - produits silicifiés de l'érosion des paléosols. Dans le plateau de Basse Normandie par exemple, des pédiments sont scellés par des oolithes silicifiées à l'Aalénien et au Bathonien (Doré et al., 1977 ; Kuntz et al., 1989). Une paléosurface jurassique aurait donc été fossilisée dans le paysage, au-dessus de trois paléosurfaces issues de la pénéplanation Triassique de la chaîne Hercynienne (Bessin et al., 2014). La cartographie des surfaces de pénéplanation montre que les pédiments jurassiques sont situés en hauteur à l'ouest du domaine centre-Armoricain, comme illustré figure III-4.

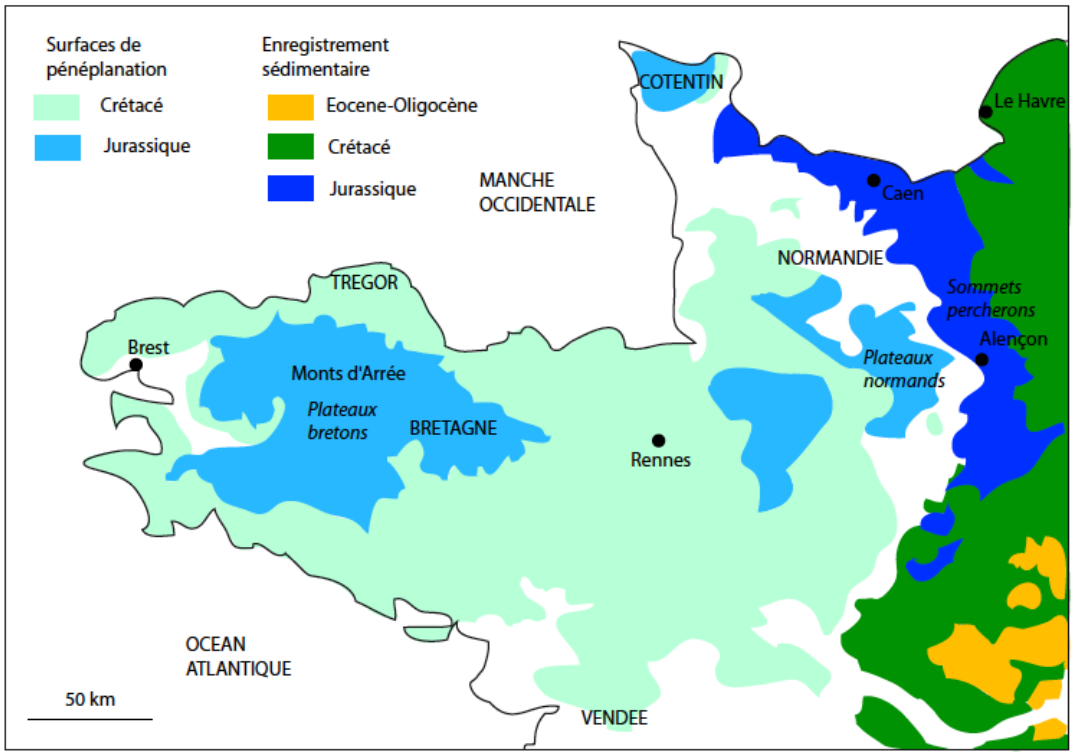


Figure III-4 : Répartition des paléosurfaces du Massif Armoricain (d'après Bessin et al., 2014).

Les enregistrements sédimentaires se trouvent à la bordure ouest du Bassin de Paris. Les surfaces de pénéplanation ont été datées de façon relative, grâce à la présence de pédiments altérés. La matrice de ces pédiments, ou les clastes sont datés dans les notices de cartes géologiques notamment. Ainsi, la surface de pénéplanation du cœur de la Bretagne serait anté-Jurassique (>170-190 Ma), et le Trégor ferait partie d'une surface de pénéplanation pré-Cénomanienne (>100 Ma).

D'autres paléosurfaces sont datées du Crétacé (figure III-4), plus précisément de l'anté-Cénomanien (>100 Ma). Pour proposer ce modèle d'âge, Bessin et al. (2014) extraient de la bibliographie la présence : (i) de clastes de microfossiles et de craie crétacés remaniés dans des sédiments plus récents (e.g. Brabant, 1965 ; Bauer et al., 2011), dont des sédiments pléistocènes (e.g. Bonissent, 1870 ; Dangeard, 1928) ; (ii) de quelques dépôts in-situ mentionés en section 2.2.3 ; et (iii) de fossiles d'âge crétacé silicifiés (e.g. Baize, 1998). Ces restes remaniés et/ou dégradés sont retrouvés sur les bordures nord et sud du Massif

Armoricain, ainsi qu'au cœur du massif (voir la carte figure III-4). A proximité du Trégor, Bessin et al. (2014) rapportent la présence d'un dépôt in-situ de craie ou d'argiles fossilifères (d'après Deunff, 1953), ainsi que des restes de silex du crétacé supérieur remaniés sur la plage (Dangeard, 1928 ; Bourcart, 1950). Ainsi, Bessin et al. (2014) suggèrent donc que la majeure partie du Massif Armoricain a été enfouie sous des sédiments du Crétacé maintenant altérés ou ayant disparu totalement. Cependant, Deunff (1985) indique que les dépôts de craie et de silex de la côte Nord du Finistère pourraient en fait résulter de délestages opérés par des bateaux.

2.4. Le pluton de Ploumanac'h

Le Trégor est constitué du batholithe du Trégor (figure III-5B), formé d'un complexe de massifs de granodiorite, monzogranite, et granites (Auvray 1979 ; Graviou 1984), ainsi que d'enclaves et filons basiques. Les granitoïdes sont contemporains, et issus de magmas co-génétiques. Ce complexe est daté à 614±17 Ma (U-Pb, Graviou et al., 1984), et les intrusions les plus tardives – des leucogranites- sont datées à 557 ±15 Ma (Rb/Sr, Auvray 1979).

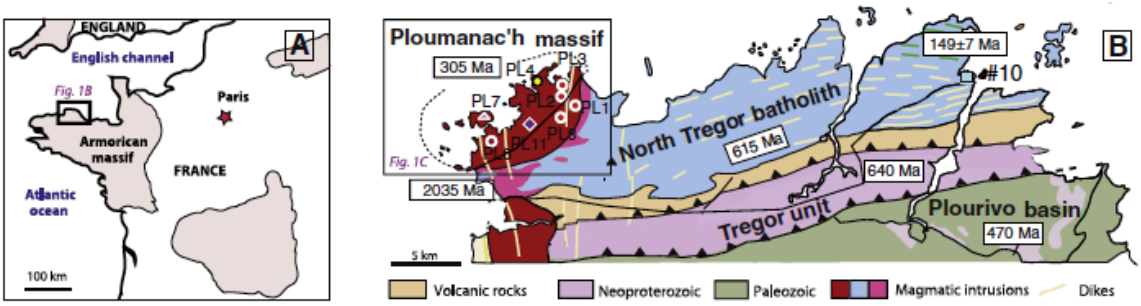


Figure III-5 : Localisation du massif du Trégor nord et du pluton de Ploumanac'h (Recanati et al., 2017).

A : Localisation de la côte du Trégor. B : Carte géologique de la côte du Trégor. Le Trégor est constitué d'une unité néoprotérozoïque chevauchant un complexe de roches volcaniques, et d'intrusions magmatiques. Le pluton de Ploumanac'h est intrudé à l'Hercynien au sein de ce socle, jouxtant les gneiss Icartiens (2 Ga). L'échantilon PL10 a été collecté à l'extrême Est du batholithe du Nord-Trégor (en bleu), constituant le socle du pluton hercynien de Ploumanac'h.

Le pluton de Ploumanac'h est un complexe granitique intrudé dans ce batholithe (figure III-5B). Il est daté à 303±15 Ma (Rb/Sr, Vidal et al., 1980). Les granites sont altérés, et forment des chaos granitiques (figure III-6). Quelques intrusions basiques recoupent la couche externe.

La cartographie du pluton de Ploumanac'h a été réalisée par Barrière et al. (1977). Il est formé d'auréoles concentriques de différents granites de trois faciès principaux (figure III-7). La couche la plus externe est constituée de granites roses selon deux faciès : le granite de La Clarté, et le granite de Traouiéros. Il s'agit de syéno- à monzo-granites à larges cristaux (ex : PL2 figure III-7). Puis vient une auréole de granites roses à grains plus fins, dits granites intermédiaires. Enfin, au centre du pluton se trouvent les granites à grain fin de l'île Grande : un leucogranite (ex : PL7 figure III-7) et un granite à deux micas (ex : PL11 figure III-7).

Les mécanismes de genèse et les processus de mise en place du complexe de Ploumanac'h sont discutés par la thèse de Barrière (1977). L'architecture du complexe suggère qu'il y aurait un magma basique qui en remontant selon un diapir aurait progressivement été contaminé en matériel crustal et acidifié, donnant des granites à muscovite et à cordiérite. La forte température du magma basique aurait induit la fusion partielle de la croûte, donnant naissance aux granites hyper-alumineux de l'île Grande (Barrière et al., 1977). La profondeur de cristallisation du pluton serait de ~8 km (Barrière et al., 1977). La dynamique du processus combine une injection en force d'un magma sous pression, qui rompt la croûte, et des intrusions passives à la suite d'effondrements successifs du complexe (Barrière et al., 1977). Selon Albarède et al. (1980), trois pulses de magmas non co-génétiques ont formé le complexe : un jeune magma basaltique d'affinité alcaline, un magma ayant donné des granites à biotite formant la majeure partie de l'intrusion, et un magma à l'origine de granite à deux micas à cordiérite, en dykes.

Figure III-6 : Photographie de chaos de granite rose à Ploumanac'h

Cette photographie montre des chaos de granites roses, due à l'érosion d'un granite plus massif. Cliché : Y. Missenard

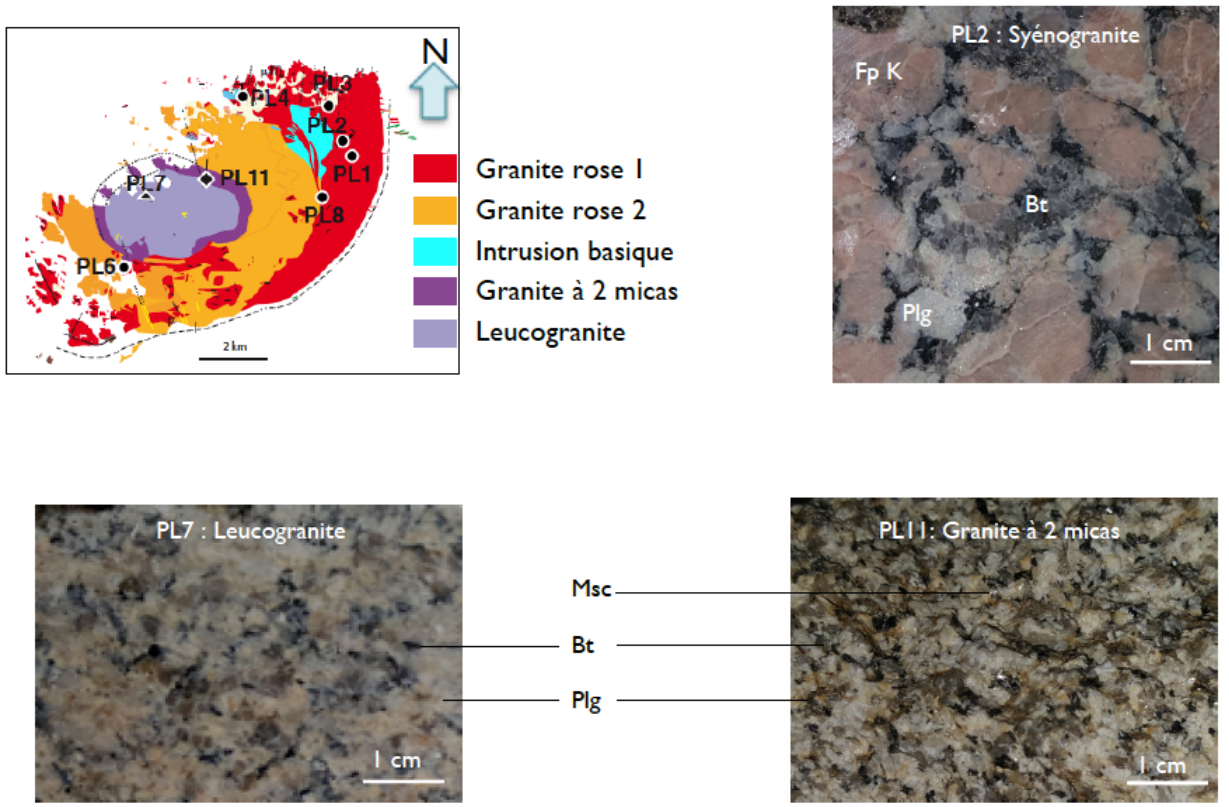


Figure III-7 : Pétrologie du pluton de Ploumanac'h et photographie des échantillons

La carte présentée en haut de la figure 7 est adaptée de celle de Barrière en 1977, et représente les différentes auréoles concentriques du pluton de Ploumanac'h. En-dessous, l'on présente les photographies de trois de nos échantillons (réalisées par A. Recanati), représentatifs des différents faciès rencontrés : le granite de la Clarté (échantillon PL2), le granite à 2 micas (couche externe du granite de l'île grande, échantillon PL11), et le leucogranite de l'île Grande (échantillon PL7).

3. Apports d'une étude thermochronologique du Massif

3.1 Améliorations méthodologiques

L'intérêt de l'étude est de tester l'ampleur de la rétention de l'hélium dans l'apatite pour une histoire thermique donnée Nous avons également testé un nouveau modèle thermochronologique : le modèle de Gerin et al. (2017). Dans ce modèle, plusieurs paramètres peuvent être modulés : l'énergie de piégeage de l'hélium dans les défauts (ΔEa) et la vitesse de cicatrisation des défauts (rmr_0'). Nous avons ainsi pu déterminer les paramètres de la diffusion, en termes de dommages d'irradiation, qui sont nécessaires pour reproduire les données.

D'autre part, des tests préliminaires sur les apatites ont montré une grande variabilité des contenus en eU et des compositions chimiques des grains. Nous pourrons donc répondre à la question suivante : la chimie influence-t-elle les âges hélium et traces de fission (comme indiqué chapitre 1) ? L'ensemble a donné lieu à une publication à Chemical Geology, intitulée « Helium trapping in apatite damage : insights from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoid lithologies » (Recanati et al., 2017). Celle-ci est présentée dans la section 4 de ce chapitre.

3.2 Intérêt géochimique d'une approche de « Big data »

L'étude du pluton de Ploumanac'h a été l'occasion d'acquérir une large base de données thermochronologiques sur un même petit pluton (d'un rayon d'environ 6 km), ainsi que sur un échantillon du batholithe ayant subi la même histoire thermique (PL10). Ainsi, nous avons caractérisé un ensemble de paramètres physiques (eU, densité de dommages alpha, Th/U, etc…), et chimiques (composition chimique élémentaire des apatites dans les cations majeurs, mineurs, et terres rares) sur chaque grain d'apatite. Une quantité relativement

élevée de données a donc été acquise, sur environ 2 à 6 grains par échantillon : 5 paramètres liés à l'endommagement des cristaux et 22 paramètres chimiques ont été mesurés ou estimés concomitamment avec l'âge, sur une quarantaine de cristaux.

Cette approche de caractérisation de chaque apatite a été exploitée de façon interdisciplinaire, par des techniques informatiques d'apprentissage applicables aux grands jeux de données. Nous avons cherché à savoir quels sont les paramètres qui influencent ou non les âges AHe (et donc la rétention d'hélium dans les cristaux d'apatite). Pour cela, nous avons exploré des arbres de prédiction des âges thermochronologiques AHe (chapitre 5), grâce à une collaboration avec le laboratoire d'informatique de Paris Nord (LIPN, Université Paris 13). Un article est en cours de préparation sur le sujet.

3.3 Intérêt géologique : préciser l'histoire thermique

Comme indiqué précédemment deux scénarii géologiques sont envisageables pour l'histoire du Massif Armoricain. Le premier consiste en une unique phase d'exhumation et d'érosion au Trias, depuis laquelle le pluton est resté en surface. Le second scenario, appuyé par les interprétations de Guillocheau et al. (2003) et Bessin et al. (2014), consiste en une histoire non monotone incluant plusieurs phases successives de dénudation et d'enfouissement. En effet, le Trias et la fin du Crétacé seraient des périodes d'érosion, tandis que le Jurassique et l'Albien seraient des périodes de subsidence et de sédimentation.

Ces deux scénarios se traduisent par deux histoires thermiques envisagées, synthétisées figure III-8. En réalité, le scénario 2 contient une multitude de possibilités car l'ampleur des réchauffements jurassique et crétacé est inconnue, comme la date précise de l'exhumation permo-triassique. Comme indiqué chapitre 2, la méthode des traces de fission sur apatite permet de façon générale de reconstituer l'histoire thermique d'une roche. Notamment, l'interprétation des données AFT permet de distinguer une histoire monotone d'une histoire

incluant une phase de réchauffement des échantillons. Un intérêt géologique de l'étude sera donc de pencher en faveur d'un des deux scénarios géologiques, afin de mieux contraindre l'histoire du Trégor. L'analyse des traces de fission du pluton de Ploumanac'h ainsi que les contraintes géologiques sur les phases d'exhumation permettent de déterminer précisément les températures d'enfouissement. Ainsi, moyennant des hypothèses sur le paléogradient thermique, nous pourrons également reconstituer des estimations des profondeurs d'enfouissement et les taux de dénudation. Nous proposons d'utiliser la dispersion des âges AHe et les âges AFT comme témoins de l'histoire thermique. L'originalité est d'utiliser la dispersion des âges, et non les valeurs des âges. Cette méthode et les résultats obtenus sont détaillés dans la section 5.

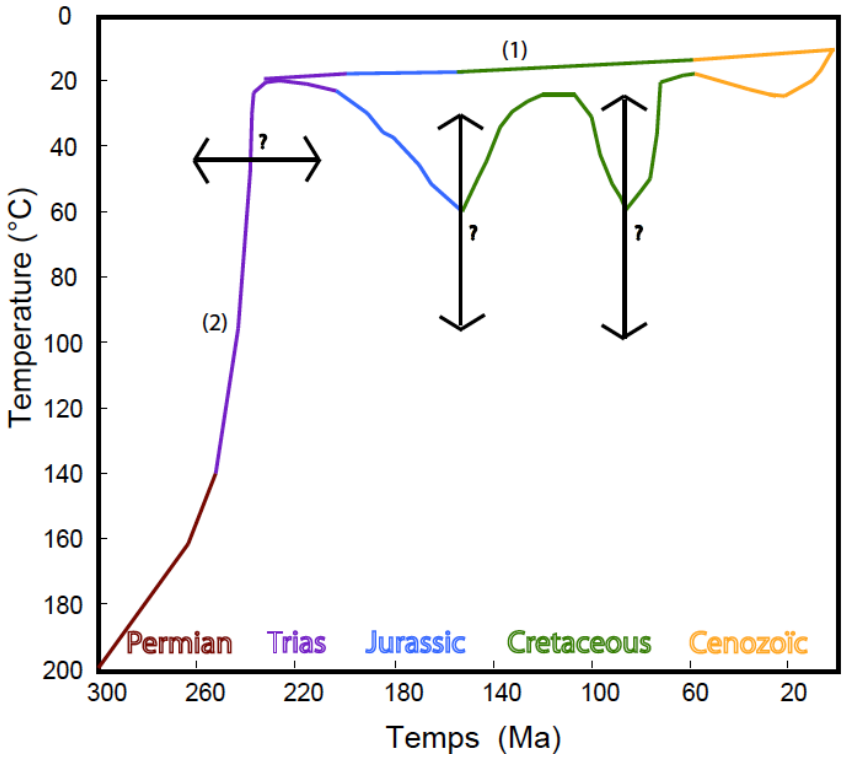


Figure III-8 : Deux scénarios thermiques envisagés

Le premier scenario est celui d'une exhumation au Trias, suite à laquelle le pluton est resté en surface. Le deuxième scenario implique un réchauffement au Jurassique et à l'Albien, et des périodes d'érosion où la roche est proche de la surface au Trias et au Maastrichtien.

4. Apports sur le piégeage d'hélium dans les défauts

Dans cette section, je présente l'article sous presse à *Chemical Geology* (Recanati et al., 20017), intitulé : « Helium trapping in apatite damage : insigths from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoid lithologies », dont voici le résumé.

Résumé : *La thermochronologie (U-Th-Sm)/He est communément utilisée pour contraindre les histoires thermiques et les taux d'exhumation, les mouvements tectoniques, et les processus d'érosion. Cependant, l'interprétation des données est souvent difficile, plus spécifiquement quand l'histoire thermique inclut un long séjour dans la zone de retention partielle d'hélium (HePRZ), avec des âges très dispersés révélant la complexité des processus de diffusion dans les systèmes naturels. La présente étude recherche les facteurs chimiques et physiques qui peuvent impacter la diffusion de l'hélium dans l'apatite sur des longues échelles de temps dans un contexte de séjour long dans l'HePRZ. Neuf échantillons de granidoïdes du pluton de Ploumanac'h et du Trégor Nord (Massif Armoricain, France) ont été collectés, de pétrographie et de composition chimique variable. Cette zone d'étude a été choisie car ces échantillons ont subi à priori une histoire thermique similaire depuis ≈300 Ma. Nous rapportons ici de nouveaux âges (U-Th-Sm)/He, ainsi que des âges trace de fission sur apatite (AFT), et une description de la lithologie et de la composition chimique. Les résultats montrent des âges AHe dispersés entre 87±7 et 291±23 Ma, alors que les âges AFT centraux varient seulement entre 142±6 et 199±9 Ma. Les modèles actuels de diffusion d'hélium et de cicatrisation des traces de fission dans l'apatite n'ont pas pu reproduire les deux jeux de données ensemble. Cependant, cette divergence entre AFT et AHe nous renseigne sur les paramètres influençant la diffusion de l'hélium à l'échelle des temps géologiques. Les données confirment que les défauts d'irradiation augmentent le stockage d'hélium, car les âges AHe sont positivement corrélées à la concentration effective d'uranium*

eU. La dispersion des âges AHe pour une gamme d'eU constante ne peut pas être expliquée uniquement par des variations de taille de grains ou de composition chimique. Pour explorer l'influence éventuelle du stockage d'hélium dans les défauts et de la cinétique de cicatrisation sur les âges AHe, nous avons testé le nouveau modèle de diffusion de Gerin et al. (2017). Etant donné l'histoire thermique reconstituée par inversion des données AFT, nous avons étudié l'influence de l'énergie de stockage sur les âges AHe. Les variations d'âges AHe ne peuvent être expliquées que si l'énergie de stockage évolue d'un cristal à l'autre, augmentant avec la quantité de dommages. Pour une énergie de stockage donnée, des variations mineures dans la cinétique de cicatrisation des dommages peuvent expliquer l'essentiel de la dispersion d'âge AHe restante.

Helium trapping in apatite damage: insights from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoid lithologies

Alice Recanati[1]*, Cécile Gautheron[1], Jocelyn Barbarand[1], Yves Missenard[1], Rosella Pinna-Jamme[1], Laurent Tassan-Got[2], Andy Carter[3], Eric Douville[4], Louise Bordier[4], Maurice Pagel[1], Kerry Gallagher[5]

[1] GEOPS, Univ Paris Sud, CNRS, Université Paris-Saclay, Rue du Belvédère, Bât. 504, Orsay, F-91405, France

[2] Institut de Physique Nucleaire, Université Paris Sud, CNRS/IN2P3, 91405 Orsay, France,

[3] Dept. of Earth and Planetary Sciences, Birkbeck, University of London, UK

[4] Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE/IPSL), CEA- CNRS-UVSQ, Université Paris-saclay, F-91191 Gif sur Yvette, France

[5] Géosciences Rennes, Université Rennes 1, Rennes, F-35042, France

* corresponding author

alice.recanati@u-psud.fr

4 Tables

9 Figures

Submitted to Chemical Geology

Keywords: Apatite, Thermochronology (U-Th-Sm)/He, damage, trapping, diffusion

33
34

Abstract. Apatite (U-Th-Sm)/He (AHe) thermochronometry is widely used to constrain thermal histories and rates of tectonic, exhumation, and erosion processes. However, data interpretation is often challenging, especially when the thermal history includes extended residence time in the He partial retention zone (HePRZ), with highly dispersed dates revealing the complexity of diffusion processes in natural systems. This study investigates chemical and physical factors that may have impacted He diffusion in apatite over long timescales in a context of protracted residence in the HePRZ. Nine samples from the Ploumanac'h pluton and North Tregor (Armorican Massif, France) were collected in granitoids, differing in petrography and chemisty. This area was chosen because these samples underwent a similar thermal history since ~300 Ma. We report new (U-Th-Sm)/He dates, along with apatite fission-track (AFT) data, as well as lithological and chemical characterization. The results show dispersed (U-Th-Sm)/He dates, ranging from 87±7 to 291±23 Ma, whereas central AFT dates vary from 142±6 to 199±9 Ma. Current predictive models for He diffusion and fission-track annealing in apatite could not reproduce the two datasets together. However, this apparent discrepancy gives insight into the parameters influencing He diffusion at geological timescales. The data confirm that radiation damage enhances He trapping, as the AHe dates are positively correlated to effective uranium (eU) concentration. The He age dispersion for constant eU content cannot be explained just by variations in grain size or chemical composition. To explore the potential influence of recoil damage trapping behavior and annealing kinetics on AHe dates, we tested a new diffusion model from Gerin et al. (2017). Given the expected model of the thermal history provided by AFT inversion, we investigated the influence of the trapping energy on AHe dates. The AHe date variations can be explained only if the trapping energy evolves from one crystal to another, increasing with the amount of damage. For a given trapping energy, minor variations in the recoil-damage annealing rate can consistently explain most of the remaining dispersion of the AHe dates.

1. Introduction

Apatite (U-Th-Sm)/He (AHe) thermochronometry is widely used to determine the thermal histories of mountain ranges and sedimentary basins, as apatite crystals retain radiogenic helium at low temperature (<150°C) (e.g. House et al., 1998, Ehlers and Farley 2003, Stock et al., 2006; Reiners and Brandon, 2005, Valla et al., 2011; Herman et al., 2013).

(U-Th-Sm)/He thermochronometry is based on the accumulation of radiogenic ^{4}He in apatite crystals, generated by ^{238}U, ^{235}U and ^{232}Th alpha decay chains, and to a lesser extent by ^{147}Sm alpha decay. Interpretation of a set of AHe dates is not straightforward though, especially when the cooling history is complex or long (e.g. Green et al., 2006; Green and Duddy, 2006; Shuster et al., 2006; Lepretre et al., 2015) as this often produces high levels of intra and and intersample dispersion. The extent to which such dispersion reflects complex He behavior during diffusion in apatite has yet to be fully explained.

Our knowledge of He diffusion in apatite has improved over the last decade due to numerous experiments and atomistic models (e.g. Farley 2000; Shuster et al., 2006; Cherniak et al., 2009; Bengston et al., 2012; Djimbi et al., 2015). In natural apatite, damage is produced during U-Th-Sm decay (alpha and recoil damage) and natural fission of ^{238}U and may undergo annealing (self repair) at elevated temperatures (Chaumont et al., 2002; Shuster and Farley, 2009). The level of preserved damage produced by alpha decay in an apatite can influence helium retention (reduced diffusion) due to the trapping of He atoms in the damaged areas which act as holes within the crystal structure (Shuster et al., 2006; Shuster and Farley, 2009; Gautheron et al., 2009; Gerin et al., 2017). Damage density depends on U-Th-Sm contents and on the damage-annealing rate, which varies with crystal chemistry and thermal history (Chaumont et al., 2002, Shuster and Farley, 2009; Gautheron et al., 2013, Fox et al., 2014).

Currently, two main models take into account the effect of damage trapping and

annealing on He retention in apatite (Flowers et al., 2009; Gautheron et al., 2009). Both models imply that the diffusion coefficient decreases with increasing damage fraction (or effective track density). Damage annealing is known to make the apatite lattice more diffusive for He atoms (Shuster and Farley, 2009), and has been suggested to be sensitive to apatite chemical composition as is fission track annealing (Gautheron et al., 2013). In the absence of specific damage annealing studies, alpha recoil damage and fission tracks are generally assumed to behave similarly. However, recent simulations from Fox and Shuster (2014) indicate that alpha damage may anneal slower than fission tracks.

Recently, a new radiation damage diffusion model was published by Gerin et al. (2017), and was implemented in QTQt for the purpose of our study. In this model, the closure temperature in undamaged apatite is assumed to be 30-40°C (Djimbi et al., 2015), and diffusion processes kinetics decrease with the alpha damage content as a function of damage retentivity. This last parameter is controlled by the trapping energy that adds to the activation energy, with a linear He trapping behavior.

Further work is required to better understand the long-term controls on helium retentivity in apatite, such as He damage trapping efficiency, the damage annealing rates, and the influence of microvoids in apatite (Zeitler et al., 2017). To this end, it is desirable to study the natural variability in helium dates (as in Green et al., 2006; Gautheron et al., 2009, 2013). Careful selection of apatite crystals is paramount for such work, as implantation, broken grains with mineral inclusions can also lead to significant scatter in AHe dates distribution (Vermeesh et al., 2007; Spiegel et al., 2009; Gautheron et al., 2012; Beucher et al., 2013; Brown et al., 2013; Murray et al., 2014; Janowski et al., 2017).

This study focuses on data from samples in the North Armorican Massif (western France), and particularly within the Ploumanac'h pluton and North Tregor massif. This region represents a single geological and tectonic domain and the samples experienced a common

thermal history since Carboniferous time. As the massif includes a variety of lithologies, the samples were selected specifically to assess whether petrography and apatite chemistry can account for the dispersion in the AHe datasets. The present work combines low temperature thermochronology, including apatite (U-Th-Sm)/He and fission-track analysis, and sample petrography/chemistry from the hand specimen to the mineral scale.

The aim of this study is to better understand the behavior of helium in apatite, as well as to test the current models for alpha damage accumulation and annealing. We first investigate the AHe date dispersion as a function of different physical and chemical parameters. Then, we try to model our dataset using the Flowers et al. (2009) and the Gautheron et al. (2009) models. We investigated the role of the damage retentivity and damage annealing kinetics to reproduce our dataset. To this aim, we used the new Gerin et al. (2017) model, as it is based on the most recent physical representation from Djimbi et al. (2015) and has a linear trapping behavior. We tweaked the trapping energy and damage annealing characteristics in order to predict our dataset. This approach give new insights into radiation damage and into the role of apatite chemistry on helium retentivity.

2. Geological setting

The Armorican Massif is located in northwestern France, bounded by the English Channel to the north, the Atlantic margin to the south, and the Paris Basin to the east (Fig. 1A). It is composed of Proterozoic and Paleozoic rocks that experienced the Cadomian and Variscan orogenic phases, respectively at 620-540 Ma and 416-299 Ma (Peucat, 1986; Pin and Peucat, 1986; Chantraine et al., 2001; Ballèvre et al., 2009). Large scale thrusting occurred along two NW-SE shear zones, dividing the massif into four main domains: the North, Central, and South Armorican zones, and the Leon domain to the north-west (Ballèvre et al., 2009). The Tregor unit lies in the North Armorican zone, and is delimited to the northwest by the Pink Granite Coast. The exposure along this coast reveals the Variscan

Ploumanac'h pluton (303±15 Ma, whole-rock Rb/Sr age, Vidal et al., 1981; 301±1.7 to 309±2.5 Ma, zircon U-Pb, Ballouard et al., 2015), emplaced within a Cadomian magmatic complex: the North Tregor batholith (~615 Ma), itself intruded within a ~2 Ga old Icartian host gneiss (U/Pb zircon ages; Auvray et al., 1980, Graviou, 1984), as illustrated in Fig. 1B.

This magmatic complex of the Ploumanach pluton is composed of three concentric bands (Barrière, 1977a; b): (i) the innermost two-mica granite and leucogranite (Fig. 1C, purple bands), (ii) a fine-grained granite (Fig 1C, orange band), and (iii) a coarse-grained pink granite (Fig. 1C, red band). The outermost pink granite grades from monzo- to syenogranite (Barrière 1977a; 1981). The outer two bands of magmatic rocks are co-genetic, formed during the initial magmatic injection (Barriere et al., 1977a). They were derived from a sub-alkaline magma, whereas the innermost white granites originate from the later cooling of a high-alumina magma, or from several non-cogenetic magma pulses (Albarède et al., 1980). The three concentric bands were emplaced at ~8 km depth (i.e. ~2 kbars, Barrière et al., 1977b), and now crop out due to significant erosion.

The absence of post-Variscan sedimentary deposits close to the studied area makes paleogeographic studies difficult. However, at a regional scale, the post-Variscan history of the Armorican Massif includes several geologically constrained phases of burial and erosion. During the Permian and Triassic the massif was exposed and the climate was arid, which favored fluvial and eolian sediment transport northward into depocenters (Owen, 1976; Ballèvre et al., 2012). These continental sediments are preserved in the northern seas (Western Approaches trough, English Channel) and onshore along the eastern margin of the Armorican Massif, nearby the Paris Basin. A marine transgression occurred during the Jurassic, and drowned most of the Armorican Massif. Evidence for this event is preserved in outcrops in the Normandy hills (Bessin et al., 2014), but also in offshore deposits in the Northern Approches Trough and adjacent basins (Menpes, 1997; Ziegler, 1987). A major

159 unconformity between Late Triassic and Jurassic deposits marks the initiation of this event,
160 and is revealed by seismic data and well logs (Ruffell, 1995). Uplift in the early to mid-
161 Cretaceous led to a second erosion phase (Owen 1976; Guillocheau et al., 2003), related to the
162 rifting of the Bay of Biscay. It was possibly followed by a Upper Cretaceous marine
163 transgression that is recorded by flints and chalk remnants (Hillis, 1991), followed by
164 Pliocene sedimentation.

165 ## 3. Sampling and methods

166 ### 3.1. Sample collection and preparation

167 We collected nine samples to represent the natural chemical and lithological variation
168 on the North Armorican massif, mostly on the Ploumanach pluton (Fig. 1B and C). Eight of
169 the samples were selected out of a single intrusive body over a small geographic area
170 (sampling interval: 1-2 km, area: 35 km^2). Sample elevation is constant and low, as the pluton
171 is close to sea level, and the pluton is not cut by any major fault. Therefore, the sampling
172 procedure was designed so the sample thermal history should be similar for all of the samples.
173 Any significant dispersion in AHe dates should thus be due to other causes (experimental,
174 compositional, or other unknown other parameters).

175 The rocks (La Clarté and Traouieros granites) are porphyritic, with cm-size crystals.
176 Five of the samples belong to the outermost band, i.e. the coarse-grained pink granites of
177 “Traouieros” and “La Clarté” (samples PL1 to 4, and PL8, Fig. 1C, red band). Sample PL6 is
178 similar to the “Traouieros” granites, but is part of an intrusion within the adjacent fine-grained
179 band (Fig. 1C, orange band). Those granites include biotite and hornblende. The center of the
180 pluton (Fig. 1C, purple bands) was also sampled, represented by sample PL7 (innermost
181 leucogranite) and PL11 (two-mica granite). Both samples include biotite and muscovite. A
182 single granodiorite specimen was also collected from the North Tregor batholith (PL10),
183 located ~30km east of the Ploumanach pluton. Sample locations and petrography are reported

184 in Fig. 1B and C, and listed in Table 1.

185 Thin sections were prepared for each rock sample and apatite grains were separated
186 using standard crushing, sieving, density and magnetic methods, and hand-picked using a
187 binocular microscope. Apatite crystal selection for AHe and AFT analyses as well as apatite
188 dissolution was performed at the GEOPS low temperature thermochronology laboratory
189 (University of Paris Sud, France). U, Th, Sm, and major, trace and rare earth element (REE)
190 composition was determined on the He dated apatite crystals at the LSCE (Gif sur Yvette,
191 France). Major, trace, and rare earth element contents were determined on AFT dated grains
192 and mounted apatite crystals, using electron microprobe and LA-ICPMS measurements
193 performed respectively at at ISTerre (Grenoble, France) and UCL (London, UK).

194 **3.2. Apatite fission track (AFT) analysis**

195 Apatite grains were mounted in epoxy, polished, and etched at 5M HNO_3 for 20 seconds
196 at 20±1 °C. AFT ages were obtained using the external detector method, following the zeta
197 procedure (Hurford and Green, 1982). Analyst J. Barbarand's zeta value was 359±8 for the
198 CN5 dosimeter glass. Apatite mounts were covered by muscovite external detectors, and
199 irradiated at the Garching facility (München, Germany) with a nominal fluence of 5×10^{15}
200 neutrons/cm^2. Detectors were subsequently etched for 20 minutes in 40% HF at 20±1°C. AFT
201 ages are reported as the central age at ±1 σ (Galbraith and Laslett, 1996). Mean etch pit size
202 (Dpar) was also measured. Tracks were counted and measured at x1250 magnification, using
203 an optical microscope and a digitizing tablet (Laslett et al., 1994). Results are presented in
204 Table 2.

205 **3.3. Apatite (U-Th-Sm)/He dating**

206 Apatite grains were carefully selected for AHe dating based on size, morphology, and
207 on the absence of any optically detectable inclusion. Six to fifteen replicates per sample were
208 analyzed. The analytical procedure is similar to that described by Gautheron et al. (2013)

209 Crystal dimensions were evaluated under a binocular microscope, and equivalent sphere radii
210 (Rs) were calculated to represent the He diffusion domain (e.g. Gautheron and Tassan-Got,
211 2010). Ejection factors (F_T) were determined using Monte Carlo simulation (Ketcham et al.,
212 2011; Gautheron et al., 2012). Individual grains were examined twice in order to check for
213 any unrecognised He-rich inclusions.

214 U, Th and Sm concentrations were measured by isotopic dilution using a quadrupole
215 ICP-QMS series^{II} CCT Thermo-Electron at the LSCE (Gif/Yvette, France). Apatite grains
216 were dissolved in a HNO_3 solution spiked with ^{235}U, ^{230}Th, and ^{149}Sm. Analyses were
217 calibrated using internal and external age standards, including Durango apatite and Limberg
218 Tuff (Kraml et al., 2006; McDowell et al., 2005). Results of the Durango apatite are presented
219 in supplementary information (Table S1). The one-sigma error on each AHe age amounts to
220 8%, reflecting the analytical error and the uncertainty on the ejection factor F_T correction. All
221 AHe data are reported in Table 3, including the effective uranium concentration, ie.
222 eU=U+0.24×Th. Sm content was not measured in the first batch of grains (in italics in Table
223 3). For this dataset, the Sm content indicated in the table is the mean of the more recent
224 analyses on the same sample. It was used for the (U-Th-Sm)/He date calculation. This
225 approximation affects the AHe dates for the six grains with low eU (<20ppm), indicated by an
226 asterisk in Table 3. However, the contribution of Sm on AHe dates is less than the analytical
227 resolution for eU content higher than ~10 ppm (i.e. 8%). Additionally, three crystals showed
228 anomalously high Th/U ratios compared to the other grains from the same sample, and will
229 not be taken into consideration in this study, as the AHe dates may have been influenced by
230 undetected U-Th rich inclusions such as thorite or uraninite, or incomplete apatite dissolution.
231 When the AHe dates are used in order to compare to AFT data or to geological features, then
232 it is appropriate to correct the AHe dates from the ejection factor FT (Gautheron et al., 2012).
233 This factor is computed from the crystal dimensions, and account for the fact that the helium

234 atoms located beneath the grain boundarie can be lost. Therefore, the correction aims at
235 increasing the AHe in reason of this helium leak. Small crystals thus lose a larger proportion
236 of helium during ejection than large grains and that's why the FT ejection factor depend on
237 grain geometry. Note that in QTQt software, the entry parameter is the raw age, that we left in
238 Figures 6, 7, and 8.

239 **3.4. Major, minor and trace elements analyses**

240 Apatite chemical composition was determined on some of the dated (U-Th-Sm)/He
241 crystals, on AFT grain mounts and on some additional apatite fractions. The cation content of
242 several individual (U-Th-Sm)/He dated apatite grains was quantified using the LSCE's
243 quadrupole ICP-MS series^{II} CCT Thermo-Electron, including P, Ca, Mn, Sr, Ba, and REE.
244 The measurements were performed on the same solutions previously used for U, Th, Sm
245 analyses. Calibration was performed with internal and external standards that were analyzed
246 several times during the experiment, similar to Cros et al. (2014). Reference material NIST
247 1640a and BCR (containing REE; Kent et al., 2007) were used for data validation. Relative
248 standard deviation (RSD) on the NIST standard was <3%, except for P (15%). For REE, the
249 RSD was remarkably low on BCR (0.5 to 2 %). Data treatment includes a correction
250 regarding the reference values for NIST 1640, as well as a linear correction of the drift during
251 the analytical sequences. Selected results can be found in Table 3, and all data can be found in
252 supplementary Table (S2).

253 Fifty apatite grains per sample were selected and mounted in resin for Electron Probe
254 Micro-Analysis (EPMA). The mean composition (in equivalent oxide weight percent) and
255 standard deviations for each sample are reported in Table 4. Analyses were carried out at
256 ISTerre (Grenoble University, France), with a JEOL-JXA-8230 microprobe. Measurements
257 included anions (F, Cl) and cations (Ca, P, S, Si, metals). Three repeated Durango
258 measurements were made for standardization after 40 apatite grain analyses. Errors on

standards were relatively low for major elements: from 0.1% for CaO to 1.7 % for F <10% for all elements except Fe and Y (22 and 35%). Minor corrections were applied to account for the small drift in Ca and P. Counting errors on X-ray intensities were negligible for Ca, P, F, Si, Ce (<10%). Due to larger errors, Cl, Na, and La results are interpreted qualitatively.

Finally, the major, minor and trace element compositions of the AFT and AHe dated grains were also investigated. The AFT dated grains were analyzed using EPMA. Measurements were undertaken at ISTerre using a similar protocol to that described above, except that Pr was not analyzed. Additionally, three samples were analyzed using LA-ICPMS. Laser ablation was coupled to an ICPMS system (Agilent 7700) at UCL, London (UK) in order to determine the elementary concentrations in Mn, Sr, Ba, Nb, and rare earth element. Calibrations were based on external standards NIST 610 and 612 (Jochum et al., 2011).

4. Results

4.1 AFT data

AFT dating was performed for all samples except PL3 and PL8. The granite and granodiorite samples have similar AFT ages, with a central age ranging from 142±6 to 199±9 Ma (Fig. 1C). All samples passed the chi-square test at the 5% level, indicating that the range of single grain ages are consistent with a single population. Granitoid sample PL4 has a slightly older AFT age: 199±9 (Table 2, Fig. 1C). Note that: (i) this sample has a similar Cl content than other samples, except PL10 that has slightly more Cl, (ii) PL4 is richer in Y and otherwise has a similar composition to the other samples (as well as a similar Dpar value).

Track length distributions are similar for all samples. Mean track length ranges between 12.5±1.3 and 13.0±1.2 μm (Fig. 1C, Table 2), with low standard deviation (<1.4 μm). Individual lengths vary between 8 and 16 μm, and the distribution of lengths is unimodal. The mean fission track-etch pit diameter (Dpar) ranges from 1.3±0.1 to 1.5±0.1 for all samples (Table 2). These values are quite low compared to those of Carlson et al. (1999),

yet they were cross-calibrated following a comparison with etching experiments in London, yielding a value of Dpar of 1.5 μm which is comparable to the values given by the theory of Carlson et al. (1999). Therefore, our Dpar values are cross-calibrated and comparable to those given in Barbarand et al. (2003).

4.2 (U-Th-Sm)/He dating

Alpha ejection corrected (U-Th-Sm)/He dates for the nine samples range between 87±7 and 291±23 Ma. The effective uranium concentration (eU) is extremely variable from one grain to another, ranging from 1 to 557 ppm and the Th/U ratios also fluctuate, between 0.01 and 7.5. Apatite grain size, expressed as the equivalent spherical radius, varies between 34 and 105 μm, with a mean value of 59 μm.

AHe age dispersion correlates with eU (Fig. 2A): most AHe dates lie on a hyperbolic curve increasing with effective uranium (eU). Below the eU=60-80 ppm threshold, AHe rise with eU from 87±7 Ma (eU<2 ppm) to >200 Ma. The granodiorite sample (PL10) has the youngest AHe dates and the lowest eU (<20 ppm). Compared to this end-member, the hornblende-bearing granite samples PL 2, PL 3, and PL 6 have older AHe dates (162±13 to 250±20 Ma; mean of 202±22 Ma) and higher eU (44 to 326 ppm).

Some variations in (U-Th-Sm)/He dates appear to be independent of eU, as observed on Fig. 2A. For instance, for eU≈80 ppm (75-85 ppm), AHe are scattered between 178±14 and 261±21 Ma. This dispersion is observed even among different grains from the same sample. For instance, apatite crystals from sample PL2 range between 176±14 and 234±19 Ma.

4.3 Apatite geochemistry

The chemical composition of apatite crystals analyzed via EPMA is presented in Table 4 and Fig. 3. Results show an almost constant major element chemistry for all apatites: CaO=54.2±0.5wt%, P_2O_5=41.1±0.7 wt% and F=3.7±0.1 wt%. In more detail, crystal

309 composition in CaO ranges from 52 to 56 wt%, with an approximately Gaussian distribution
310 (Fig. 3A). P_2O_5 content lies between 39 and 44 wt%. Most crystals have F=3.4 to 3.9 wt%
311 (Fig. 3B), except for sample PL11 which is F-rich (3.6 to 4.8 wt%). Note that the theoretical
312 maximum F composition is 3.77 wt% assuming no Cl or OH and only Ca and P cations
313 (Kecham, personal communication). This composition is very close to that of Durango
314 apatite, as reported by Barbarand et al. (2003): CaO=54.7 wt%, P_2O_5=41.2 wt%, and F=3.5
315 wt%.

316 Apatite crystals from the leucogranite (PL11) also have slightly different minor
317 element chemistry, which results in a bimodal distribution of Fe, Mn, and Na (Fig. 3C and D).
318 They contain higher Fe (0.4±0.1 wt%), Mn (0.5±0.1 wt%), and Na (0.12±0.02 wt%) contents
319 while being LREE-poor (e.g. Ce=0.1±0.03 wt%, Fig. 3E). Variations in sample lithology are
320 accompanied by differences in apatite geochemistry: minerals from the different petrographic
321 facies presented above (section 2) can be distinguished by their chemical composition (Fig.
322 3). Crystals from the granodiorite sample PL10 are characterized by high Cl contents (0.2±0.1
323 wt%, Fig. 3F) and low F (3-3.8 wt%, Fig. 3B). They also have lower REE (e.g. Ce=0.3±0.04
324 wt%, Fig. 3E) than monzo and syenogranites. The apatite crystals in granitoid (PL4) are Na-
325 rich (0.1 ±0.03 wt%, Fig. 3C) and Y-rich (0.9±0.3 wt%, Fig. 3H). Conversely, LREE contents
326 are relatively low (e.g. La=0.1 wt%, Fig. 3G).

327 In addition to these measurements, we combined AHe dating and chemical analysis of
328 sixty apatite crystals in order to enable direct comparison between AHe date and chemical
329 composition. Results are included in Table 3. In general, there are no obvious chemical
330 differences between the specimens. However, the pink granitoid PL4 is richer in REE than
331 other samples with four crystals having ΣREE >3% (cf. Table 3, where ΣREE is the sum of
332 all analyzed REE). PL4 also has relatively low Sr contents (85-215 ppm). On the other hand,
333 the granodiorite sample PL10 is Sr-rich (382-816 ppm) and ΣREE-poor (5730-10604 ppm).

Complete chemical contents can be found in supplementary information (Table S1, Figure S1).

5. Discussion

5.1. Variations in AHe dates

AHe dates vary between 85±7 and 291±23 Ma within the studied samples and seems to be controlled at first-order by the eU content (Fig. 2A). Additionally, the AHe dates can be plotted aginst the estimated alpha dose (Fig. 2B), which is the amount of alpha particles that were produced in apatite since the beginning of accumulation. This alpha dose was calculated from radionuclide concentrations, given the quantity of alpha particles produced by each radionuclides and the radioactive decay equation. We assumed that damage has accumulated for at least 250 Myrs, as the pluton likely was at too high temperature to accumulate damage before this date given the thermal history. 250 Myrs is also the oldest individual track dates, which indicate that the pluton was cold enough to retain tracks at this time.

On both figures, the AHe dates are broadly positively correlated with eU (for eU < 60-80 ppm) and alpha dose (below ~2-3×10^{16} alpha/g). This confirms that crystal damage strongly controls He trapping in apatite. The present dataset highlights for the first time that the relationship between He retention and damage accumulation is more complex than assumed in current models (Flowers et al., 2009 and Gautheron et al., 2009).

Additionally, for a given range of eU, AHe dates appear to be strongly scattered (standard deviation of ±20% at ±50 Ma). Another control mechanism is required to explain this scatter. Other factors than eU can be considered to influence He retention: (i) apatite crystal size, which controls the diffusion domain size (Reiners and Farley, 2001), (ii) grain morphology (Brown et al., 2013; Beucher et al., 2013), (iii) alpha implantation from rich U-Th neighbor minerals (Spiegel et al., 2009; Murray et al., 2014; Janowski et al., 2017), (iv) U

and Th zonation (Farley et al., 2011); Ault and Flowers 2012), and (v) apatite chemistry, more especially Cl content, which is often considered to control the damage annealing parameter by analogy with AFT studies (Ketcham et al., 2007; Gautheron et al., 2013), or (vi) apatite eU zonation, which might contribute to this dispersion.

No obvious relationship between AHe dates and apatite crystal size was found: we failed to evidence any correlation between AHe dates and crystal equivalent radius size (Fig. 4A), as the correlation coefficient is 0.04. Additionally, we examined whether a correlation exist within five restricted eU bins. The answer is negative: crystal size does not contribute to AHe data scatter. Results are presented in supplementary information. Thus crystal size does not directly influence He retention here. Note that apatites from the leucogranite (PL11), the two-mica granite (PL7), and the granitoid (PL4) are older than most apatites from monzo- and syenogranites (Fig. 2). Therefore, the variation in rock lithology seems to affect He date dispersion. Additionally there is dispersion in the apatite AHe dates from the same rock sample, e.g. PL2. Yet, at the 2σ uncertainty, most of these ages would be concordant. General influence of He implantation on AHe date dispersion is to rule out because thin section examination revealed no U-Th rich cluster around apatite.Thus, we rule out He implantation as a process that would have dispersed systematically the AHe dates within a sample .

We kept a record of 5 grain morphologies, as indicated in table 4B, following the number of pyramidal termination (0, 1, 2), and the number of broken faces (0, 1, or 2). There is no correlation between individual crystal AHe age and crystal length (Fig. 4B), and we observe no systematic trends with grain morphology. This absence of correlation is indicated by the fact that the correlation coefficient is nul, revealing that the crystal size and length do not influence significantly the AHe dates. We also showed that this correlation is absent for restricted eU bins. Thus, the crystal size does not control AHe dates. Additionally, we exclude

383 the hypothesis of helium implantation formulated here as explaining the whole AHe date
384 dispersion. Indeed we examined sample thin sections which evidenced that apatite crystals are
385 not close to U-Th rich mineral host and are not clustered. eU zonation could also induce a
386 dispersion in AHe date, but not significant as no detectable zonation was noticed during AFT
387 analysis.

388 **5.2. AHe dates of highly damaged samples**

389 The apatite crystals have eU ranging from 0 to 600 ppm. The high values of eU are
390 quite rare, as usually it does not exceed 200 or 300 ppm. Additionally, the alpha doses range
391 from 4×10^{15} to 5×10^{17}α/g, and thus exceed the usual range. For instance, Flowers et al. (2009)
392 have investigated helium closure temperatures for apatites until 10^{17} α/g. Therefore, our set of
393 apatite is interesting and rare in its chemical composition and damage content. Studying
394 helium retention in those apatites, especially the most damaged apatite, is thus quite new and
395 interesting.

396 Only a dozen of crystals have eU>150 ppm and alpha doses > 6×10^{16} α/g so it is
397 difficult to reach general conclusions about helium retention in highly damaged apatites. Yet,
398 it is interesting to note that the mostly damaged apatites – from sample PL4 (557 ppm eU, and
399 5×10^{17} α/g) have low AHe dates (~152 Ma). This value is lower than the plateau age of 200-
400 250 Ma reached by the apatites after the threshold of eU of 60 ppm (see the AHe vs eU plot in
401 Figure 2A). Additionally, the ten crystals with the highest alpha doses (>6×10^{16} α/g) have
402 AHe dates decreasing with the alpha dose (Figure 2B). This negative correlation is confirmed
403 by a relatively high correlation coefficient (~0.5). A figure is provided in the supplementary
404 information for additional details (Figure S2), focused on these ten highly damaged apatites.
405 Yet, this correlation coefficient is increased by the presence of the highest-alpha dose apatite.

406 Therefore, it is difficult to conclude because of the too small number of highly
407 damaged apatites. But our dataset suggests that below a threshold of 2-3×10^{16} α/g, helium
408 retention increase with alpha doses while for higher values than 6×10^{16} α/g it decreases
409 (Figure 2B). These preliminary observations should be confirmed by studying the AHe ages
410 in more highly damaged apatites in different geological contexts. Yet, to our knowledge it is
411 the first time that such a decrease in helium retention at high alpha doses is observed in
412 apatite.

413 Note that in zircon, such phenomenon was already reported by Guenthner et al. (2013)
414 and Ketcham et al. (2013). They proposed that beyond a certain alpha dose, alpha-recoil
415 damage interconnect and He effectively percolates through zircon. Poor He retentivity in
416 highly damaged zones is an expected characteristic of percolation. Therefore, if future works
417 confirmed that it also occurrs in apatite, then the increase in damage dose would cause
418 damage to cluster at low alpha doses and then to percolate after a threshold dose.

419 **5.3. AHe dates and apatite geochemistry**

420 The geochemistry of apatite crystals can theoretically explain part of the AHe date
421 dispersion via a change in He diffusivity (Wolf et al., 1998; Miro et al., 2006; Djimbi et al.,
422 2015). However, no obvious relationship between individual grain age and chemistry was
423 found. The only element whose concentration correlates with AHe dates is Sr (Fig. 5A). This
424 inverse correlation is significant at the 5% level (n=35, correlation coefficient = -0.37). The
425 two end-members are samples PL4 and PL10. Sample PL4 has high AHe dates (150±15 to
426 280±28 Ma) and low Sr contents (<211 ppm), and sample PL10 has low AHe dates (<171±17
427 Ma) and high Sr contents (>382 ppm). However, the correlation between AHe dates and Sr
428 contents cannot be properly interpreted since Sr content is also inversely correlated with U
429 content and eU (Fig. 5C), which is the main factor controlling helium retention rate. The

relationship between AHe dates and Sr is therefore most easily explained by the fact that both are correlated with U content (eU).

Similarly, ions that substitute for calcium in apatite may affect fission track annealing kinetics (Carlson et al., 1999; Barbarand et al., 2001; 2003; Ketcham et al., 2007). However, no clear correlation between date and chemistry was found for any other element. The correlation coefficients – which detect the presence of a correlation between two variables - often are null, as for Ba and La (Fig. 5B and D). This implies that major element substitution chemistry and AHe ages are independent. Therefore, we suggest that either there is no chemical control on AHe dates or the measured elemental concentrations do not vary enough to impact significatively the measured AHe dates.

Additionally, we were able to calculate the fission track annealing parameter rmro from the entire chemical composition of the samples, estimated from EPMA measurements (from Ketcham et al., 2015). This parameter combines all chemical contents. Results are presented in supplementary information (Table S3). It reveals that only sample PL11 and PL4 have a slightly different value of rmro (respectively 0.80 and 0.81), compared to other samples that have a higher value of rmro (0.82-0.83). This is in agreement with the lithological difference that exists between both samples (a two-mica granite and a granitoid) compared to other samples that all are granites and granodiorite. It main explain some part of AHe dispersion (<50 Ma= 20%, as is illustrated in Figure 2A, the AHe dates of PL11 are slightly higher than those of pink granite samples). Nevertheless, there is an intrinsic dispersion in AHe dates within the pink granites (red dots), that cannot be explained by a variation in the chemical composition nor in the rmr_o parameter (which is 0.82).

5.4 (U-Th-Sm)/He dates simulation: insights into He behaviour in damaged apatite

5.4.1. Inconsistency between AFT and AHe dates

454 The (U-Th-Sm)/He dates are mostly older than AFT dates, except for sample PL10.
455 We ran a series of inverse simulations of AHe and AFT date datasets together, using QTQt
456 software (Gallagher et al., 2009; Gallagher, 2012). Inversion of the datasets was first
457 performed without any constraints on the possible thermal history, given the formation age
458 (~300 Ma). A second simulation was then carried out with one-single constraint at the time of
459 rock formation: 300 Ma ago the pluton was at "higher temperature" relatively for the low
460 temperature thermochronometers systems (>200°C). A third simulation was performed,
461 incorporating constraints based on the geological history described in section 2: (i) a Permo-
462 Triassic exhumation phase to surface temperature, as the massif is known from independent
463 geological to have been exposed emerged during this period, (ii) Cretaceous and
464 Maastrichtian cooling at surface temperature, as the massif was uplifted during that time.

465 We tested both the Flowers et al. (2009) and the Gautheron et al. (2009) models. Both
466 models suggest a reheating event in earliest Jurassic time. Based on the presence of Triassic
467 detrital rocks ~180 km northwest of our study area (i.e Cotentin), and marine sediments in
468 Normandy, Ballèvre et al. (2012) suggests that a denudation event occurred during the
469 Triassic, followed by Jurassic reheating, as illustrated Figure 6A. This Triassic peneplanation
470 event is classically described regionally in the Armorican Massif (Guillocheau et al., 2003),
471 the Central Massif (Barbarand et al., 2001), and even North Africa (Gentil, 1912; Michard et
472 al 2008). Either with or without geological constraints, none of these He diffusion models
473 reproduce both the AHe and AFT datasets. More specifically, the old AHe dates cannot be
474 explained given the AFT dates. The models underestimate the AHe dates, and overestimate
475 the AFT dates. Several examples of these inverse model results are provided in the
476 supplementary section (Fig. S3 and S4).

477 We thus decided to construct a geological plausible thermal history by inverting only
478 the AFT dataset, using the geological constraints (Black boxes in Fig. 6A). In doing this, we

assume the fission track inversion technique is reliable, as it has been improved since 30 years, although innovations in fission track analysis can still be carried out. We use the most recent track annealing model implemented in QTQt (Ketcham et al., 2011), which we assume is enough constrained for the purpose of our study. The aim of our paper is not to discuss the regional thermal history nor the fission track annealing kinetics, but rather to use a reasonable T-t path in order to improve the (U-Th-Sm)/He techniques.

Four geological constraints were used: (i) the pluton was emplaced at high pressure and temperature 300 Ma ago (box 1, Fig. 6A; Barrière et al., 1977a), (ii) the rock was at near surface temperature during the Triassic (box 2), and the Maastrichtian, (iii) the pluton has been at surface temperature for less than 50 Ma (box 4). The present day temperature was also set at 10±10°C. Box 3 results from a thermochronometric constraint: as the samples were not entirely annealed, the rock did not exceed 110°C. QTQt enabled the fission track diameter Dpar to vary. AFT annealing parameter was calculated for each grain from these values.

Figure 6A present the result of the inversion of all samples analysed for fission-tracks (ages and lengths). It is a set of possible T-t paths, with different probabilities given the dataset. The most probable T-t paths are represented in red, while the less probable are in blue (Fig. 6A). We decided to select the “expected model” (black line in Fig. 6A) as our preferred thermal history, as this history represents a weighted model (Gallagher 2012, 2015), which is the most probable given the AFT dataset. For information, the “maximum likelihood” model was very similar to the “expected” model. In the supplementary information, we added a comparison of the predicted ages and the observations for different (T-t) paths (Figure S5). The less probable paths (in blue in Figure 6A) do not reproduce the AFT ages. Only the expected model fits several of the AFT dates. Figure 6B represent the predicted AFT ages against the observations for the expected model (green squares). The expected model fits the highest dates around 180-200 Ma, but slightly overestimates the lowest range of AFT dates

(140-150 Ma).

The numerical inversion of the samples with lowest dates (e.g.: PL1 only) was also performed with AFT ages only, and with ages and lengths. Both simulations provide the same thermal history, which are presented in supplementary information (Figure S6). It evidences that in order to reproduce the lowest dates, the Jurassic heating has to be 110°C if we inverse only PL1. Figure 6B presents the predicted fission track ages for this thermal history (yellow square). The younger AFT ages (140-180 Ma) are reproduced, but the highest AFT date (200 Ma) is slightly underestimated.

Nevertheless, as all samples were collected over a small (km^2 scale) area, which is not crosscut by any major fault, and at the same elevation, all of the samples underwent the same thermal history (and so the same Jurassic heating). For instance, sample PL1 and PL2 are separated from only 200 m and have undergone a similar geological and thermal history, but have AFT ages differing by 45 Ma. No particular chemical feature appears to distinguish PL1 and PL2, and their resulting annealing parameter calculated from Ketcham et al. (2015) is similar (0.82). The difference in AFT ages thus likely evidences that other parameters than the thermal history and the apatite chemical composition influence the fission track annealing kinetics. As it is not taken into account yet in fission track models, we will not be able to reproduce both the highest and the lowest AFT ages with a single thermal history. We decided to reproduce the highest dates around from Siddall 1993; 207±9 Ma for PL-14-1 from Ballouard et al. 2015). Therefore, in the following, the expected model presented in Figure 6A will be used.

The expected thermal history model was used for a series of forward simulations of the dataset. These simulations reproduced the oldest AFT data correctly according to HeFTy (Ketcham, 2005) and QTQt (Gallagher 2012) simulations. However, our forward simulations cannot explain the AHe data given the chosen Tt path. Given the Flowers et al. (2009) and the

529 Gautheron et al. (2009) models, the predicted AHe versus eU relationship is not consistent
530 with the observations: both models underestimate the AHe dates (see figure 6C and 6D, green
531 squares).

532 We also tested the sensitivity of the forward simulations for variation in the maximum
533 Jurassic temperature. Figure 6B represent the AFT dates and Figure 6C and 6D are the AHe
534 vs eU relationship predicted for a Jurassic burial temperature of 80°C (red triangles)
535 compared to the expected heating of 130 °C (green squares). The results show that even
536 though AFT dates are strongly dependent on the heating temperature (see Figure 6B), the
537 AHe dates are not. The simulations performed with a higher Jurassic burial temperature are
538 slightly lower, but this does not affect significantly the AHe vs eU relationship (Figure 6C
539 and 6D).

540 If we inverse the AHe dataset without AFT constraints, the expected Jurassic burial
541 temperature is 50°C using both the Flowers et al. (2009) model and the Gautheron et al.
542 (2009) model (see Figure S7 and S8 in supplementary data. Nevertheless, if we reduce the
543 Jurassic burial temperature from 130 to 80°C, the helium retention slightly increase but not
544 enough to reproduce the modeled AHe/eU curve (Figure 6C and 6D). Additionally, with a
545 50°C burial temperature, the simulated AFT ages would be significantly older than measured
546 (205-220 Ma vs 140-200 Ma). With a 40°C reheating, as suggested by the Gautheron et al.
547 (2009) model, the AFT ages would even range from 230 to 250 Ma (forward simulations).
548 Therefore, whatever the thermal history is selected, the current models underpredict helium
549 retention and cannot reproduce the observations. Even excluding the fission track lengths, we
550 cannot reproduce both AFT and AHe dates given a single thermal history.

551 To summarise, neither of the current damage accumulation and annealing models for
552 apatite can reconcile both thermochronological datasets. Inversion of AFT and AHe dates
553 failed to reproduce AFT and AHe data together. The old AHe dates compared to AFT dates

554 indicate that: (i) the AHe system records earlier parts of the thermal history than AFT, and (ii)
555 He retention in apatite is high, revealing that damage annealing is probably slow or that
556 damage retention is high. Thus, the parameters used in the current models to describe helium
557 retention (e.g. activation energy) and damage annealing kinetics do not manage to predict
558 helium retention.

559 **5.4.2. Reconciling AFT and AHe datasets: a new model**

560 Failure to produce thermal history models that fit both the AFT and AHe data suggest
561 that either the AFT models are wrong or, as already mentioned in section 5.1, He behaviour in
562 apatite is more complex than described by previous models (Gautheron et al., 2009; Flowers
563 et al., 2009). To investigate He trapping in apatite, and its evolution with the damage dose, the
564 recent He diffusion model from Gerin et al. (2017) was implemented in the QTQt software.
565 This recent model has the advantage that the helium retention efficiency can be easily
566 modified by the user, through a parameter called the trapping energy *ΔEa.*

567 In their contribution, Gerin et al. (2017) propose a relationship between radiation
568 damage accumulation and the diffusion properties, where the diffusion coefficient $\tilde{D}$
569 decreases with the damage fraction *f(x)* following the equation:

570 $$\tilde{D}(x,t) = \frac{D(T)}{\left[1 + f(x)\exp\left(\frac{\Delta E_a}{RT}\right)h\right]} \quad (1),$$

571 where *D(T)* is the diffusion coefficient in undamaged apatite; *ΔEa* is the additional
572 energy that is required for He, once it has entered into a damage site, to diffuse back into the
573 lattice (see Shuster et al., 2006; Gautheron et al., 2009); and *h* is the percentage of annealing
574 ranging from 0 to 1. In the Gerin et al. (2017) model, initial He diffusion parameters
575 (diffusion coefficient D_0 and activation energy E_a) are adopted from multi scale quantum
576 based Density Function Theory (DFT) calculations (Djimbi et al., 2015). Such calculations
577 yield a He closure temperature of ≈30-40 °C for undamaged apatite.

Here, we used the same approach but the alpha damage annealing parameter is hereafter termed rmr_0', to distinguish it from the rmro parameter used to describe AFT. This new parametrization of rmr_0' may help to reconcile AFT and AHe data (Fox and Shuster, 2014), which was not possible in previous models that considered that track and recoil damage anneal at the same rate (i.e. rmr_0=rmr_0'). Following Ketcham et al. (2007), the value of rmr_o can be calculated either from the Dpar measurements, or from the Cl content, and varies between 0.6 and 0.83 in most natural apatites, even though in rare crystals it goes down to 0. In the case of the Ploumanac'h rocks, the rmr_o value calculated from Dpar values is 0.85 (Ketcham et al. 2007), while that calculated from the Cl PFU contents, issued from EMP analyses is 0.83, except for sample PL10 (0.82). More recently, Ketcham et al. (2015) propose that rmro is multi-compositional. We calculated the values of rmro using this recent study: 0.82-0.83 for all samples except PL11 (0.80), PL4 (0.81). Results can be found in supplementary informations. Unfortunately, we did not analyze sample PL7, that likely has a different composition due to its lithological specificity.

5.4.3. Investigation of damage trapping energy (ΔEa)

We first estimate the range of trapping energy *ΔEa* that is required to reconcile the AHe with the thermal history obtained from AFT data and assumed geological constraints. The *ΔEa* value depends on damage topology, i.e damage shape, size, and connectivity. In the case of simple vacancies, Gerin et al. (2017) estimated that *ΔEa* is ~30±5 kJ/mol, based on DFT calculations. Shuster and Farley (2009) also predict experimental values in the same order of magnitude (~25 kJ/mol). In addition, Gerin et al. (2017) suggest that damage clustering increases *ΔEa* to higher than 50 kJ/mol.

Using our preferred thermal history (Fig. 6A), we ran several forward simulations in which we vary the damage trapping energy *ΔE*a from 30 to 90 kJ/mol. Results are summarised in Fig. 7, where the AHe vs eU relationship was modeled for different values of

603 *ΔEa.* With *ΔEa*=30 kJ/mol (red triangles) or 40 kJ/mol (yellow losangles), the predicted AHe
604 dates are significantly lower than observed values (Fig 7A) so these trapping energies are not
605 sufficient to retain enough helium. However, for the trapping energy *ΔEa* of 70 kJ/mol (green
606 squares), the model dates better fit the mean observed AHe dates (blue circles).

607 Note that for the lowest eU values (eU<20 ppm), the trapping energy of 70 kJ/mol
608 overestimate the AHe dates, while for higher eU values it correctly reproduce the
609 observations. Thus, the whole data dispersion cannot be reproduced if all of the crystals have
610 the same *ΔEa* value. Therefore, we decided to vary the *ΔEa* value for each grain from samples
611 PL10 and PL4, i.e. samples with the lowest and the highest eU. The results are presented in
612 Fig. 7B and 7C. For each crystal, we determined the *ΔEa* value required so that the predicted
613 AHe agrees reasonably well with the measured AHe date so that in a prediction vs.
614 observation diagram, the data points lie around the 1:1 straight line (Figure 7B and 7C). *ΔEa*
615 values are represented on a color scale from pink to red, and are indicated on the plots. Please
616 remind that these simulations were performed using one single Tt path, the "expected model"
617 that fits AFT dates. At this stage, the rmr_0' parameter was chosen equal to rmr_0 (=0.81 and
618 0.82), calculated from the chemical composition measurements (using Ketcham et al., 2015).
619 We will come back to the role of a variable rmr_0' later.

620 For sample PL10, the simulation showed that the required *ΔEa* is relatively high (46<
621 *ΔEa* <87 kJ/mol), given the assumption made and the chosen thermal history. Additionally,
622 *ΔEa* is the main parameter to increase the predicted AHe date, and thus it increases with the
623 measured AHe date (Fig. 7C, purple to red triangles). As AHe positively correlates with eU in
624 PL10, *ΔEa* also increases with damage density (Fig.8). Damage clustering (recombination, or
625 gathering) may explain this implied increase in trapping energy.

This can be inferred from our understanding of the diffusion process at atomic scale: helium migration between sites is restricted due to its repulsion by neighbour atoms. To overcome this effect, helium atoms have to provide an additional energy. The energy that needs to be furnished in order to fit an atom (or one mole) of helium from outside of the crystal into an insertion site is called the "insertion energy" which amounts to 0.66 eV (Djimbi et al., 2015) in apatite, i.e. 64 kJ/mol. Extended damage, like cavities, are zones where the neighbor atoms are distant. Therefore, the repulsion effect drops, and the energy barrier height equals the insertion energy. On the other hand, small damage sites are neighboured by repelling atoms, which favors helium jump to another site. The energy barrier is thus smaller than for larger damage sites. *ΔEa* quantifies the increase in the required energy barrier induced by a default. This rise in energy is caused by the increase in the distance between helium and neighbour atoms that reduce the repulsion effects. Depending on the size of the defect site, the value of *ΔEa* ranges from 0 kJ/mol (no trapping effect in small-size defect site with high repulsion effects) to 64 kJ/mol (large cavitie, with efficient trapping). This range of values is also documented in the DFT calculation in the Gerin et al. (2017) study, where the values of *ΔEa* (20-50 kJ/mol) are beyond the insertion energy. Note that if the interaction between helium and neighbour atoms was attractive at moderate distance, the *ΔEa* values could theoretically be higher than the insertion energy.

5.4.4. Investigation of alpha recoil damage annealing behaviour

In this section, we used a similar approach, but kept the *ΔEa* value constant, and investigated the rmr_0' values required to reproduce AHe dates. Fig. 9A and 9B present the results of two simulations, performed with rmr_0' value of 0.7 and 0.9 (red triangles and green squares respectively), all other parameters being constant (*ΔEa*=40 or 70 kJ/mol). For AFT analysis, rmr_0 is 0.8-0.83, but we explore here any other variation of rmr_0'. The modeled AHe are negatively correlated to rmr_0' (red triangles are above green squares). This is consistent, as

651 alpha-recoil annealing enhances He diffusion (Gautheron et al., 2009; Shuster and Farley,
652 2009).

653 As is revealed by Figure 9A, except for low eU values, the AHe vs eU relationship is
654 better reproduced with rmr_o'=0.7 (red triangles) than with rmr_o'=0.9 (green squares). This
655 reveals that alpha-recoil damage likely anneal slowly – maybe more slowly than fission
656 tracks-, as suggested by Fox and Shuster (2014). Note that a high trapping energy is required,
657 as otherwise the observed AHe vs eU relationship would not be reproduced (Figure 9B).
658 Therefore, the conclusions of section 5.4.3 still stand.

659 **5.5. Implications regarding He trapping law**

660 The trapping energy (*ΔEa)* quantifies the damage topology as it increases with the
661 damage site size and when defects cluster as proposed by Gerin et al. (2017). As illustrated in
662 Fig. 8, the present study suggests that – given the assumption made and the chosen expected
663 Tt path – a positive correlation between *ΔEa* and eU can explain the data at low eU (in the
664 sample PL10). The conclusions from all the parameter tweaking (*ΔEa* and rmr_o') is that in
665 order to reproduce both the AHe and the AFT dataset the trapping energy has to be high
666 enough (>46 kJ/mol) and to vary between crystals. This is the main difference between the
667 Gerin et al. (2017) model and oher radiation models: in QTQt, other radiation models such as
668 the Flowers et al. (2009) or Gautheron et al. (2009) model consider that the activation energy
669 is constant for all crystals. Within the Gerin et al. (2017) model, the trapping energy can be
670 varied between grains, and that's why we can reproduce our dataset.

671 Our study suggests that this trapping energy increases with the alpha dose below a
672 threshold. It may reveal that: (i) in low damaged apatites, defect clustering occurs with dose
673 accumulation, while (ii) after a damage dose threshold is reached, the damage site size
674 declines or defect declustering occurs. Defect clustering in low damaged apatites likely leads
675 to an increase in He retentivity, due to the creation of microvoids in apatite (Zeitler et al.,

676 2017). The geometry of damaged zones may be drastically modified in highly damaged
677 apatites, as already mentioned earlier. If this were also a significant process for high eU
678 apatite, the damage accumulation physics of Gerin et al. (2017) would not be applicable, and
679 another model should be elaborated specifically for highly damaged samples.

680 **6. Conclusion**

681 Our study investigated variations in (U-Th-Sm)/He date from samples with differing
682 chemistry and petrography, which have undergone a protracted low temperature thermal
683 history. Fission track analysis and geological constraints show that the samples were first
684 exhumed after the Variscan orogeny, and then were buried until 110°C during the Jurassic,
685 before being exhumed once more. Our study investigated some parameters that have the
686 potential to influence He diffusion in apatite.

687 Results show dispersed (U-Th-Sm)/He dates, ranging from 80±8 to 291±29 Ma, which
688 are mostly older than the central AFT dates (142±6 to 199±9 Ma). In detail, the (U-Th-
689 Sm)/He dates increase with the effective uranium content (for eU < 60-80 ppm) and effective
690 recoil track density (< 2-3×10^{16} alpha/g). This confirms that crystal damage strongly controls
691 He trapping in apatite. For higher alpha doses, ten crystals preliminarily suggest a decrease in
692 helium retention above a threshold in damage content; but this should be investigated further
693 by future works. Apatite grain chemistry was also investigated to test its potential impact on
694 AHe dates. Our data suggest that either there is no chemical control on AHe dates or our
695 measured elemental concentrations do not vary enough to impact significantly on the
696 measured AHe dates.

697 Current He radiation damage models fail to reproduce the present dataset adequately
698 and they cannot reconcile the apparent discrepancy between AFT and AHe dates. To
699 determine whether this discrepancy can be resolved we implemented the recent He diffusion
700 model by Gerin et al. (2017) and an alpha damage annealing law similar to the Ketcham et al.

(2007)'s model for fission tracks. We tested the sensitivity of the model to variations in alpha recoil damage trapping energy (*ΔEa*) and annealing kinetics. Thus, we dertermined the *ΔEa* and rmr_0' parameters required to reproduce the data. Rmro' characterizes annealing kinetics of alpha damage. (U-Th-Sm)/He and AFT dates can be adequately modeled together using (i) enhanced trapping, or (ii) reduced annealing (or a combination of both). The first mechanism requires high damage trapping energy values (*ΔEa* of 40-80 kJ/mol), which exceeds estimates for a single vacancy from DFT calculations (~30 kJ/mol). This may be understandable if the accumulated individual damage sites coalesce to form single connecting vacancies, thereby creating extended damaged domains.

For high alpha doses, if the decrease of AHe dates is confirmed by future works, then we suggest a similar behavior than previously described in zircon by Ketcham et al. (2013), involving topological modification or damage interconnection. Variations in annealing kinetics induce some dispersion in AHe dates, but cannot explain the observed AHe scattering without any change in damage trapping energy. The second key point revealed by the samples from Tregor is that alpha recoil probably anneals slower than fission tracks. Future models should take this into consideration and investigate damage annealing mechanisms.

Acknowledgments

Julien Beucher is thanked for his participation in apatite picking and sample preparation for U-Th measurements. Ludovic Lafforgue is gratefully thanked for help during density separation and AHe analysis at GEOPS, and Remi Leprêtre for insightful discussions. Valentina Batanova is aknowledged for EPMA analyses at ISTerre, and Martin Richter for his help during trace elements analysis at UCL, London. Barry Kohn, Richard Ketcham, and an anonymous reviewer greatly improved the manuscript by their insightful comments. This work is part of the ANR-12-BS06-0005 HeDiff project.

References

Albarède F., Dupuis C., Taylor Jr H.P., 1980. $^{18}O/^{16}O$ evidence for non-cogenetic magmas associated in a 300 Ma old concentric pluton at Ploumanac'h (Brittany, France). J. Geol. Soc. 137: 641-647.

729 Ault A., Flowers R.M., 2012. Is apatite U-Th zonation information necessary for accurate
730 interpretation of apatite (U-Th)/He thermochronometry data? Geochim. Cosmochim.
731 Acta 79: 60-78.
732 Auvray, B., Charlot, R., Vidal P., 1980. Nouvelles donnees sur le proterozoique inferieur du
733 domaine nord Armoricain (France): âge et signification. Revue canadienne des Sciences
734 de la Terre 17: 532-538.
735 Ballèvre, M., Bosse, V., Ducassou, C., Pitra, P., 2009. Palaeozoic history of the Armorican
736 Massif: models for the tectonic evolution of the suture zones. C.R. Geoscience 341:
737 174-201.
738 Ballèvre, M., Bosse, V., Dabard, M.P., Ducassou, C., Fourcade, S., Paquette, J.L., Peucat, J.,
739 Pitra, P., 2012. Histoire geologique du Massif Armoricain: actualite de la recherche.
740 Bull. Soc. Geol. Mineral. Bretagne, 10-11: 5-96.
741 Ballouard, C., Poujol, M., Jolivet, M., Boulvais, P., Tartese, R., Dubois, C., Hallot, E.,
742 Dabard, M.P., Ruffet, G., 2015. Geochronological and thermochronological constraints
743 on the Carboniferous magmatism from the Armorican Massif: from the source to the
744 exhumation. Conference poster. Variscan 2015, Jun 2015, Rennes, France.
745 Barbarand, J., Pagel, M., 2001. Contrôle de la cicatrisation des traces de fission dans les
746 cristaux d'apatite: le rôle de la composition chimique. C.R. Acad. Sci. Paris. 332: 259-
747 265.
748 Barbarand, J., Carter, A., Wood, I., Hurford, T., 2003. Compositional and structural control of
749 fission-track annealing in apatite. Chem. Geol., 198: 107-137.
750 Barbarand J., Lucazeau F., Pagel M., Séranne M., 2001. Burial and exhumation history of the
751 south-eastern Massif Central (France) constrained by apatite fission-track
752 thermochronology. Tectonophysics 335: 275-290.
753 Barrière, M., 1977a. Deformation associated with the Ploumanac’h intrusive complex,
754 Brittany. J. Geol. Soc. 134: 311-324.
755 Barrière, M., 1977b. Le complexe de Ploumanac’h, Massif Armoricain. Essai sur la mise en
756 place et l'évolution pétrologique d'une association plutonique subalcaline tardi-
757 orogénique. PhD. Université de Brest.
758 Barrière, M., 1981. On Curved Laminae, Graded Layers, Convection Currents and Dynamic
759 Crystal Sorting in the Ploumanac’h (Brittany) Subalkaline Granite. Contrib. Min. Petrol.
760 77: 214-224.
761 Bengtson A., Ewing, R.C., Becker U., 2012. He diffusion and closure temperatures in apatite
762 and zircon: a density functional theory investigation. Geochim. Cosmochim. Acta 86:
763 228-238.
764 Bessin P., Guillocheau F., Robin C., Schrötter J.M., Bauer H., 2014. Planation surfaces of the
765 Armorican Basin (Western France): Denudation chronology of a Mesozoic land surface
766 twice exhumed in response to relative crustal movements between Iberia and Eurasia.
767 Geomorphology 233:75-91.
768 Beucher, R., Brown, R.W., Roper S., Stuart, F., Persano, C., 2013. Natural age dispersion
769 arising from the analysis of broken crystals. Part II. Practical application to apatite (U-
770 Th)/He thermochronometry. Geochim. Cosmochim. Acta 120: 395-416.
771 Brown R.W., Beucher R., Roper S., Persano C., Stuart F., Fitzgerald P., 2013. Natural age
772 dispersion arising from the analysis of broken crystals. Part I: Theoretical basis and
773 implications for the apatite (U-Th)/He thermochronometer. Geochim. Cosmochim. Acta
774 122: 478-497.
775 Carlson, W.D., Donelick, R.A., Ketcham, R.A., 1999. Variability of apatite fission-track
776 annealing kinetics: I. Experimental results. Am. Min. 84: 1213-1223.

777 Chantraine, J., Egal, E., Thieblemont, D., Le Goff, F., Guerrot, C., Ballevre, M., Guennoc, P.,
778 2001. The cadomian active margin (North Armorican massif, France): a segment of the
779 North Atlantic Panafrican belt. Tectonophysics 331: 1-18.
780 Chaumont, J., Soulet, S., Krupa, J.C., Carpéna, J., 2002. Competition between disorder
781 creation and annealing in fluoroapatite nuclear waste forms. J. Nuc. Mater. 301: 122-
782 128.
783 Cherniak D.J., Watson E.B., Thomas J.B., 2009. Diffusion of helium in zircon and apatite.
784 Chem. Geol. 268: 155-166.
785 Cros A., Gautheron C., Pagel M., Berthet P., Tassangot L., Douville E., Pinna-Jamme R.,
786 Sarda P., 2014. ^{4}He behavior in calcite filling viewed by (U-Th)/He dating, ^{4}He
787 diffusion and crystallographic studies. Geochim. Cosmochim. Acta 125: 414-432.
788 Djimbi, D., Gautheron C., Roques, J., Tassan-Got, L., Gerin, C., Simoni, E. 2015. Impact of
789 apatite chemical composition on (U-Th)/He thermochronometry: an atomistic point of
790 view. Geochim. Cosmochim. Acta 167: 162-176.
791 Ehlers, T.A., Farley, K.A., 2003. (U-Th)/He thermochronometry: methods and applications to
792 problems in tectonic and surface processes. Earth Planet. Sci. Lett. 206: 1-14.
793 Farley, K., 2000. Helium diffusion from apatite: general behavior as illustrated by Durango
794 fluoroapatite. J. Geophys. Res. 105: 2903-2914.
795 Farley, K.A., Shuster D.L., Ketcham R.A., 2011. U and Th zonation in apatite observed by
796 laser ablation and implications for the (U-Th)/He system. Geochimica et Cosmochimica
797 Acta 75: 4515-4530.
798 Flowers, R., Ketcham, R.A., Shuster, D., Farley, K.A., 2009. Apatite (U-Th)/He
799 thermochronology using a radiation damage accumulation and annealing model.
800 Geochim. Cosmochim. Acta 73: 2347-2365.
801 Fox M., Shuster, D.L., 2014. The influence of burial heating on the (U-Th)/He system in
802 apatite: Grand Canyon case study. Earth Planet. Sci. Lett. 397: 174-183.
803 Galbraith, R. F., Laslett, G. M. 1993. Statistical models for mixed fission track ages, Nucl.
804 Tracks Radiat. Meas. 21: 459–480.
805 Gallagher, K., Charvin, K., Nielsen, S., Sambridge, M., Stephenson, J., 2009. Markov chain
806 Monte Carlo (MCMC) sampling methods to determine optimal models, model
807 resolution and model choice for Earth Science problems. Marine and Petroleum
808 Geology 26: 525-535.
809 Gallagher, K., 2012. Transdimensional inverse thermal history modelling for quantitative
810 thermochronology. J. Geophys. Res. 117 (B02408): 16pp.
811 Gallagher, K., 2015. QTQt 5.4.3. user guide.
812 Gautheron, C., Tassan-got, L., Barbarand, J., Pagel, M., 2009. Effect of alpha-damage
813 annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. Chem. Geol. 266: 166-179.
814 Gautheron, C., Tassan-Got, L., 2010. A Monte Carlo approach of diffusion applied to noble
815 gas/helium thermochronology. Chem. Geol. 273: 212-224.
816 Gautheron, C., Tassan-got, L., Ketcham, R.A., Dobson, K.J., 2012. Accounting for long
817 alpha-particle stopping distances in (U-Th-Sm)/He geochronology: 3D modeling of
818 diffusion, zoning, implantation, and abrasion. Geochim. Cosmochim. Acta 96: 44-56.
819 Gautheron, C., Barbarand J., Ketcham R., Tassan-Got L., van der Beek P., Pagel M., Pinna-
820 Jamme R., Couffignal F. and Fiallin M., 2013. Chemical influence on α-recoil damage
821 annealing in apatite: implications for (U-Th)/He dating. Chem. Geol. 351: 257-267.
822 Gentil L., 1912. La Géologie du Maroc et la genèse de ses grandes chaînes. In: Annales de
823 Géographie, t. 21, no 116, pp. 130-158.
824 Gerin, C., Gautheron, C., Oliviero, E., Bachelet, C., Djimbi, M.D., Seydoux-Guillaume,
825 A.M., Tassan-Got, L., Sarda, P., Roques, J., Garrido, F. Influence of vacancy damage

826 on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scales. Geochim.
827 Cosmochim. Acta. 197: 87-103.
828 Graviou, P., 1984. Petrogenese des magmas calco-alcalins: exemple des granitoïdes
829 cadomiens de la region Tregorroise (Massif Armoricain). PhD, University of Rennes 1.
830 Green, P.F., Crowhurst, P.V., Duddy, I.R., Jaspen, P., Holford, S.P., 2006. Conflicting (U-
831 Th)/He and fission track ages in apatite: Enhanced He retention, not annealing
832 behaviour. Earth Planet. Sci. Lett. 250: 407-427.
833 Green, P.F., Duddy, I.R., 2006. Interpretation of apatite (U-Th)/He ages and fission track ages
834 from cratons. Earth Planet. Sci. Lett. 244: 541-547.
835 Guenthner, W.R., Reiners P.W., Ketcham R.A., Nasdala L., Giester G., 2013. Helium
836 diffusion in natural zircon: radiation damage, anisotropy, and the interpretation of
837 zircon (U-Th)/He thermochronology. Am. J. Sci. 313: 145-198.
838 Guillocheau, F., Brault, N., Thomas, E., Barbarand, J., Bonnet, S., Bourquin, S., Esteoule-
839 Choux, J., Guennoc, P., Menier, D., Neraudeau, D., Proust, J.N., Wyns, R., 2003.
840 Histoire geologique du Massif Armoricain depuis 140 Ma (Cretace-Actuel). Bulletin
841 d'information des geologues du Bassin de Paris 40: 13-28.
842 Herman F., Seward D., Valla P.G., Carter A., Kohn B., Wilett K.S.D., Ehlers T.A., 2013.
843 Worldwide acceleration of mountain erosion under a cooling climate. Nature 504: 423-
844 426.
845 Hillis, R.R., 1991. Chalk porosity and Tertiary uplift, Western Approaches Trough, SW UK
846 and NW French continental shelves. J. Geol. Soc., London 148, 669-679.
847 House M.A., Wernicke B.P., Farley K.A, 1998. Dating topography of Sierra Nevada,
848 California, using (U-Th)/He ages. Nature, 396: 66-69.
849 Hurford A.J., Green P., 1982. A users' guide to fission track dating calibration. Earth Planet.
850 Sci. Lett. 59: 343-354.
851 Janowski, M., Loget, N., Gautheron, C., Barbarand, J., Bellahsen, N., Van den Driessche, J.,
852 Babault, J., Meyer, B., 2017. Neogene exhumation and relief evolution in the eastern
853 Betics (SE Spain): insights from the Sierra de Gador. Terra Nova 29, 91-97.
854 Jochum, K.P., Weis U., Stoll B., Kuzmin D., Qichao Y., Raczek I., Jacob D.E., Stracke A.,
855 Birbaum K., Frick D.A., Gûnther D., Enzweiler J., 2011. Determination of reference
856 values for NIST SRM 610-617 glasses following ISO guidelines. Geostandards and
857 Geoanalytical Research 35: 397-429.
858 Kent A.J.R., Jacobsen B., Peate D.W., Waigth T.E., Baker, J.A., 2007. Isotope dilution MC-
859 ICP-MS rare earth element analysis of geochemical reference materials NIST SRM 610,
860 NIST SRM 612, NIST SRM 614, BHVO-2G, BCR-2G, JB-2, WS-E, W-2, AGV-1, and
861 AGV-2. Geostandards and Geoanalytical research, 28: 417-429.
862 Ketcham, R.A., 2005. Forward and inverse modelling of low-temperature thermochronolgy
863 data. In: Reiners P.W and Ehlers T.A. (Ed.) Low temperature thermochronology:
864 techniques, interpretations and applications. Reviews in mineralogy and geochemistry,
865 275-314.
866 Ketcham, R.A., Carter, A., Donelick, R.A., Barbarand, J., Hurford, A.J., 2007. Improved
867 modeling of fission-track annealing in apatite. Am. Min. 92: 799-810.
868 Ketcham, R.A., Gautheron, C., Tassan-got, L., 2011. Accounting for long alpha-particle
869 stopping distances in (U-Th-Sm)/He geochronology: refinement of the baseline case.
870 Geochim. Cosmochim. Acta. 75: 7779-7791.
871 Ketcham, R.A., Guenthner W.R., Reiners P., 2013. Geometric analysis of radiation damage
872 connectivity in zircon, and its implications for He diffusion. Am. Min. 98: 350-360.
873 Ketcham, R.A., 2015. Technical note: calculation of stoichiometry from EMP data for apatite
874 and other phases with mixing monovalent anion sites. Am. Min. 100: 1620-1623.

Kraml, M. Pik, R., Rahn, M., Selbekk, R., Carignan, J., Keller, J. 2006. A new multi-mineral age reference material for $^{40}Ar/^{39}Ar$, (U-Th)/He and fission track dating methods: The Limberg t3 tuff. Geostandards and Geoanalytical Research, 30: 73-86.

Laslett, G.M., Gleadow, A., Duddy, I.R., 1994. The relationship between fission-track length and track density in apatite. Nucl. Tracks 9: 29-38.

Leprêtre, R., Missenard, Y., Barbarand, J., Gautheron C., Saddiqi O., Pinna-Jamme R., 2015. Postrift history of the eastern central Atlantic passive margin: insights from the Saharan region of South Morocco. J. Geophys. Res. 120: 4645-4666.

Menpes, R.J., 1997. Tertiary uplift and its implications for the tectonic evolution of sedimentary basins offshore South-West United Kingdom. PhD, The University of Adelaide (South Australia).

McDowell, F.W., McIntosh, W.C., Farley, K.A., 2005. A precise ^{40}Ar-^{39}Ar reference age for the Durango apatite (U-Th)/He and fission-track dating standard. Chem. Geol. 214: 249-263.

Michard A., Saddiqi O., Chalouan A., De la Motte F., 2008. Continental evolution: the geology of Morocco. Structure, stratigraphy, and tectonics of the Africa-Atlantic Mediterranean triple junction. Lecture Notes in Earth Sciences 116, Springer Berlin.

Miro S., Studer F., Constantini J.-M., Haussy J., Trouslard P., Grob J.-J., 2006. Effect of composition on helium diffusion in fluoroapatites investigated with nuclear reaction analysis. J. Nucl. Mat. 355, 1-9.

Murray K.E., Orme D.A., Reiners P.W., 2014. Effects of U-Th-rich grain boundary phases on apatite Helium ages. Chem. Geol. 390, 135-151.

Owen, T.R., 1976. The Geology of the Western Approaches. In Nairn, A.E.M. and Stehli, F.G (eds). The ocean basins and margins, Vol.2: The North Atlantic. Springer. 232-272.

Peucat, J.J., 1986. Behaviour of Rb-Sr whole rock and U-Pb zircon systems during partial melting as shown in migmatitic gneisses from St Malo Massif, NE Brittany, France. J. Geol. Soc 143: 875-885.

Pin, C., Peucat, J.J., 1986. Ages des episodes de metamorphisme paleozoïques dans le Massif central et le Massif armoricain. Bull. Soc. Geol. France 8: 461-469.

Reiners, P.W., Farley, K.A., 2001. Influence of crystal size on apatite (U+Th)/He thermochronology: an example from the Bighorn Mountains, Wyoming. Earth Planet. Sci. Lett. 188, 413–420.

Reiners, P.W., Brandon, M.T. 2005. Using thermochronology to understand orogenic erosion. Annual Review of Earth and Planetary Sciences 34: 419-466.

Ruffel A., 1995. Evolution and hydrocarbon prospectivity of the Brittany Basin (Western Approaches Trough), offshore North-West France. Marine Petrol. Geol. 12: 387-407.

Shuster, D., Flowers, R., Farley, K.A., 2006. The influence of natural radiation damage on helium diffusion kinetics in apatite. Earth Planet. Sci. Lett. 249: 148-161.

Shuster D.L., Farley K.A., 2009. The influence of artificial radiation damage and thermal annealing on helium diffusion kinetics in apatite. Geochim. Cosmochim. Acta. 73: 183-196.

Spiegel C., Kohn B., Belton D., Berner Z., Gleadow A., 2009. Apatite (U-Th-Sm)/He thermochronology of rapidly colled samples: The effect of He implantation. Earth Planet. Sci. Lett. 285: 105-114.

Stock G.M., Ehlers T.A., Farley K.A., 2006. Where does sediment come from? Quantifying catchment erosion with detrital apatite (U-Th)/He thermochronometry. Geology 34: 725-728.

Siddall R., 1993. Thermotectonic evolution of the continental margins of the Bay of Biscay: application of apatite fission-track analysis. PhD, University of London.

924 Valla, P.G., Shuster, D.L., Van der Beek P.A., 2011. Significant increase in relief of the
925 European Alps during mid-Pleistocene glaciations. Nature Geos. 4: 688-692.
926 Vermeesch P., Seward D., Latkoczy C., Wipf M., Günther D., Baur H., 2007. α-emitting
927 mineral inclusions in apatite, their effect on (U-Th)/He ages, and how to reduce it.
928 Geochim. Cosmochim. Acta. 71: 1737-1746.
929 Vidal, P., Auvray, B., Charlot, R., Cogné, J., 1981. Precadomian relicts in the Armorican
930 Massif: Their age and role in the evolution of the western and central European
931 Cadomian-Hercynian belt. Precambrian Res. 14: 1-20.
932 Wolf R., Farley K.A., Dass D., 1998. A sensitivity analysis of the apatite (U-Th)/He
933 thermochronometer. Chem. Geol. 148, 105-114.
934 Zeitler P.K. , Enkelmann E., Thomas J.B., Watson E.B., Ancuta L.D., Idleman B.D., 2017.
935 Solubility and trapping of helium in apatite. Geochimica et Cosmochimica Acta 209: 1-
936 8.
937 Ziegler, P.-A., 1987. Evolution of the Western Approaches trough. Tectonophysics, 137: 341-
938 346.

939

940

941
942

Table captions

Table 1: Sample lithology and location.

Table 2: AFT data.

Table 3: AHe age data and chemical composition for select elements.

Table 4: Apatite mean composition (wt%).

Figure captions

Figure 1: Geological setting and sample location. (A) Regional map of northwestern France, and location of the Armorican massif. Pink areas are outcropping Paleozoic basement massifs. (B) Geological map of the "pink granite coast" (Brittany, France), and location of the Ploumanac'h pluton. (C) Lithological map of the Ploumanac'h intrusion, and fission track analysis results (this study). Sample locations, crystallization ages, central AFT ages, and mean fission track lengths are shown.

Figure 2: Individual AHe dates as function of (A) effective U concentration and (B) alpha dose. The colors indicate sample location and lithology: PL10 (cyan squares), PL11 (dark purple diamonds), PL7 (light purple triangles), PL4 (yellow circles), PL6 (dark red circles), and external pink granites (red circles). Alpha dose was calculated from U, Th, ans Sm contents over 250 Ma. In (B) only data where U, Th, and Sm were analyzed are shown.

Figure 3: Histograms of apatite chemical composition. Measurements were made on 339 single crystals, using EPMA. The dots represent the raw data, with the same color code than in Figure 3. Purple dots represent sample PL11. Units are oxide weights percent.

Figure 4: AHe dates as a function of (A) equivalent grain size and (B) crystal length. Pyr.: pyramidal termination. Bf.: Broken face. L: crystal length. Equivalent sphere radius size (Rs) was calculated based on measured individual grain dimensions.

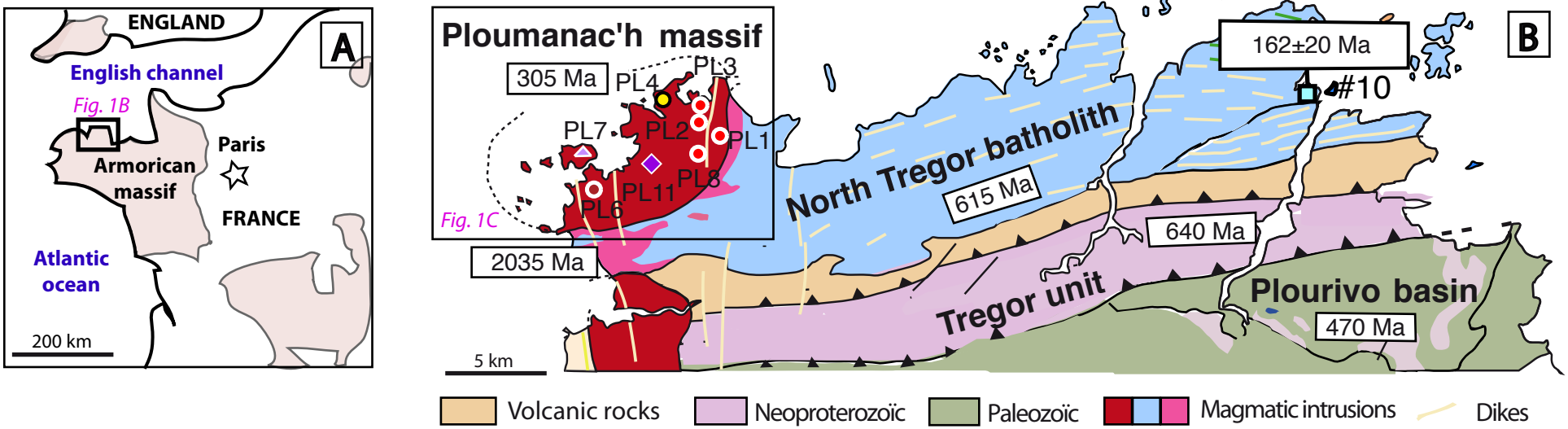
Figure 5: Individual AHe dates as function of chemistry. Relationship between AHe date and Sr (A), Ba (B), and La concentrations (D). Relationship between eU and Sr content (C). Error bars represent maximum uncertainties, i.e. 8% for AHe, 15% for Sr and La and eU, and 10 % for Ba. The color coding is the same as for Fig. 1, 3, and 4.

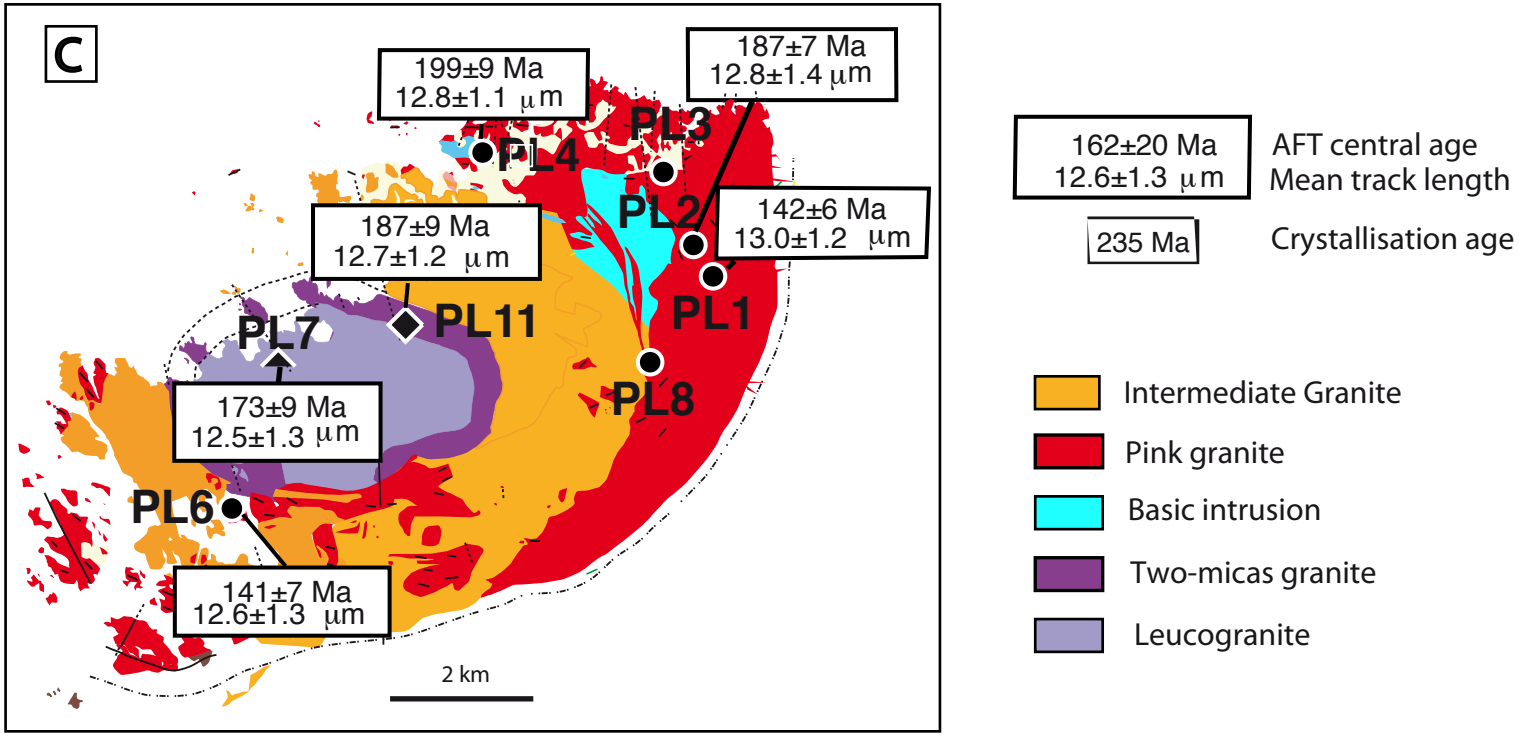
Figure 6: Thermal history reconstruction and forward simulations. (A) Thermal history reconstruction resulting from inverse simulation of the AFT dataset, along with geological constraints, using QTQt (Gallagher, 2012). (B) Forward simulations of AFT dataset using this (T-t) path (green squares) or a 80°C Jurassic reheating (red squares) using QTQt. The yellow square is issued from the inversion of PL1 only. (C) Forward simulation performed using the Flowers et al. (2009) model, with two different burial temperature, carried out with QTQt. (D) Forward simulations using the Gautheron et al. (2009) model, carried out using QTQt for two different burial temperatures. The error bar on raw AHe ages is 5%.

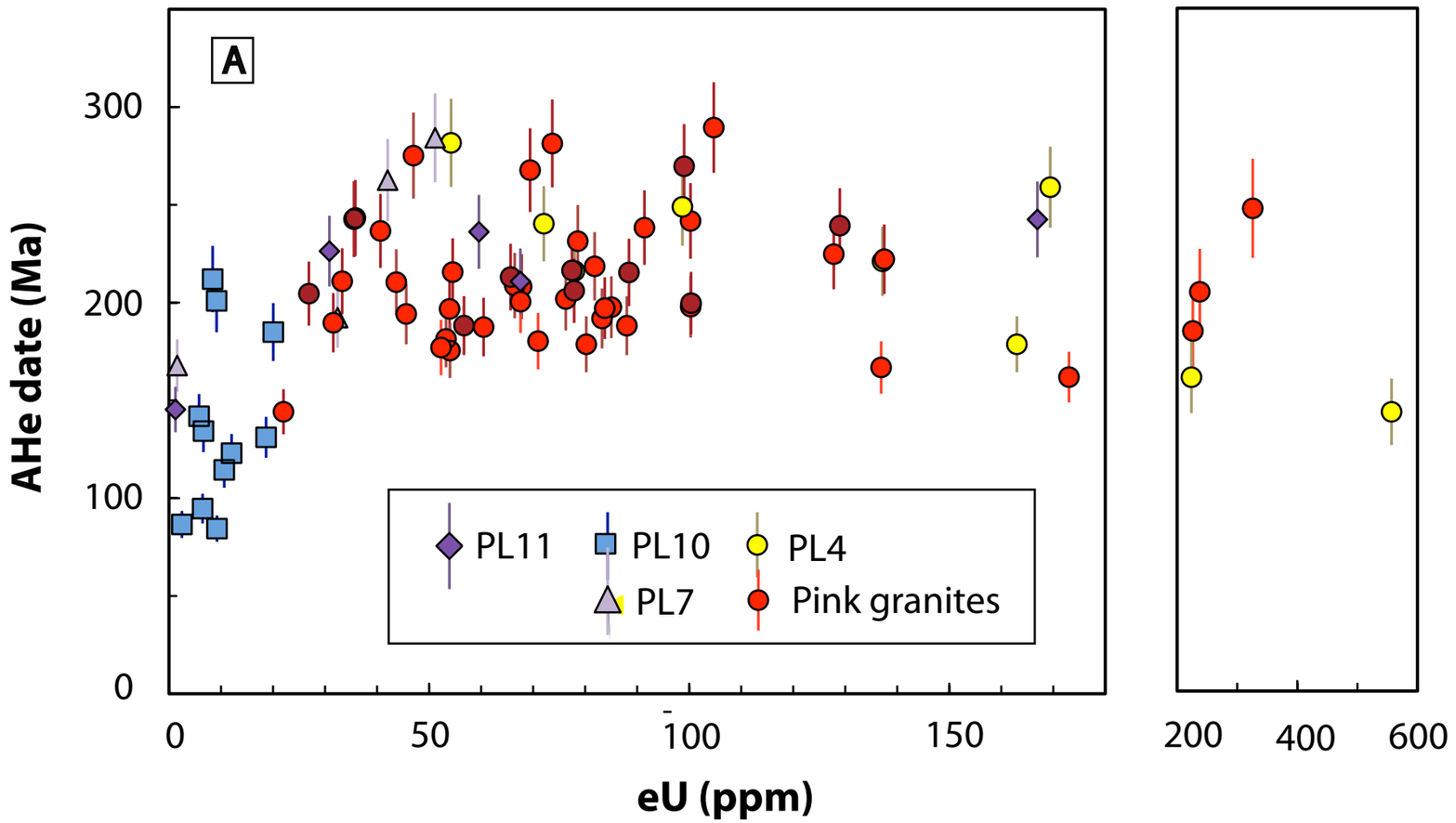
Figure 7: Evolution of the AHe dates as a function of the trapping energy. Forward simulations of AHe dates using Gerin et al. (2017), with constant damage annealing rate (rmro'=rmro). (A) Forward simulation results of the AHe vs eU relationship obtained for ΔEa=30 kJ/mol (red triangles), 40 kJ/mol (yellow losangles), and ΔEa=70 kJ/mol (green squares), compared to observations (blue dots). (C) and (D): ΔEa calibration obtained for sample PL10 and PL4. Colors and numbers indicate ΔEa values (see color code). Squares represent AFT data and triangles represent AHe dates.

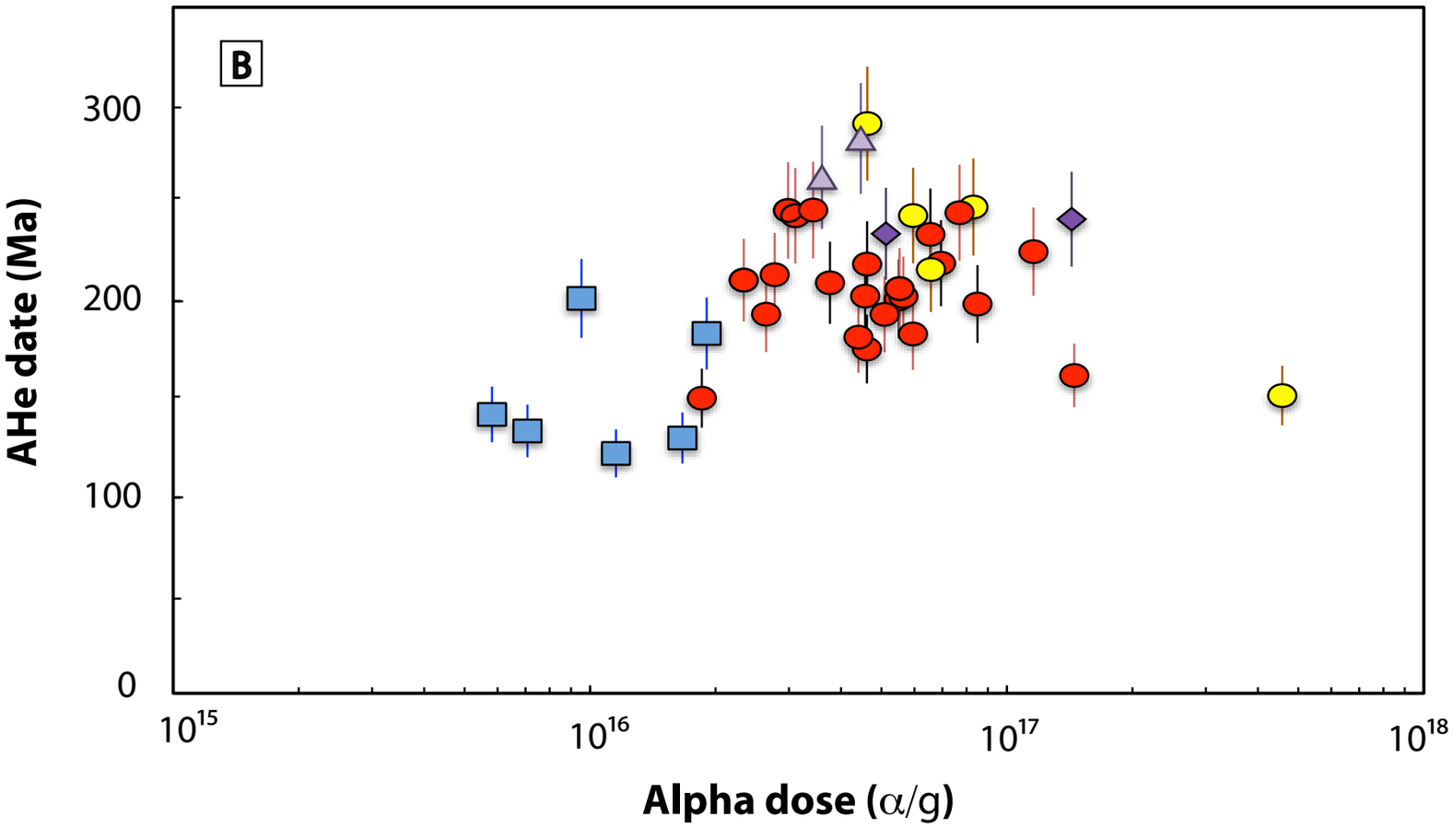
Figure 8: Evolution of the inferred trapping energy ΔEa with the effective uranium (eU). Results for PL4 and PL10,which required trapping energy range from 46 to 120 kJ/mol.

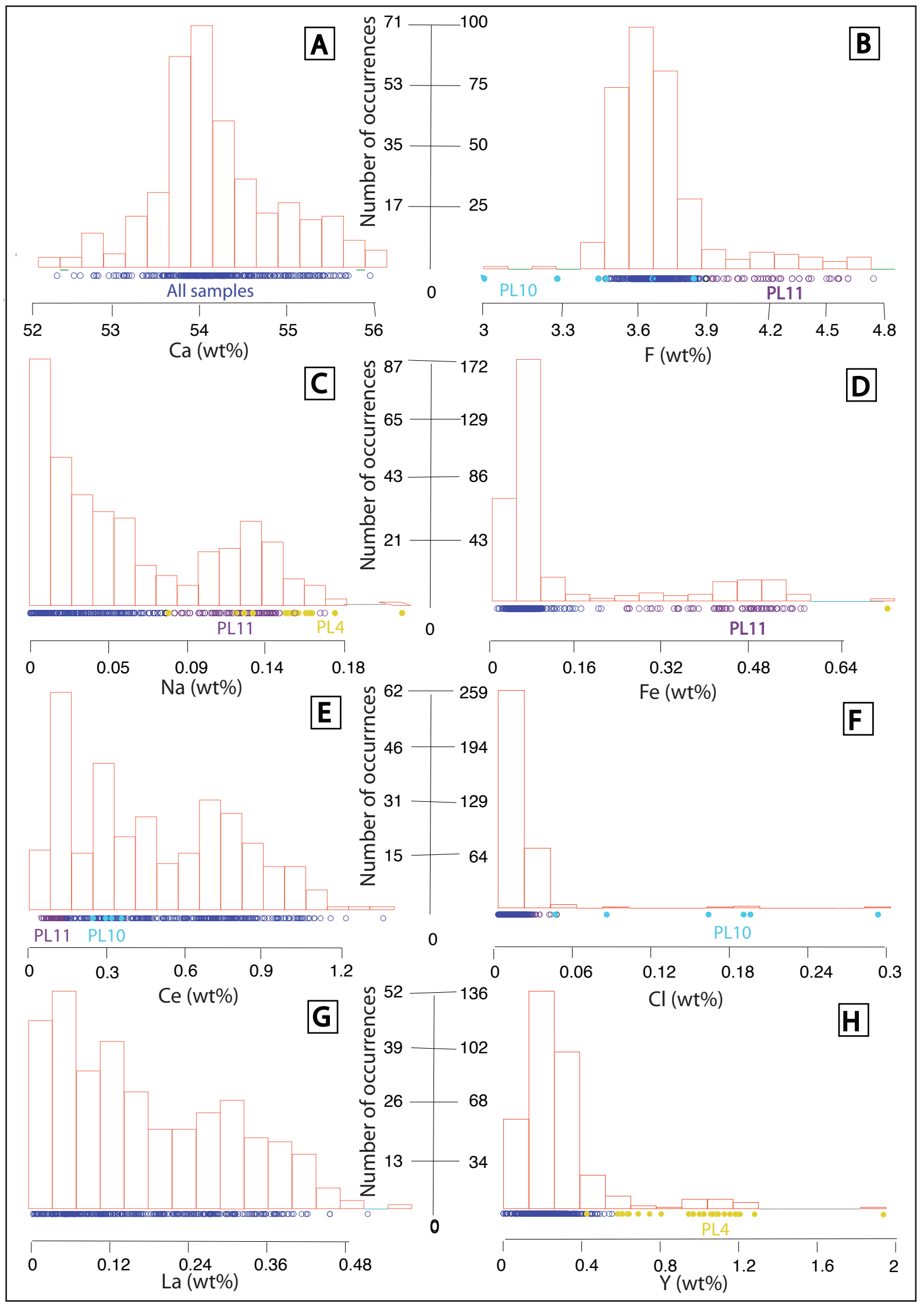
Figure 9: Damage annealing simulation. Forward simulations of AHe dates were performed using Gerin et al. (2017), using the thermal history obtained from geological and AFT constraints. Alpha damage annealing rate is quantified by a variable rmr_0'. (A) AHe vs eU relationship obtained for rmr_0'=0.7 (red triangles) and 0.9 (green squares) with ΔEa=70 kJ/mol and (B) ΔEa=40 kJ/mol.

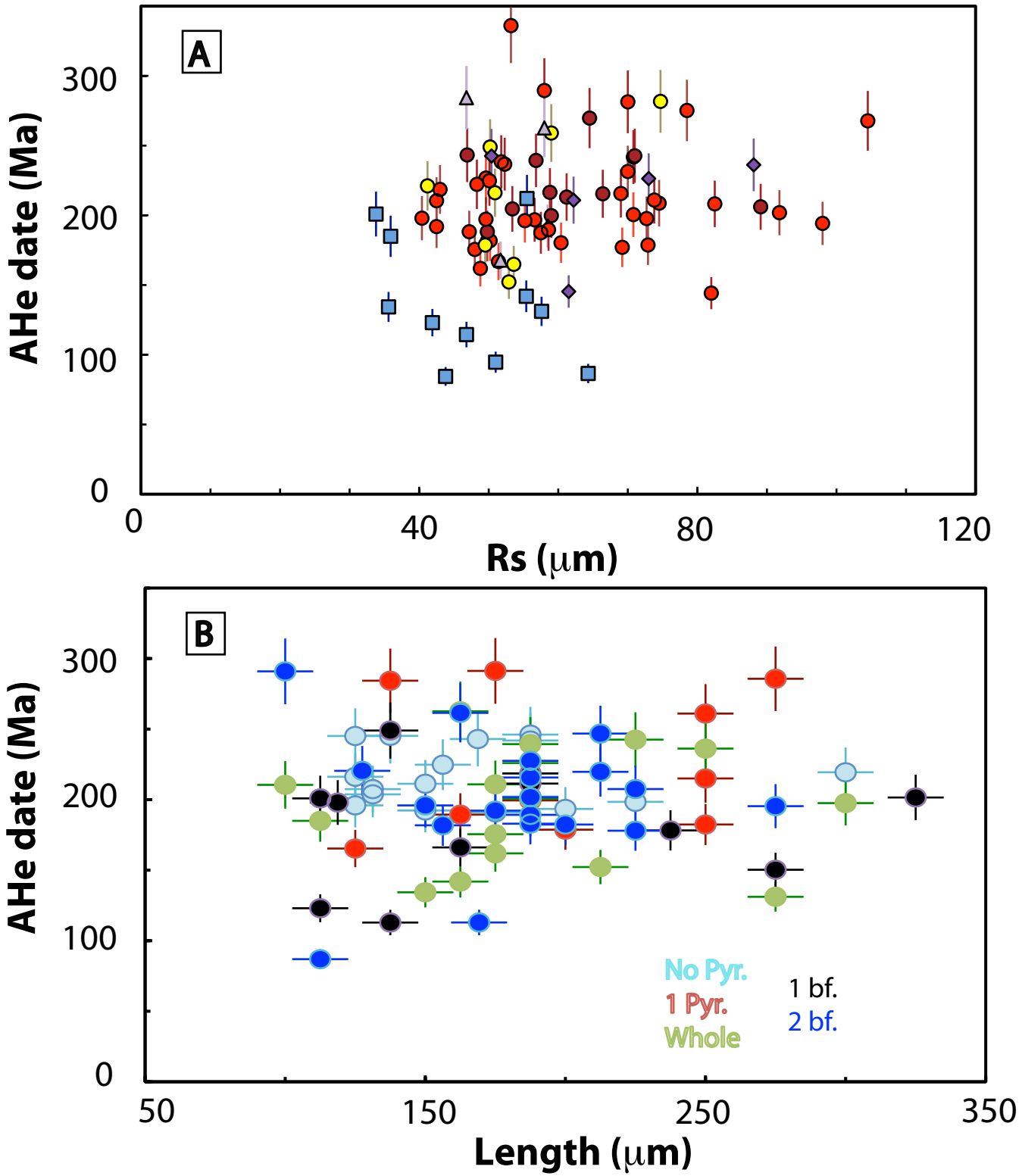

A
ENGLAND
English channel
Fig. 1B
Paris
Armorican massif
FRANCE
Atlantic ocean
200 km
Ploumanac'h massif
305 Ma
PL4
PL3
PL7
PL2
PL1
PL8
PL11
PL6
Fig. 1C
2035 Ma
5 km
North Tregor batholith
615 Ma
640 Ma
Tregor unit
Plourivo basin
470 Ma
162±20 Ma
#10
B
Volcanic rocks
Neoproterozoïc
Paleozoïc
Magmatic intrusions
Dikes

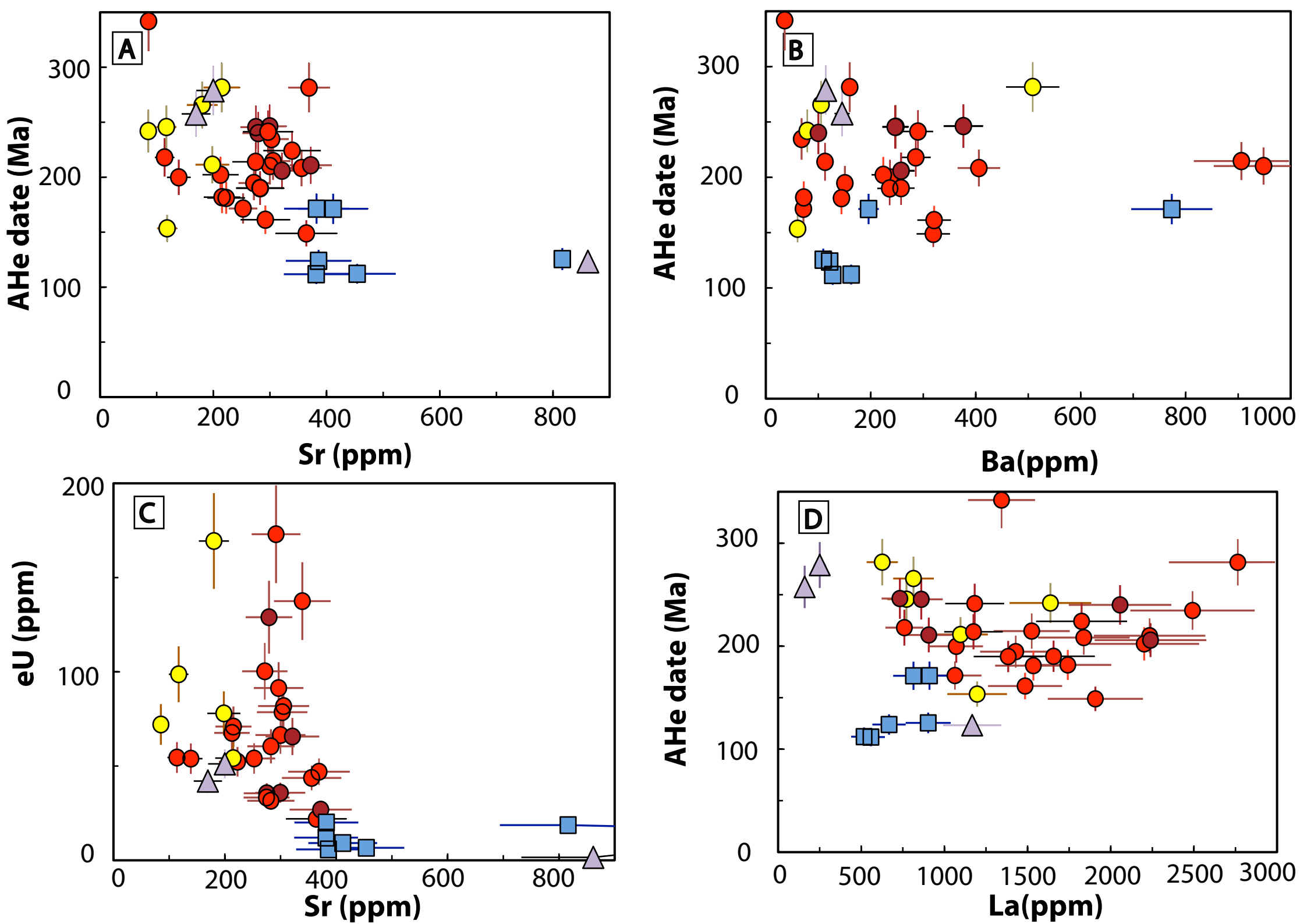

C
199±9 Ma
12.8±1.1 µm
187±7 Ma
12.8±1.4 µm
PL4
PL3
PL2
142±6 Ma
13.0±1.2 µm
187±9 Ma
12.7±1.2 µm
PL11
PL1
PL7
PL8
173±9 Ma
12.5±1.3 µm
PL6
141±7 Ma
12.6±1.3 µm
2 km
162±20 Ma
12.6±1.3 µm
AFT central age
Mean track length
235 Ma
Crystallisation age
Intermediate Granite
Pink granite
Basic intrusion
Two-micas granite
Leucogranite

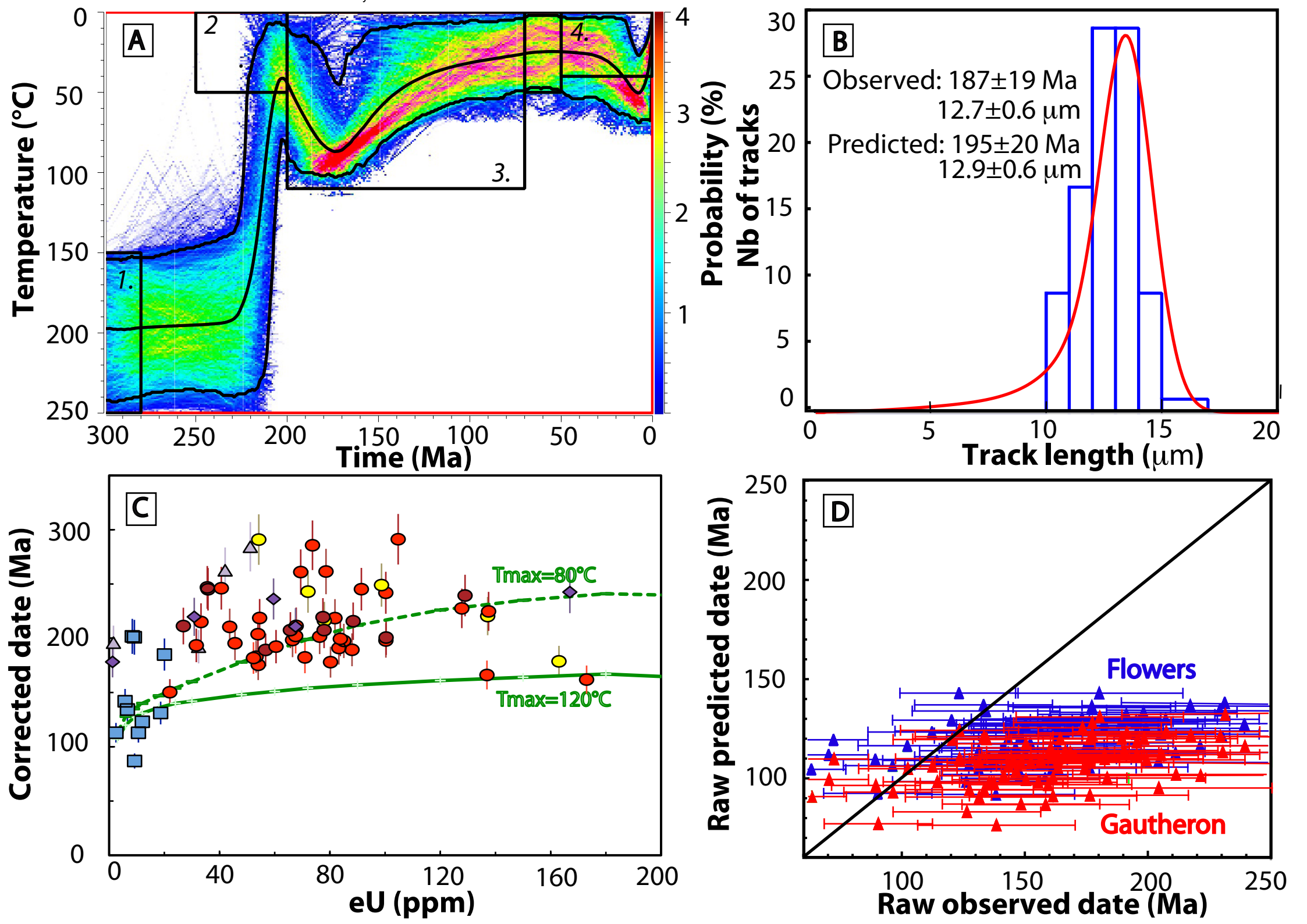

A
AHe date (Ma)
300
200
100
0
0
50
100
150
200
400
600
eU (ppm)
PL11
PL10
PL4
PL7
Pink granites

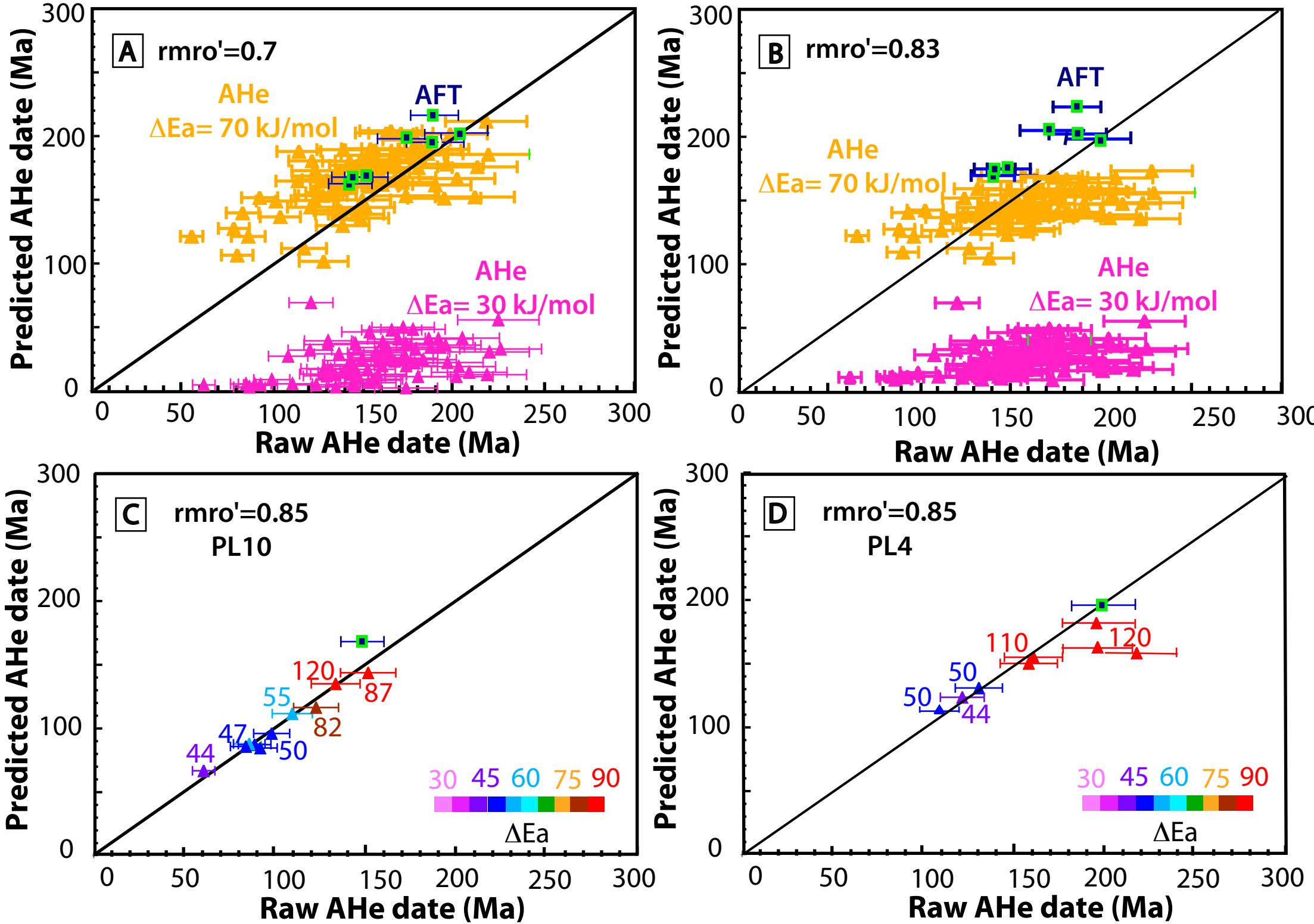

B
AHe date (Ma)
300
200
100
0
10^{15}
10^{16}
10^{17}
10^{18}
Alpha dose (α/g)

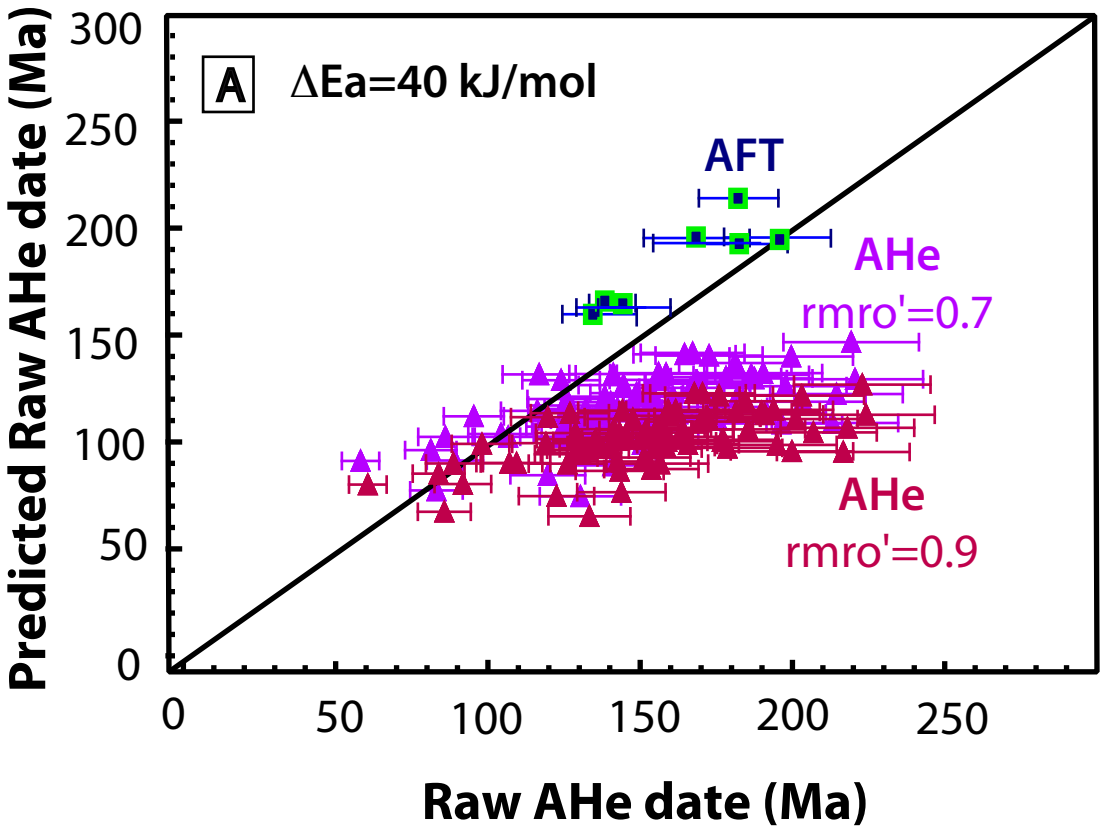

A
B
C
D
E
F
G
H
Number of occurrences
All samples
PL10
PL11
PL4
Ca (wt%)
F (wt%)
Na (wt%)
Fe (wt%)
Ce (wt%)
Cl (wt%)
La (wt%)
Y (wt%)

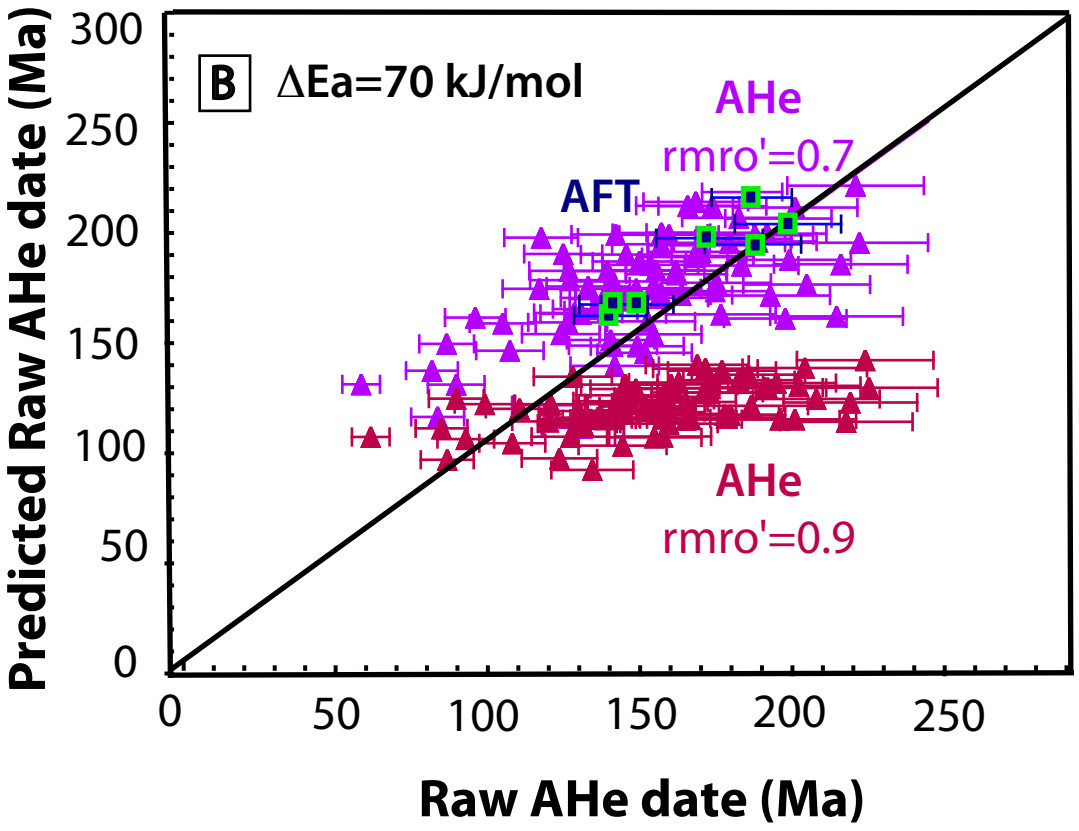

A
AHe date (Ma)
300
200
100
0
0
40
80
120
Rs (μm)
B
AHe date (Ma)
300
200
100
0
50
150
250
350
Length (μm)
No Pyr.
1 Pyr.
Whole
1 bf.
2 bf.


A
AHe date (Ma)
Sr (ppm)
0
100
200
300
0
200
400
600
800
B
AHe date (Ma)
Ba(ppm)
0
100
200
300
0
200
400
600
800
1000
C
eU (ppm)
Sr (ppm)
0
100
200
0
200
400
600
800
D
AHe date (Ma)
La(ppm)
0
100
200
300
0
500
1000
1500
2000
2500
3000


A
1.
2
3.
4.
Temperature (°C)
Time (Ma)
B
Observed: 187±19 Ma
12.7±0.6 µm
Predicted: 195±20 Ma
12.9±0.6 µm
Probability (%)
Nb of tracks
Track length (µm)
C
Tmax=80°C
Tmax=120°C
Corrected date (Ma)
eU (ppm)
D
Flowers
Gautheron
Raw predicted date (Ma)
Raw observed date (Ma)


A
rmro'=0.7
AHe
ΔEa= 70 kJ/mol
AFT
AHe
ΔEa= 30 kJ/mol
Predicted AHe date (Ma)
Raw AHe date (Ma)
B
rmro'=0.83
AFT
AHe
ΔEa= 70 kJ/mol
AHe
ΔEa= 30 kJ/mol
Predicted AHe date (Ma)
Raw AHe date (Ma)
C
rmro'=0.85
PL10
120
87
55
82
47
50
44
30 45 60 75 90
ΔEa
Predicted AHe date (Ma)
Raw AHe date (Ma)
D
rmro'=0.85
PL4
110
120
50
50
44
30 45 60 75 90
ΔEa
Predicted AHe date (Ma)
Raw AHe date (Ma)


A
ΔEa=40 kJ/mol
AFT
AHe
rmro'=0.7
AHe
rmro'=0.9
Predicted Raw AHe date (Ma)
Raw AHe date (Ma)
0
50
100
150
200
250
300


B
ΔEa=70 kJ/mol
AHe
rmro'=0.7
AFT
AHe
rmro'=0.9
Predicted Raw AHe date (Ma)
Raw AHe date (Ma)
0
50
100
150
200
250
300

5. Apports sur l'histoire thermique du Massif Armoricain

5.1. Inversion des données traces de fission

L'étude thermochronométrique du pluton de Ploumanac'h nous a permis d'obtenir des âges AFT du Nord Trégor (Recanati et al., 2017). Les âges AFT sont de 141±7 Ma à 199±9 Ma. L'inversion numérique des données traces de fission a précisé l'histoire thermique du Trégor, que voici en figure III-9A pour plus de clarté. Figure III-9B, on remarque que cette inversion est satisfaisante car elle reproduit relativement bien les âges élevés. Elle surestime les deux âges dans la gamme de 140-151 Ma (PL1 et PL6). Néanmoins, les âges élevés sont majoritaires, et ont été trouvés également par d'autres auteurs (Siddall, 1993 ; Ballouard et al., 2015b). Le but de l'article présenté ci-dessus était méthodologique. Discutons maintenant des implications géologiques qu'apporte cette histoire thermique (figure III-9A).

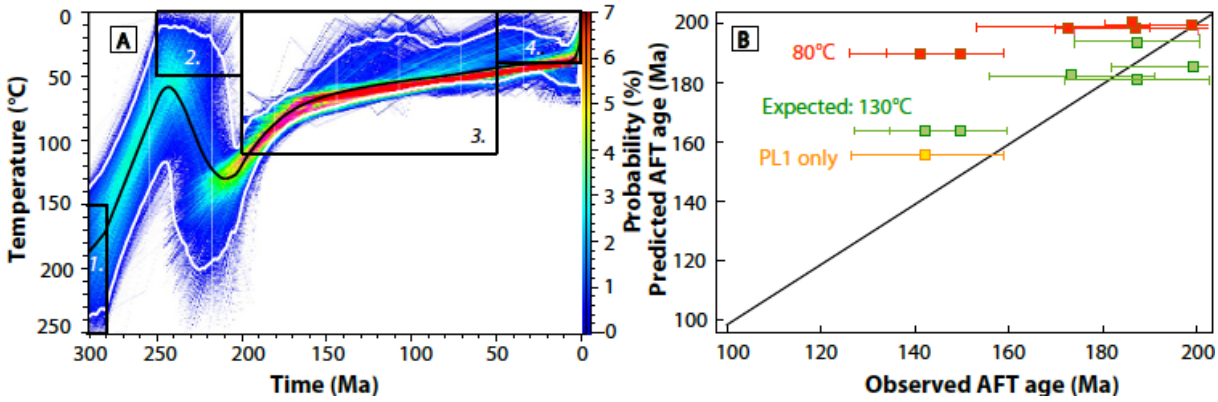


Figure III-9 : Histoire thermique issue de l'inversion AFT (Recanati et al., 2017)

A : Histoire thermique issue de l'inversion des données traces de fission, en ajoutant les boîtes de contrainte géologiques 1, 2, 3, et 4. 1 : le pluton était chaud il y a 300 Ma. 2 : Au Trias, le pluton était proche de la surface. 3 : Il n'y a pas eu de cicatrisation totale, donc le pluton était moins chaud que 110°C. 4 : Depuis au plus 50 Ma, le pluton était proche de la surface. B : Ages prédits vs. Ages observés, pour le modèle supposé (en noir en 9A) d'enfouissement à 130°C (carrés verts) et pour un modèle alternatif d'enfouissement à 80°C (carrés rouges). Simulations effectuées grâce au logiciel QTQt (Gallagher 2012).

Concernant le Trias, nous avons inclus dans les simulations une boîte de contraintes qui indique que le pluton était froid (sous 50°C) à cette époque. Cette boîte tient compte du

fait (i) que le Trias est une période d'érosion et d'émersion, (ii) qu'il y a une discordance socle/trias sur la bordure du massif, et (iii) que les âges AHe et AFT les plus vieux datent de 250 à 290 Ma. Il est intéressant de noter que les chemins les plus probables (en vert), passent dans la partie inférieure de la boîte (température de 30 à 50°C) et que certains chemins possibles (en bleu) passent sous la boîte. Cela semble indiquer que le pluton pourrait au Trias avoir été recouvert de sédiments triassiques ou de métasédiments paléozoïques.

Concernant le Jurassique, l'histoire thermique démontre bien l'existence d'un réchauffement à cette période. En effet, le modèle suppose un réchauffement jusqu'à 125°C au Jurassique. Un réchauffement plus faible (par exemple jusqu'à 80°C seulement) ne serait pas compatible avec les données traces : le modèle surestimerait alors les âges traces de fission. Ainsi, la phase de transgression marine d'ordre 1 et de sédimentation proposée par Guillocheau et al. (2003) et Bessin et al. (2014) est confirmée.

Il est difficile et délicat d'interpréter le réchauffement par une épaisseur de sédiments déposés. En effet : (i) le dépôt de sédiment n'est pas la seule source de réchauffement possible, et (ii) le gradient géothermique au Jurassique est inconnu. Nous ne pouvons alors que produire des hypothèses, à prendre avec des pincettes. Par exemple : la température maximale du réchauffement est de 125°C. En supposant un gradient géothermique entre 20 et 60°C/km, les 65°C de réchauffement prévus par le modèle (ligne noire de la figure III-9A) correspondent à un enfouissement sous 1 à 3 km, ce qui est du même ordre de grandeur que la puissance connue actuellement dans le basin de Paris (<2km) et dans la Manche Occidentale (1-1,5 km), reportée par Bessin et al. (2014). Néanmoins, le toit du Jurassique dans le Bassin de Paris est marqué par une discordance avec le Crétacé (forages du BRGM, InfoTerre), indiquant soit une absence de sédimentation soit une période d'érosion à la fin du Jurassique.

Le modèle résultant de l'inversion des données traces de fission suggère qu'après le Crétacé une dénudation à un taux constant a eu lieu (figure III-9A). Ainsi, nos données traces

de fission ne montrent pas la période d'immersion à la fin du Crétacé qui est indiquée par la présence de dépôts Cénomaniens à Campanien dans le Massif. Nous n'avons pas souhaité ajouter une boîte de contrainte supplémentaire à cette époque afin de ne pas trop forcer le modèle, mais nous avons testé l'hypothèse d'un réchauffement au crétacé par des simulations directes (figure III-10).

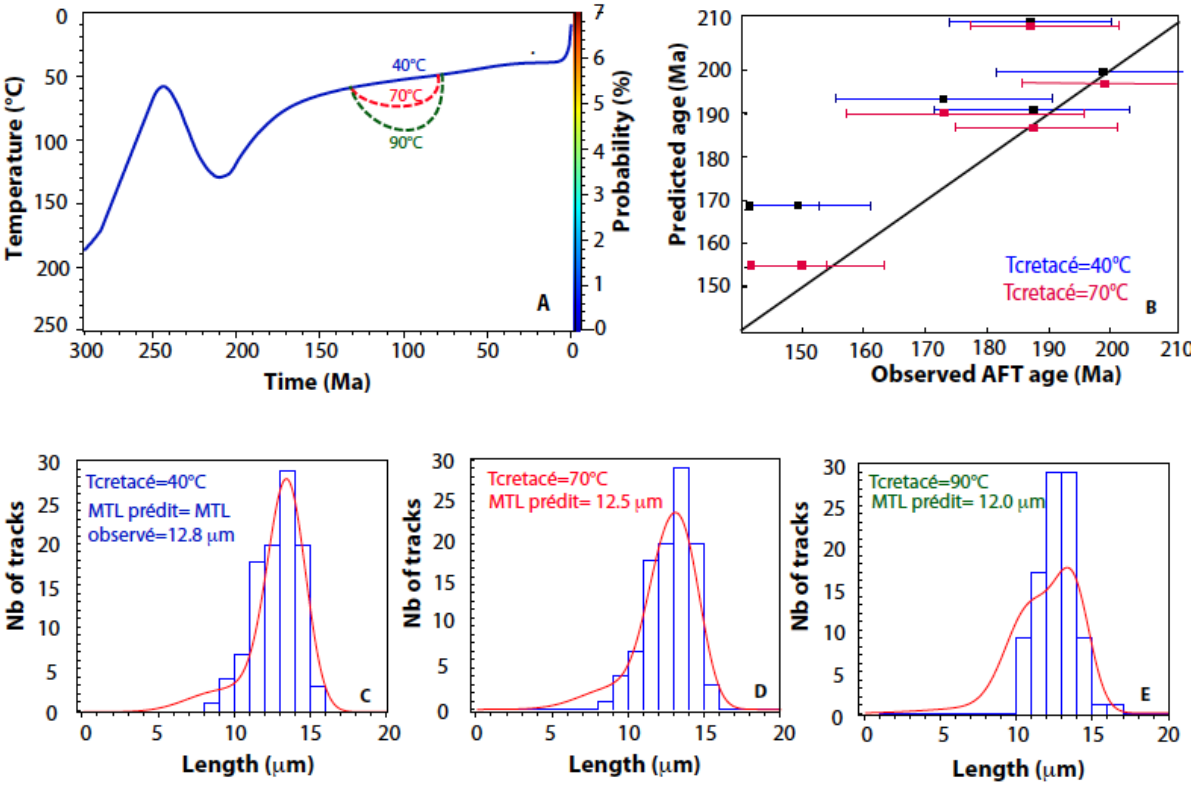


Figure III-10 : Simulations effectuées avec ou sans réchauffement Crétacé

Simulations directes effectuées sans réchauffement (Tcrétacé =40°C, bleu), avec un réchauffement de 70°C (rouge), ou avec un réchauffement de 90°C (vert) au Crétacé. Les histoires thermiques sont présentées en A ; les âges simulés en B (sauf le chemin vert car il ne reproduit pas du tout les observations); et les longueurs simulées en C,D, E. Les âges et les longueurs sont compatibles avec l'absence de réchauffement, ou un réchauffement de 70°C, mais pas avec celui de 90°C. Ainsi les données traces de fission ne permettent pas de discriminer la présence ou non d'un réchauffement ; mais excluent un réchauffement trop important.

Les données traces de fission sont compatibles à la fois avec un refroidissement constant au Crétacé, et avec un léger réchauffement (par exemple jusqu'à 70°C) au Crétacé. Néanmoins, les âges traces de fission les plus jeunes et la distribution des longueurs ne sont

pas compatibles avec un fort réchauffement (ex : jusqu'à 90°C) au Crétacé. Ainsi, l'histoire thermique qui est modélisée figure III-9A n'est pas l'unique histoire qui puisse satisfaire les données traces de fission. Ces données seules ne suffisent pas à discriminer l'existence ou non d'un léger réchauffement Crétacé.

5.2. Combinaison AFT et AHe

Les données AHe sont dispersées entre 80±8 et 291±29 Ma. Nous avons suggéré que la dispersion des âges AHe était directement reliée à la présence d'une ou plusieurs phases de réchauffement des échantillons dans la zone de retention partielle d'hélium dans l'apatite. En effet, comme illustré précédemment au chapitre 1 (figure I-16), les histoires de refroidissement monotone induisent des âges AHe peu dispersés (d=40 Ma). Mais dès lors que l'on complexifie l'histoire en introduisant une phase de réchauffement des échantillons, la dispersion des âges AHe augmente drastiquement en fonction de l'eU (d= 200 Ma, figure III-11).

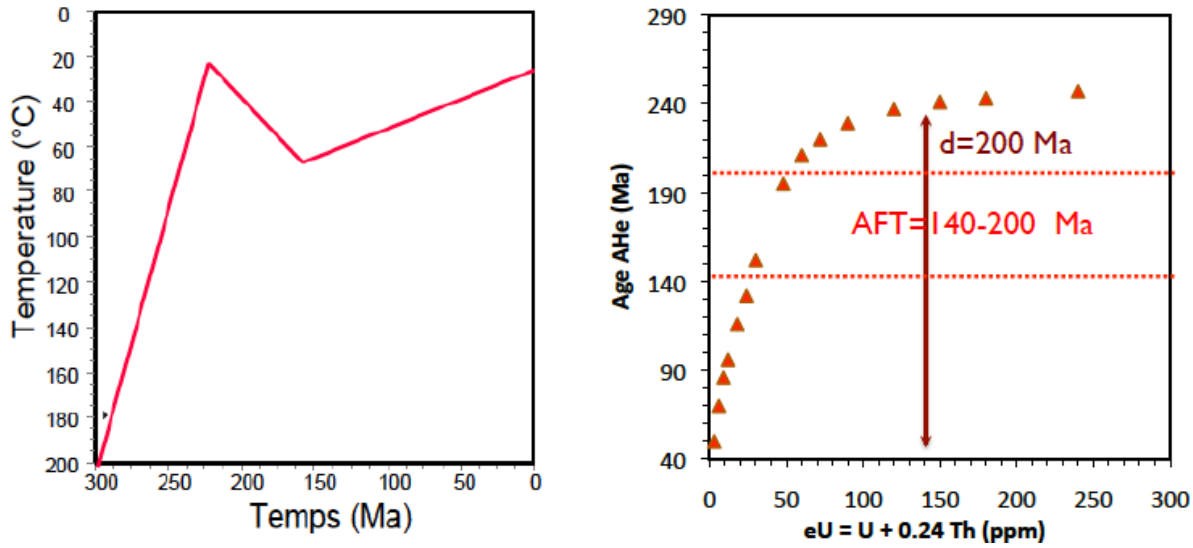


Figure III-11 : Simulations d'une histoire polyphasée

Cette simulation a été effectuée en mode direct avec le logiciel HeFTy (Ketcham, 2005). La phase de réchauffement induite au Jurassique provoque une dispersion des âges hélium d =200 Ma, et des âges hélium plus élevés que les âges AFT après un seuil de eU = 40-50 ppm.

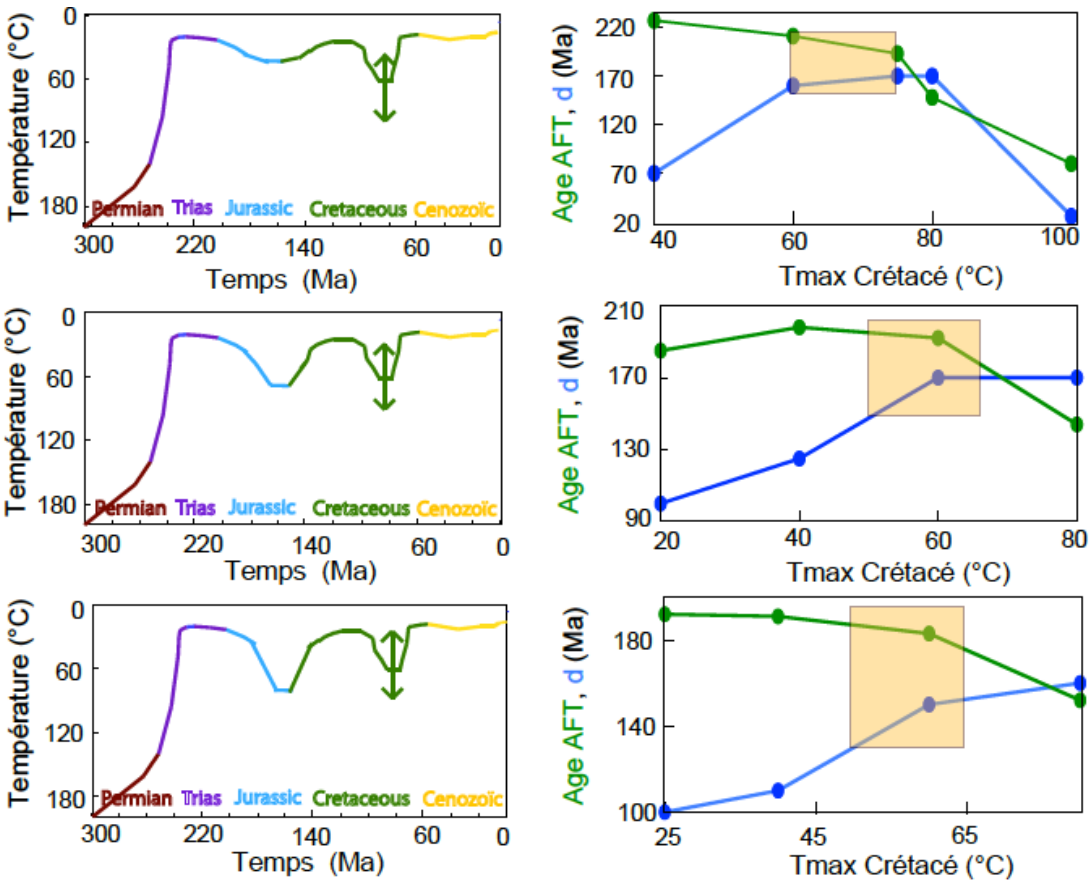


Figure III-12 : Quantification du réchauffement Crétacé

Ces simulations ont été réalisées grâce au logiciel HeFTy (Ketcham, 2005). Pour chaque histoire thermique, on a simulé l'âge AFT et la dispersion des âges AHe entre un eU faible et un eU élevé. Le paramètre d quantifie l'âge obtenu au niveau du plateau à fort eU moins l'âge obtenu à faible eU. C'est la dispersion d'âge obtenue pour une histoire thermique donnée. Ici, trois scénarios sont représentés : en haut celui d'un réchauffement au Jurassique minimal (40 °C), au centre moyen (60 °C), et en bas élevé (90 °C). Pour chacun de ces scénarios, j'ai effectué 4 ou 5 simulations numériques avec une valeur de la température du Crétacé croissante. A droite sont représentées les prédictions d'âge et de dispersion obtenues en fonction de cette température de réchauffement Crétacé. Les rectangles jaunes représentent la zone des données. Ainsi, pour reproduire les données, le réchauffement au Crétacé doit être d'environ 60±10°C, quel que soit le scénario au Jurassique.

Plus la phase de réchauffement introduite est importante, plus la dispersion des âges est élevée. On peut donc utiliser cette dispersion comme un outil pour determiner la profondeur des phases d'enfouissement. A notre connaissance, c'est la première fois que ce paramètre de dispersion est utilisé à cet effet. D'autre part, les phases d'enfouissement

diminuent l'âge AFT. Nous pouvons donc combiner l'âge AFT et la dispersion des âges AHe pour determiner l'ampleur des phases de réchauffement. C'est la méthodologie que nous avons appliquée au pluton de Ploumanac'h. Dans ce pluton, les âges AFT sont de 141±7 à 199±9 Ma, et la dispersion des âges AHe est élevée (~210 Ma). Comme expliqué précédemment, l'inversion des données AFT seules indique un réchauffement au Jurassique, mais pas nécessairement au Crétacé.

Nous avons effectué des simulations numériques de l'âge AFT et de la dispersion des âges AHe pour des histoires thermiques impliquant les deux phases d'enfouissement au Jurassique et au Crétacé supérieur. Ne connaissant pas de façon précise la profondeur de l'enfouissement au Jurassique, nous avons effectué trois simulations : (i) un faible réchauffement (40 °C), (ii) un réchauffement modéré (60 °C), et (iii) un réchauffement élevé (90 °C). Pour chaque cas, nous avons déterminé la dispersion et l'âge AFT pour différentes valeurs de la température d'enfouissement au Crétacé (de 40 à 100 °C). Les résultats sont présentés figure III-12.

Nous avons ainsi testé l'impact d'un réchauffement au Crétacé supérieur sur la dispersion et les âges AFT. Remarquez qu'il existe également dans le massif Armoricain une émersion au Crétacé inférieur, ayant donné des dépôts du faciès Wealdien dans le bassin de Paris. Néanmoins, ces dépôts sont d'une faible épaisseur (<100 m, J. Barbarand, communication personnelle) et la résolution de la thermochonométrie basse température ne permet pas de détecter cette phase de refroidissement ni de la distinguer de la phase Maastrichtienne.

La figure III-12 montre que plus le réchauffement Crétacé est important, plus les âges AFT diminuent et plus la dispersion des âges AHe augmente, comme prévu. Les cadres jaunes représentent le lieu de nos données (âges AFT de 140 à 200 Ma et dispersion des âges

AHe >140 Ma). Ce cadre jaune prouve que pour reproduire les données AHe et AFT, il est indispensable de réchauffer les échantillons au Crétacé supérieur jusqu'à environ 60±10 °C.

Sans réchauffement Crétacé, l'âge AFT serait plus élevé (voir figure III-10B), et la dispersion des âges AHe serait faible. Si au contraire, le réchauffement était très élevé, alors les âges AFT seraient plus jeunes car il y aurait une cicatrisation partielle des traces, et la distribution des longueurs serait bimodale (figure III-10E), ce qui n'est pas le cas ici. Les cadres jaunes permettent donc de contraindre la température du réchauffement au Crétacé : il est dans tous les cas d'environ 60 ±10 °C. Ainsi, si les données traces de fission sur apatite à elles seules ne permettent pas de déterminer précisément l'histoire thermique au Crétacé, et la combinaison avec les données AHe permet de détecter une phase de réchauffement au Crétacé. Si la température de surface était de 30 °C, alors il s'agit d'un réchauffement d'environ 30 °C, ce qui correspond à une épaisseur de 500 m à 1,5 km de sédiments si le gradient géothermique est de 20 à 60 °C/km. En supposant que la durée du dépôt est de 40 Ma (de 100 à 60 Ma), alors le taux de sédimentation aurait été au moins de 13 m/Ma.

Cette phase de sédimentation correspond à la présence de dépôts cénomaniens à campaniens sur le massif. L'épaisseur des produits d'altération crétacés sur le Massif Armoricain est relativement faible : 40-90 m de latérites (Estéoule-Choux, 1983), de sédiments altérés contenant des microfossiles crétacés silicifiés, de conglomérats, et de silcrètes (Brault, 2002 ; Bessin et al., 2014). L'hypothèse d'un dépôt crétacé sur le Trégor maintenant érodé est cohérente avec les travaux de Bessin et al. (2014), selon lesquels le Trégor a été enfoui au Crétacé. Ces dépôts calcaires auraient été altérés sans laisser de produits d'érosion notable, par dissolution. Néanmoins, Bessin et al. (2014) ne déterminent pas l'épaisseur de l'enfouissement. Il suggère que la profondeur d'enfouissement était « faible », en raison de la petite quantité de sédiments silicoclastiques accumulés dans les bassins adjacents par la dénudation. Dans le bassin de Paris, l'épaisseur des sédiments

détritiques crétacés est de 500 m, accumulés en 45 Ma (Guillocheau et al., 2000). L'épaisseur serait de 250 m en Normandie et 700 m en Champagne (Barbarand et al., 2013). Dans le Morvan, des données thermochronométriques de Barbarand et al. (2013) suggèrent un enfouissement sous 400 ± 300 m de craie au Crétacé. Nos données thermochronométriques dans le Trégor suggèrent un enfouissement légèrement supérieur à ces valeurs, mais du même ordre de grandeur : d'au moins 500 m déposés en 40 Ma.

6. Conclusion générale

Bien que la méthode AHe soit très utilisée actuellement et ait été mise en place il y a une vingtaine d'années, l'étude thermochronologique du pluton de Ploumanac'h a permis d'identifier un comportement de l'hélium dans l'apatite plus complexe que ce que l'on connaissait auparavant. Le facteur primordial qui contrôle la rétention d'hélium est l'endommagement des apatites par les particules alpha. Nous avons mis en évidence un seuil, en dessous (respectivement au-delà) duquel la rétention augmente (resp. diminue) avec la quantité de défauts. Nous proposons de mettre cela en relation avec le comportement de l'hélium dans le zircon, décrit par Guenthner et al. (2013) et Ketcham et al. (2013). La topologie des défauts peut jouter un rôle important dans le changement de la diffusivité, avec un regroupement des défauts sous le seuil, puis une percolation de ces défauts.

La présente étude suggère que la composition chimique en cations n'est pas corrélée aux âges AHe. D'autre part, remarquez qu'au sein du pluton de Ploumanac'h, la concentration en chlore des apatites est constante et proche de la limite de détection (0,01 wt%) tandis que les âges AHe varient largement (entre 150 et 300 Ma) y compris pour une même gamme de eU. Ainsi, la concentration en chlore ne semble pas jouer un rôle sur cette dispersion, puisque ce paramètre est constant. Remarquez également que l'échantillon PL10 est plus jeune en AHe et a plus de chlore. Cela va à l'encontre des modèles classiques de cicatrisation des

dommages, qui prévoient que comme pour les traces de fission les dommages cicatrisent moins vite pour les apatites les plus chlorées. Ces modèles n'étant pas créés pour des gammes de concentration de chlore aussi faibles que dans le Trégor, ils ne sont peut-être pas applicables ici.

Ni le modèle de Flowers et al. (2009), ni celui de Gautheron et al. (2009) n'arrivent à reproduire des âges AHe aussi vieux et aussi dispersés que ce que l'on a trouvé ici, ni à rendre cohérents les données AFT et les données AHe. Nos données montrent que ces modèles sous-estiment les âges AHe, et donc la rétention de l'hélium dans l'apatite. C'est sur cet aspect qu'il faut progresser. Nous avons utilisé un nouveau modèle : le modèle de Gerin et al. (2017). Ce modèle permet de faire varier la rétention en fonction de (i) la capacité de stockage de chaque défaut, quantifiée par une énergie ΔEa, et (ii) la vitesse de cicatrisation des défauts, caractérisée par un paramètre rmr_0'.

Nos simulations montrent que la dispersion des âges AHe peut être expliquée par une capacité de retention des dommages beaucoup plus élevée que prévue (ΔEa=40-80 kJ/mol) variant d'un cristal à l'autre. On peut l'expliquer, notamment si les dommages se regroupent de plus en plus lorsque leur nombre augmente : alors ΔEa augmente avec la dose de dommage accumulée.

Quant à la cinétique de cicatrisation, nous avons utilisé une loi similaire à la loi de Ketcham (2007), mais avec un nouveau paramètre rmro' indiquant la vitesse de cicatrisation des dommages alpha indépendemment de celle des traces de fission. Ce paramètre rmro' est théorique, et n'est pas calculé contrairement au paramètre rmr_o. Les simulations révèlent que les dommages d'irradiation alpha cicatrisent probablement plus doucement que les défauts des traces de fission, comme suggéré par Fox et Shuster et al. (2014). Nous proposons donc une nouvelle méthodologie pour simuler la cicatrisation des dommages : nous utilisons deux lois distinctes, l'une pour caractériser la cicatrisation des traces de fission (avec le paramètre

rmr_0 issu des valeurs du Dpar), l'autre concernant les dommages d'irradiation alpha (avec un paramètre rmr_0'). Cela sera une amélioration certaine de la méthode actuelle, car il n'y a pas de raisons objectives de décrire les dommages alpha de la même façon que les traces de fission.

Ce chapitre a également permis de préciser l'histoire thermique du pluton de Ploumanac'h. Nous excluons le scénario selon lequel le Massif Armoricain serait resté émergé depuis le Trias. Au contraire, nos données traces de fission démontrent qu'il y a bien eu un réchauffement des échantillons au Jurassique. La transgression marine évoquée par Guillocheau et al. (2003) est donc probable, même si quasiment aucun sédiment jurassique n'affleure actuellement au coeur du Massif. Nous proposons que cet enfouissement a été de large ampleur (au moins 1 km de sédiments, maintenant érodés).

Notre étude se base sur l'hypothèse que tous les échantillons, y compris la granodiorite du Trégor PL10, ont subi la même histoire thermique et que la dispersion des âges est donc liée à des variations de eU. En effet, l'échantillon PL10 a le même âge trace de fission que les échantillons du pluton de Ploumanac'h, et est situé à une faible distance de ce pluton au sein d'un même ensemble géologique. L'hypothèse d'une histoire thermique similaire est donc envisageable.

Par ailleurs, en combinant les données traces de fission et les données (U-Th-Sm)/He sur apatite, nous montrons également l'existence d'un réchauffement au Crétacé supérieur. Cela est en accord avec les dépôts du Cénomanien rapportés par Guillocheau et al. (2003), et avec l'interprétation de Bessin et al. (2014) selon lequel le Trégor a été enfoui sous des sédiments au Crétacé. Nous contraignons la température du réchauffement à environ 60 ± 10 °C, ce qui – en supposant un gradient géothermique de 20 à 40 °C/km implique une sédimentation d'une puissance d'environ 1 à 2 km. Cette valeur est comparable à l'épaisseur

de la craie dans l'Est du Bassin de Paris, et est plus élevée que les 400 m d'épaisseur proposés par Barbarand et al. (2013) dans le Morvan.

7. Bibliographie du chapitre

Adams C.J.D., 1967. K/Ar ages from the basement complex of the Channel Islands (United Kingdom) and the adjacent French mainland. Earth and Planetary Science Letters 2: 52-6.

Adams C.J.D., 1976. Geochronology of the Channel Islands and adjacent French Mainlands. J. Geol. Soc. London 132: 233-250.

Albarède F., Dupuis C., Taylor Jr H.P., 1980. $^{18}O/^{16}O$ evidence for non-cogenetic magmas associated in a 300 Ma old concentric pluton at Ploumanac'h (Brittany, France). J. Geol. Soc. 137: 641-647.

Andreieff P., Bouysse P., Horn R., Monciardini C., 1972. Contribution à l'étude géologique des Approches Occidentales de la Manche. Mém. BRGM.

Auvray, B., 1979. Genèse et évolution de la croûte continentale dans le Nord du massif Armoricain. PhD, Univ. de Rennes.

Auvray, B., Charlot, R., Vidal P., 1980. Nouvelles donnees sur le proterozoique inferieur du domaine nord Armoricain (France): âge et signification. Revue canadienne des Sciences de la Terre 17: 532-538.

Baize S., 1998. Tectonique, eustatisme, et climat dans un système géomorphologique côtier; le Nord-Ouest de la France au Pléistocène; exemple du Cotentin (Normandie). PhD Univ. Caen. BRGM 289, 393 pp.

Bauer, H., Saint-Marc P., Chateauneuf J.J., Bourdillon C., Guillocheau F., 2011. Paléoenvironnements et paléoclimats enregistrés dans le basin éo-oligocène de Rennes. Apports du forage CDB1 (projet CINERGY). 3ème congrès français de sédimentologie (Dijon, France). Publication de l'association des sédimentologistes français.

Ballèvre, M., Bosse, V., Ducassou, C., Pitra, P., 2009. Palaeozoic history of the Armorican Massif: models for the tectonic evolution of the suture zones. C.R. Geoscience 341: 174-201.

Ballèvre, M., Bosse, V., Dabard, M.P., Ducassou, C., Fourcade, S., Paquette, J.L., Peucat, J., Pitra, P., 2012. Histoire geologique du Massif Armoricain: actualite de la recherche. Bull. Soc. Geol. Mineral. Bretagne, 10-11: 5-96.

Ballouard, C., Boulvais, P., Poujol, M., Gapais, D., Yamato, P., Tartèse, R., Cuney, M., 2015a. Tectonic record, magmatic history and hydrothermal alteration in the Hercynian Guérande leucogranite, Armorican Massif, France. Lithos 220-223: 1-22.

Ballouard, C., Poujol, M., Jolivet, M., Boulvais, P., Tartese, R., Dubois, C., Hallot, E., Dabard, M.P., Ruffet, G., 2015b. Geochronological and thermochronological constraints on the Carboniferous magmatism from the Armorican Massif: from the source to the exhumation. Conference poster. Variscan 2015, Jun 2015, Rennes, France.

Ballouard, C., Poujol, M., Boulvais, P., Mercadier J., Tartese, R., Venneman T., Deloule E., Jolivet, M., Kéré I., Cathelineau M., Cuney M., 2017. Magmatic and hydrothermal behavior of uranium in syntectonic leucogranites: the uranium mineralization associated with the Hercynian Guérande granite (Armorican Massif, France). Ore Geology Reviews 80: 309-331.

Barbarand J., Quesnel F., Pagel M., 2013. Lower Paleogene denudation of Upper Cretaceous cover of the Morvan Massif and southeastern Paris Basin (France) revealed by AFT thermochronology and constrained by stratigraphy and paleosurfaces. Tectonophysics 608: 1310-1327.

Barrière, M., 1977. Le complexe de Ploumanac'h, Massif Armoricain. Essai sur la mise en place et l'évolution pétrologique d'une association plutonique subalcaline tardi-orogénique. PhD. Université de Brest.

Bernard-Griffiths J., Peucat J.J., Sheppard S., Vidal Ph., 1985. Petrogenesis of Hercynian leucogranites from the southern Armorican Massif: contribution of REE and isotopic (Sr, Nd, Pb, and O) geochemical data to the study of rock characteristics and age. Earth and Planetary Science Letters 74 (2-3): 235-250.

Bessin P., Guillocheau F., Robin C., Schrötter J.M., Bauer H., 2014. Planation surfaces of the Armorican Basin (Western France): Denudation chronology of a Mesozoic land surface twice exhumed in response to relative crustal movements between Iberia and Eurasia. Geomorphology 233:75-91.

Bonissent M., 1870. Essai géologique sur le département de la Manche. Extrait des Mémoires de la Société des Sciences Naturelles de Cherbourg et d'Avranches, Cherbourg, 427pp.

Bourcart J., Guilcher A., Tricart J., 1950. Découverte d'une grotte marine avec galets vers 135 m au Menes Lus en Telgruc (Finistère). C.R. Somm. Soc. Géol. Fr. 9-10: 158-160.

Bourquin S., Robin C., Guillocheau F., Gaulier J.M., 2002. Three-dimensional accommodation analysis of the Keuper of the Paris Basin: discrimination between tectonics, eustasy, and sediment supply in the stratigraphic record. Marine and Petroleum Geology 19: 469-498.

Brault N., 2002. Ressources du Sous-sol et environnement en Bretagne; genèse, géométrie, et propriétés des différents types d'aquifères. PhD Univ. Rennes 1, 240 pp.

Brabant P., 1965. Contribution à l'étude sédimentologique des formations sableuses aux environs de Ballots et de La Guerche (Msc Dissertation). Univ. de Rennes 1, 40pp.

Carron J.P., Le Guen de Kermeizhon M., Nachit H., 1994. Variscan granites from Brittany. In: Chantraine J., Rolet J., Santallier D.S., Piqué A., Keppie J.D. (eds). Pre-Mesozoic Geology in France and related areas : pp. 231-239.

Chantraine, J., Egal, E., Thieblemont, D., Le Goff, F., Guerrot, C., Ballevre, M., Guennoc, P., 2001. The cadomian active margin (North Armorican massif, France): a segment of the North Atlantic Panafrican belt. Tectonophysics 331: 1-18.

Crié L., 1878. Recherches sur la vegetation de l'Ouest de la France à l'époque Tertiaire. PhD Fac. Sc. Paris., 72 pp.

Dangeard L., 1928. Observations de géologie sous-marine et d'océanographie relative à la Manche. Ann. Inst. Océanog. (Nouv. Sér.) 6, 295 pp.

Deunff J., 1953. Présence de craie à Locquirec (Finistère). C.R. Somm. Soc. Géol. Fr. 5-6: 68-69.

Deunff J., 1985. Dépôts de roches étrangères en baie de Locquirec. In Penn ar bed 118 (31eme anne, fasc.. 3).

Doré F., Dupret L., LeGall J., Chalot-Prat F., 1977. Notice Explicative. Carte géologique de France (1:50 000). Feuille La Ferté-Macé 250. BRGM Orléans, France, 31pp.

Dugué O., Lautridou J.P., Quesnel F., Poupinet N., Clet M., Camuzard J.P., Coutard S., Bourdillon C., Freslon M., Auffret J.P., Laville E., Gain O., 2005. Le Cotentin du Mésozoique au Cénozoique. Bull. Inf. Géol. Bassin Paris 42: 6-68.

Dugué O., 2007a. Le massif armoricain dans l'évolution mésocénozoique et cénozoique du nord-ouest de l'Europe- contrôles tectoniques, eustatique, et climatique d'un basin intracratonique (Normandie, mer de la Manche, France). Mémoire d'HDR, Univ. Caen.

Dugué O., Auffret J.P., Poupinet N., 2007b. Cenozoic shelly sands in the Cotentin (Armorican Massif, Normandy, France): a record of Atlantic transgressions and intraplate Cenozoic deformation. Compt. Rendus Geosc. 339: 110-120.

Durand S., Estéoule-Choux J., Olivier-Pierre M.F., Rey R., 1973. Découverte d'Oligocène reposant sur du Cénomanien dans un quartier sud de la ville de Laval (Mayenne). C.R. Acad. Sci. Paris, Séri.D., 276: 701-703.

Estéoule-Choux J., 1970. Contribution à l'étude des argiles du Massif Armoricain : argiles des altérations et argiles des bassins sédimentaires tertiaires (Thèse de Doctorat d'Etat, Univ. de Rennes 1. Mémoires de la Société Géologique et Minéralogique de Bretagne 14, 319 pp.

Estéoule-Choux J., 1983. Altérations et silicifications au Tertiaire dans le Massif Armoricain. Géol. Fr. 2: 345-352.

Flowers, R., Ketcham, R.A., Shuster, D., Farley, K.A., 2009. Apatite (U-Th)/He thermochronology using a radiation damage accumulation and annealing model. Geochim. Cosmochim. Acta 73: 2347-2365.

Fox M., and Shuster D., 2014. The influence of burial heating on the (U-Th)/He system in apatite: Grand Canyon case study. Earth and Planetary Science Letters 397: 174-183.

Gallagher, K., 2012. Transdimensional inverse thermal history modelling for quantitative thermochronology. J. Geophys. Res. 117 (B02408): 16pp.

Gautheron, C., Tassan-got, L., Barbarand, J., Pagel, M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. Chem. Geol. 266: 166-179.

Gautier, M., 1970. Jacques Louail. Etude sédimentologique des sables et graviers de Jumelles (M. et – L.). Origine et mise en place des formations situées à la base du Crétacé en Maine-et – Loiaire. Compte-Rendu 67 (1): 434-438.

Gerin, C., Gautheron, C., Oliviero, E., Bachelet, C., Djimbi, M.D., Seydoux-Guillaume, A.M., Tassan-Got, L., Sarda, P., Roques, J., Garrido, F. Influence of vacancy damage on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scales. Geochim. Cosmochim. Acta. 197: 87-103.

Graviou, P., 1984. Petrogenese des magmas calco-alcalins: exemple des granitoïdes cadomiens de la region Tregorroise (Massif Armoricain). PhD, University of Rennes 1.

Guenthner W., Reiners P., Kethcam R.A., Nasdala L., Giester G., 2013. Helium diffusion in natural zircon : radiation damage, anisotropy, and the interprétation of zircon (U-Th)/He thermochronology. American Journal of Science 313 : 145-198.

Guillocheau, F., Robin C., Allemand P., Bourquin S., Brault N., Dromart G., Friedenberg R., Garcia J.P., Gaulier J.M., Gaumet F., Grosdoy B., Hanot F., Le Strat P., Mettraux M., Nalpas T., Prijac C., Rigoltet C., Serrano O., Grandjean G., 2000. Meso-Cenozoic geodynamic evolution of the Paris Basin : 3D stratigraphic constraints. Geodinamica Acta 13 (4) : 189-245.

Guillocheau, F., Brault, N., Thomas, E., Barbarand, J., Bonnet, S., Bourquin, S., Esteoule-Choux, J., Guennoc, P., Menier, D., Neraudeau, D., Proust, J.N., Wyns, R., 2003. Histoire geologique du Massif Armoricain depuis 140 Ma (Cretace-Actuel). Bulletin d'information des geologues du Bassin de Paris 40: 13-28.

Juignet P., and Louail J., 1987. La transgression du Crétacé moyen-supérieur sur la bordure du Massif Armoricain. In: J. Salomon (Eds), Transgressions et regressions au Crétacé (France et regions voisines). Mém. Géol. Univ. Dijon 11: 31-45.

Ketcham, R.A., 2005. Forward and inverse modelling of low-temperature thermochronolgy data. In: Reiners P.W and Ehlers T.A. (Ed.) Low temperature thermochronology: techniques, interpretations and applications. Reviews in mineralogy and geochemistry, 275-314.

Ketcham, R.A., Carter A., Donelick R.A.., Barbarand J., Hurford A.J., 2007 Improved modelling of fission-track annealing in apatite American Mineralogist 92: 799-810.

Ketcham, R.A., Guenthner W.R., Reiners P.W., 2013. Geometric analysis of radiation damage connectivity in zircon, and its implications for helium diffusion. American Mineralogist 98: 350-360.

Kuntz G., Ménillet F., Le Gall J., Rioult M., with inputs from Callier L., Pellerin J., , de la Quériere P., Vautrelle C., Verron G., 1989. Notice Explicative. Carte de France (1:50 000). Feuille Argentan (212). BRGM, Orléans, France, 99 pp.

Louail J., and Moreau P., 1979. La signification des depots crétacés vendéens dans la paléogéographie nord-aquitaine. 104eme Congrès National des Sociétés Savantes, Bordeaux, Sc. Fasc. III: 19-30.

Louail J., 1984. La transgression crétacée au Sud du Massif Armoricain. Cénomanien de l'Anjou et du Poitou, Ccrétacé supérieur de Vendée. Etude stratigraphique, sédimentologique et minéralogique. Thèse de Doctorat d'Etat, Univ. Rennes, Mém. Soc. Géol. Mineral. Bretagne 29, 333 pp.

Peucat, J.J., 1986. Behaviour of Rb-Sr whole rock and U-Pb zircon systems during partial melting as shown in migmatitic gneisses from St Malo Massif, NE Brittany, France. J. Geol. Soc 143: 875-885.

Poncet, J., 1961. Un témoin de Cénomanien dans la region de Lessay (Manche). C.R. somm. Soc. Géol. France: 121-122.

Pin, C., Peucat, J.J., 1986. Ages des episodes de metamorphisme paleozoïques dans le Massif central et le Massif armoricain. Bull. Soc. Geol. France 8: 461-469.

Piton, P., 1985. Etude géochimique et géochronologique de la croûte continentale protérozoïque (1.8 à 2.2.) au Nord du Massif Armoricain. DEA, Univ. Rennes, 51 pp.

Recanati A., Gautheron C., Barbarand J., Missenard Y., Pinna-Jamme R., Tassan-Got L., Carter A., Douville E., Bordier L., Pagel M., Gallagher K., 2017. Helium trapping in apatite damage: insights from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoid lithologies. Chemical Geology, 470, 116-131.

Ruffel A., 1995. Evolution and hydrocarbon prospectivity of the Brittany Basin (Western Approaches Trough), offshore north-west France. Marine and Petroleum Geology 12 (4): 387-407.

Vidal, P., 1976. L'évolution poly-orogénique du Massif Armoricain: apport de la geochronology et de la géochimie isotopique du strontium. PhD Univ. Rennes, 142 pp.

Vidal, P., Auvray, B., Charlot, R., Cogné, J., 1981. Precadomian relicts in the Armorican Massif: Their age and role in the evolution of the western and central European Cadomian-Hercynian belt. Precambrian Res. 14: 1-20.

Wyns R., Bitri A., Guillocheau F., 2002. Le fond du Graben de Rennes preserve-t-il un témoin de l'ancienne couverture mésozoique du Massif Armoricain détruite au Tertiaire? Réunion des Sciences de la Terre, Nantes, Résumés p. 231-232.

Ziegler, P.-A., 1987. Evolution of the Western Approaches trough. Tectonophysics, 137: 341-346.

Chapitre 4: Etude thermochronologique des massifs de l'Aar et des Aiguilles Rouges, Alpes Suisses

1. Introduction : choix du site d'étude

Afin de quantifier et déterminer les différents paramètres influençant la diffusion de l'He dans l'apatite et sur des échelles de temps géologiques, nous avons réalisé une première étude sur le Massif Armoricain où l'histoire thermique est relativement complexe et les apatites sont fortement endommagées (Recanati et al., 2017). La complexité vient du fait que ces apatites ont été exhumées à des températures basses il y a ≈250 Ma, et sont restées proches de la zone de rétention partielle en hélium pendant longtemps. Pour compléter notre étude, et comprendre le comportement diffusif de l'He dans des apatites moins endommagées, nous avons choisi de travailler sur un site géologique possédant une histoire thermique dont l'exhumation à des températures basses a eu lieu relativement récemment (il y a <12Ma).

Le choix du site d'étude s'est porté sur les Alpes, car cette chaîne de montagne a été très documentée à tous points de vue, grâce à de nombreuses études tectoniques, géodynamiques, et géophysiques (Coward et Dietrich, 1989 ; Von Blanckenburg et Davies, 1995 ; Davies et Von Blanckenburg 1995 ; Schmid et al., 1996, 2000). De plus, de nombreuses études ont été réalisées pour connaître la chronologie et la et vitesse d'exhumation des différents massifs par l'utilisation de la thermochronologie traces de fission et (U-Th)/He sur apatite et zircon (e.g. Grundmann et al., 1985 ; Seaward and Mancktelow, 1994 ; Fügenschuh and Schmid, 2003 ; Reinecker et al., 2008 ; Glotzbach et al. 2008, 2010 ; van der Beek, 2010 ; Beucher et al., 2012 ; Von Hagke et al., 2012, 2014).

Plus particulièrement, notre étude porte sur les Alpes Suisses, dont les reliefs les plus élevés sont ceux des massifs des Aiguilles Rouges et de l'Aar. Les travaux récents de Valla (2011) et Valla et al. (2011) ont montré que les âges (U-Th-Sm)/He sur apatite varient de 4 à 8 Ma dans les Aiguilles Rouges et de 1 à 5 Ma dans l'Aar. Les âges traces de fission sont du même ordre (entre 4 et 9 Ma). Ainsi, l'histoire géologique de ces massifs et sa structure tectonique sont relativement bien contraintes, avec un refroidissement à des températures inférieures à 40°C au tardi-Miocène ou pliocène.

Le massif de l'Aar et celui des Aiguilles Rouges sont donc intéressants d'un point de vue méthodologique car leur histoire thermique est déjà contrainte. D'autre part, les apatites n'ont pas le même contenu en uranium effectif eU dans les deux massifs (Valla et al., 2011, 2012). Ainsi, ces massifs permettent de rechercher le rôle potentiel des dommages sur la rétention d'hélium dans un cas où l'histoire thermique est connue.

Les âges (U-Th-Sm)/He sur apatite obtenus par Valla (2011) sont relativement dispersés (entre 1 et 8 Ma). Cette dispersion résulte de l'histoire thermique qui, selon Valla et al. (2016), implique un refroidissement monotone et un passage rapide dans la zone de rétention partielle d'hélium (HePRZ).

Au premier ordre, l'âge AHe évolue avec l'altitude : l'âge moyen prédit par les modèles de diffusion augmente avec l'altitude. En effet, lors d'un mouvement d'exhumation, les roches les plus élevées sont celles qui ont passé au-dessus de l'isotherme 40°C le plus précocement, et l'âge AHe est donc plus vieux que celui des roches moins élevées. Ceci engendre une dispersion des âges entre les différents échantillons, mais n'explique pas la dispersion entre plusieurs apatites d'une même roche. L'objectif de cette étude est de mieux comprendre la dispersion mise en évidence sur quelques cristaux par Valla et al. (2011), afin de pouvoir discuter de son origine et de ses causes.

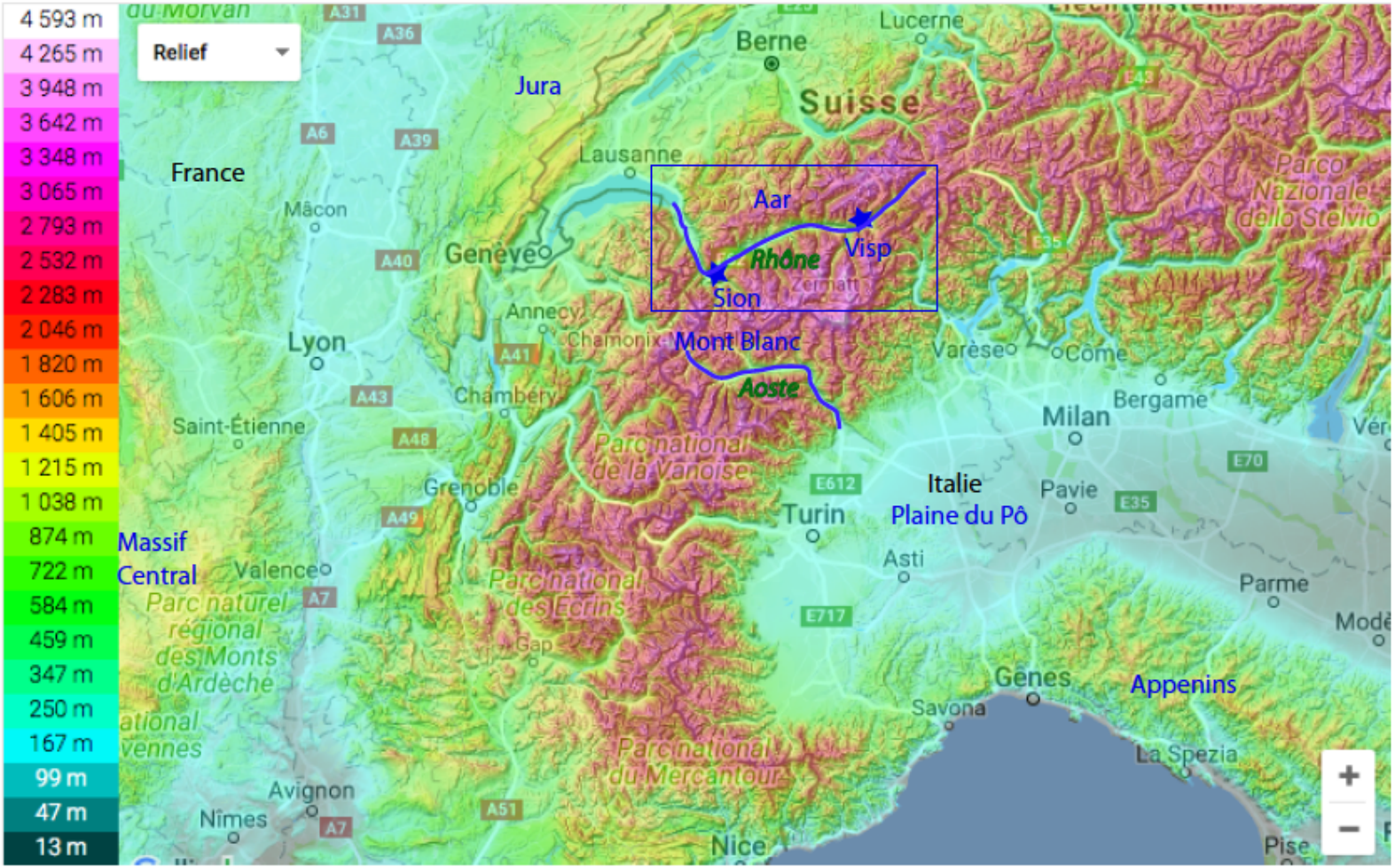


Figure IV-1 : Carte topographique des Alpes et localisation du massif de l'Aar

(d'après http://fr-fr.topographic-map.com/places/Alpes-7027052/)

La zone d'étude est encadrée, avec les villes de Sion et de Visp, et le massif de l'Aar délimité au Sud par la vallée du Rhône Suisse (en bleu). Les Alpes sont en forme d'arc autour de la plaine du Pô en Italie.

2. Evolution tectonique de la vallée du Rhône Suisse

L'évolution tectonique des massifs de l'Aar d'une part, et de ceux des Aiguilles rouges et du Mont Blanc d'autre part, est contrôlée par une zone de faille majeure, celle du Rhône-Simplon. Cette zone de faille comprend à l'Ouest la faille du Rhône, qui se prolonge à l'Est par la Faille de Simplon. La faille du Rhône est un décrochement dextre situé dans la vallée du Rhône, et est indiquée sur la carte tectonique figure IV-2 en pointillés rouges. Elle délimite au nord-ouest les Nappes Helvétiques externes (Nappe de Wildhorn, Morcies Dolderhorn, et Niesen, voir figure IV-2) et au sud-est la zone briançonnaise et le massif interne de la dent blanche. L'extrémité la plus à l'Est de la faille du Rhône, aux alentours de Visp, délimite le massif de l'Aar au nord et la zone Briançonnaise au sud.

La faille du Rhône se prolonge au Sud-Ouest par une zone de cisaillement entre le Mont Blanc et le massif des Aiguilles Rouges (Froitzheim et al., 2008), dans le prolongement du front pennique. Vers l'Est, la faille du Rhône est connectée à la faille de Simplon, qui a un pendage 25°SO, et un jeu normal, provoquant une surrection du mur et donc du massif de l'Aar. La chronologie de l'activité extensive de la faille de Simplon est contrainte par la thermochronologie basse température, à partir des données traces de fission sur apatite ou zircon, et des âges Ar/Ar, et K/Ar ou Rb/Sr mesurés de chaque côté de la faille (Grosjean et al., 2004). La datation trace de fission sur apatite et zircon et les méthodes géochronologiques (e.g. $^{40}Ar/^{39}Ar$ sur biotite et muscovite, Rb/Sr) suggèrent que la zone de faille du Simplon a été active depuis le Miocène inférieur (il y a 20 Ma, Mancktelow, 1992 ; Campani et al., 2010) jusqu'à au Pliocène au moins (il y a 3 Ma).

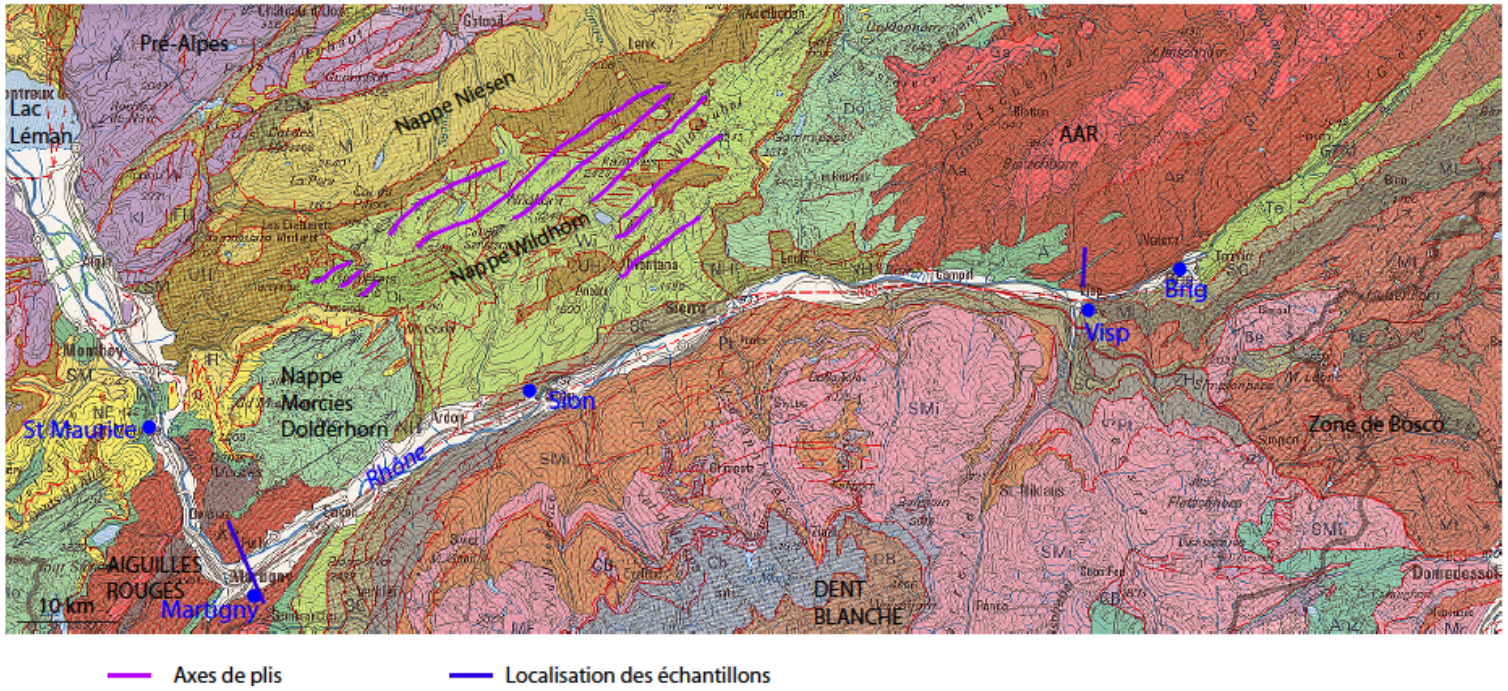


Figure IV-2 : Carte tectonique de la vallée du Rhône Suisse

Carte de la confédération Suisse, d'après : https://map.geo.admin.ch

Les traits bleus représentent les deux profils d'où proviennent nos échantillons (d'après Valla et al., 2011).

La surrection de l'Aar est donc liée à l'activité en faille normale de la faille de Simplon, et l'extrémité Ouest de l'Aar (du côté de Visp) est également très liée au décrochement dextre de la faille du Rhône. De même, l'évolution tectonique du Mont Blanc et des Aiguilles Rouges est en partie contrôlée par le décrochement dextre de la faille du Rhône.

3. Données thermochronométriques du massif de l'Aar

De nombreuses études thermochronométriques se sont focalisées sur les massifs externes (e.g. : Glotzbach et al., 2008), en particulier sur les massifs de l'Aar et du Gotthard (Rahn et al., 2005 ; Reinecker et al., 2008, Vernon et al., 2008, 2009 ; Glotzbach et al., 2010 ; Hagke et al., 2012) afin de quantifier les phénomènes d'érosion et de comprendre comment répond la topographie de la montagne à d'éventuels forçages climatiques ou tectoniques.

Les âges traces de fission sur apatite (AFT) vont de 1.7±0.2 à 14.2±2.4 Ma (Soom, 1990 ; Michalski et Soom, 1990 dans la région de Brig ; Glotzbach et al., 2010 dans le massif du Mont Blanc ; Rahn et al., 2005 ; Valla et al., 2016 dans l'Aar et les Aiguilles Rouges ; Reinecker et al., 2008 dans la région de Visp ; Vernon et al., 2009 à l'Est de Brig), tandis que les âges traces de fission mesurés sur zircons (ZFT) vont de 7.9±0.8 à 168±16 Ma (Michalski et Soom, 1990 ; Glotzbach et al., 2010). Les âges augmentent avec l'altitude selon une corrélation linéaire indiquée figure IV-3 (d'après les données de Rahn et al., 2005 et Valla et al., 2016).

Les auteurs déduisent de ces profils le taux de dénudation en km/Ma : il serait d'environ 0.5 km/Ma de 10 à 3,5 Ma, puis augmenterait surtout dans le sud – tout en restant inférieur à 1 km/Ma (Reinecker et al., 2008). Vernon et al. (2009) s'accordent avec ces données en proposant des taux d'exhumation de 0,2 à 0,7 km/Ma, mais datent l'accélération

de ces taux à 5 Ma, à l'exception de la zone de Simplon (3,5 Ma). Glotzbach et al. (2010) trouvent également des taux d'exhumation de 0,5 à 0,7 km/Ma, calculés à partir des données thermochronométriques (traces de fission sur apatite et zircon, et AHe).

Reinecker et al. (2008) et Glotzbach et al. (2010) ont reconstitué plus finement l'histoire thermique du massif en fonction de l'altitude à l'aide des âges AFT, ZFT, et AHe et de leurs modélisations. Les âges AFT datés par Glotzbach et al., (2010) dans le massif du Gotthard sont de 6,0±0,5 à 11,4±1,4 Ma, les âges ZFT vont de 13,6±1,1 à 21,0±1,4 Ma, et les âges AHe vont de 1,8±0.2 à 12,3 ±1,2 Ma. Ainsi, le massif aurait été exhumé à partir de 21 Ma, et se serait ainsi refroidi sous 150-200°C il y a environ 15 Ma et sous 110°C il y a 6-12 Ma, puis sous 40°C il y a 2-12 Ma. La figure IV-4 ci-après présente l'histoire thermique issue des analyses thermochronométriques (AFT, ZFT, Ar-Ar, AHe), d'après Challandes et al. (2008). Le massif aurait été réchauffé par l'enfouissement sous les nappes helvétiques jusqu'à 450°C il y a 21 Ma, puis refroidi.

Valla et al. (2011, 2012) utilisent également la thermochronométrie $^{4}He/^{3}He$ sur apatite pour déterminer la chronologie de l'incision glaciaire de la vallée. Deux profils âge/altitude ont été réalisés par ces derniers, l'un dans la ville de Martigny-Sion, et l'autre dans la ville de Visp (étoiles, figure IV-2). Le résultat est indiqué figure IV-6 : les données sont relativement dispersées et l'âge moyen augmente avec l'altitude.

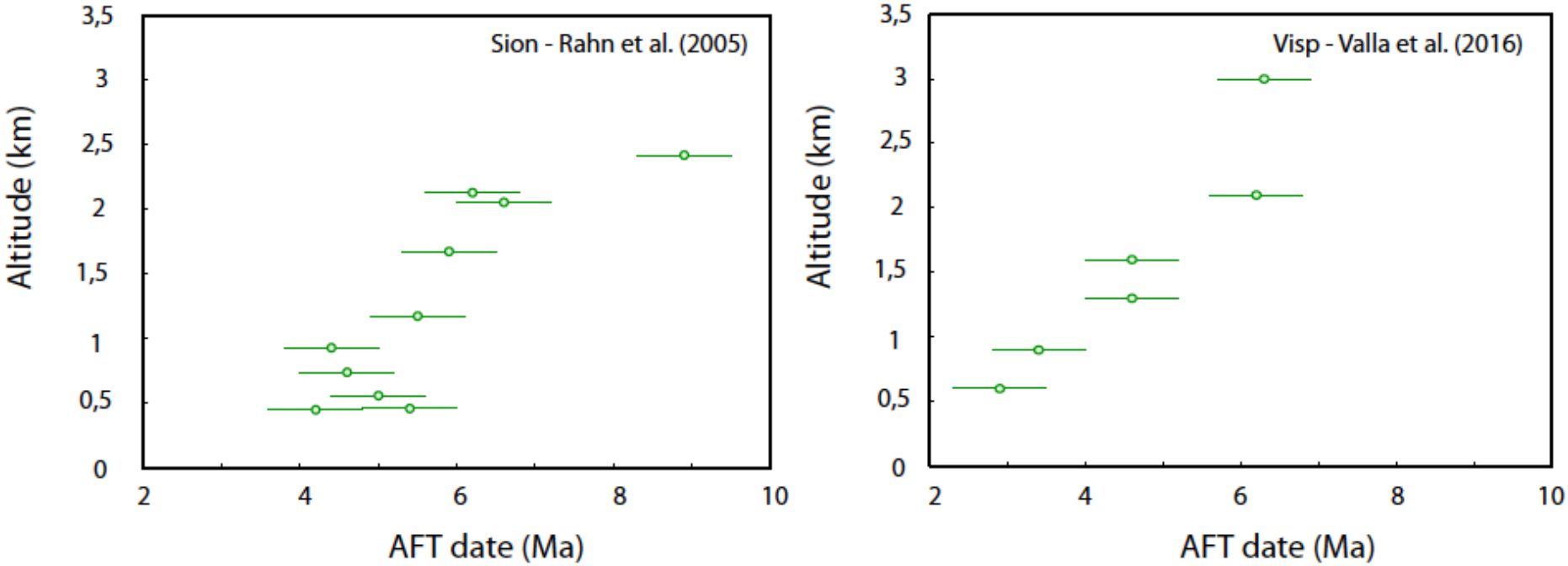


Figure IV-3 : Profils âges AFT/ altitude dans la vallée du Rhône

La pente indique un taux d'exhumation de 0.5 km/Ma. Une rupture de pente est observée au dessus de 2 km d'altitude pour le dernier échantillon à 2,5 km d'altitude dans le graphique de gauche.

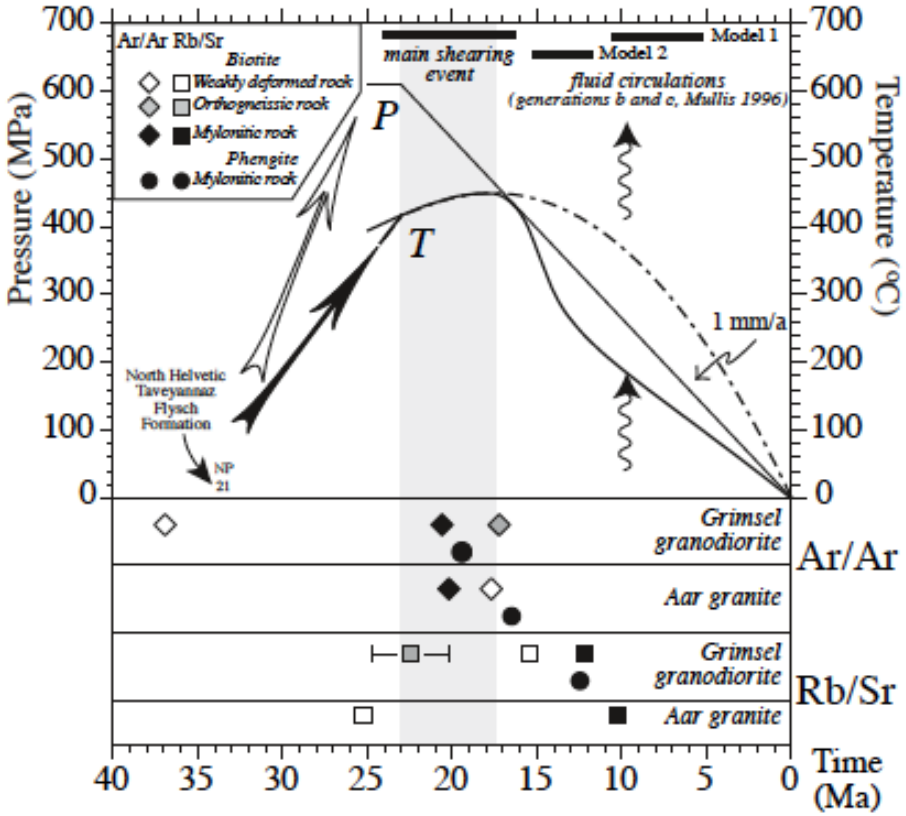


Figure IV-4 : Evolution thermobarométrique du massif de l'Aar selon Challandes et al. (2008).

Valla et al. (2011, 2012) suggèrent que les zones de hautes altitudes ont été préservées de l'érosion, et que la vallée a été incisée par l'érosion glaciaire. La profondeur de la vallée du Rhône a augmenté de 1 à 1,5 km depuis 1 Ma (Valla et al., 2011), alors que les échantillons situés au sommet du profil (> 2 km d'altitude) n'ont enregistré que des taux d'érosion modérés marqués par des taux de refroidissement plus lents (environ 10°C/Ma). Cela est marqué par une rupture de pente dans le graphique âge altitude (voir figure IV-3) : selon les données de Rahn et al. (2005), le dernier point à 2,5 km d'altitude rompt la pente établie par les points à plus faible altitude. Le mécanisme de préservation des zones de haute altitude est relié à l'incision glaciaire de la vallée (Valla et al., 2012).

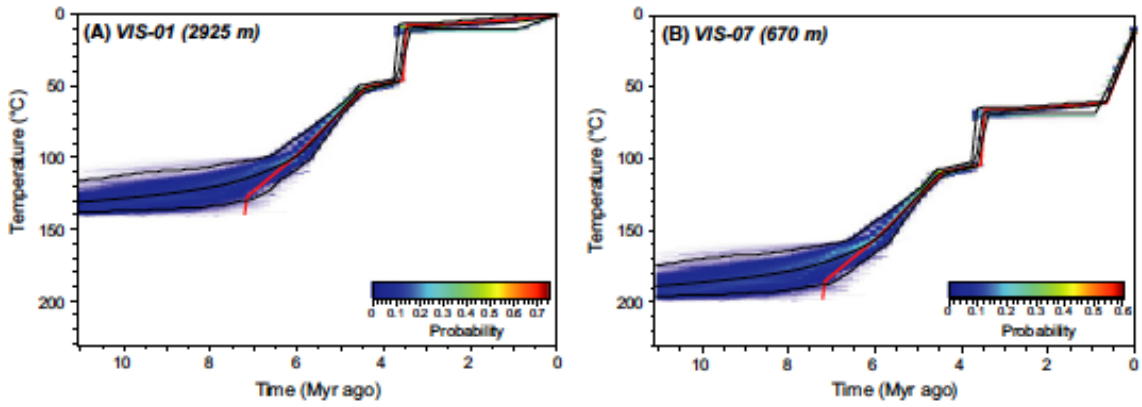


Figure IV-5 : Histoire thermique représentative de l'exhumation du massif de l'Aar (Valla et al., 2016)

L'histoire thermique est issue d'une simulation numérique des données par inversion avec le logiciel QTQt (Gallagher 2012), pour un échantillon se trouvant au sommet (VIS01) et un autre en fond de vallée (VIS07). Elle consiste en deux phases de refroidissement : un événement au début du Pliocène, puis une exhumation tardive à la fin du Pliocène (il y a ~3.5 Ma). Une dernière phase, liée aux glaciations pléistocènes, est enregistrée par l'échantillon en fond de vallée.

L'histoire de l'érosion a été reconstituée grâce à la thermochronométrie par Valla et al. (2011, 2012). Le long du profil de Sion a été observée une diminution des taux d'exhumation au Miocène, rapporté pour la majorité des massifs cristallins externes (Valla et al., 2012).

Récemment, Valla et al. (2016) ont effectué des nouvelles simulations numériques des données thermochronométriques (AHe et AFT) afin de déterminer la chronologie de l'exhumation de l'Aar. Le résultat de la simulation des échantillons VIS01, situé au sommet de l'Aar proche de Visp, et VIS07, situé en fond de vallée, est illustré figure IV-5.

L'histoire thermique de l'échantillon du sommet (VIS01, à 2925 m) inclut une phase de refroidissement rapide il y a ~6-4,5 Ma, lié à la phase d'exhumation à la fin du Miocène. Cette phase explique l'âge AFT de 6.4±0.4 Ma, car elle refroidit les échantillons sous 110-40°C à cette période. Le taux d'érosion serait d'environ 30°C/Ma, soit environ 1 km/Ma si le gradient thermique est de 30°C/km. Une deuxième phase de refroidissement a lieu il y a ~3,5-3 Ma. Cette phase correspond à une vitesse de refroidissement d'environ 60°C/Ma soit une exhumation de 2 km si le gradient géothermique est de 30°C/km. Cette augmentation des taux de dénudation au Pliocène peut être liée : (i) à un épisode tectonique, (ii) à un changement climatique, ou (iii) a un effet des glaciations pliocènes.

Les échantillons en fond de vallée ont également subi ces deux phases d'exhumation à ces périodes, mais de 170 à 110°C pendant la première phase, et jusqu'à 60°C pendant la deuxième phase (figure IV-5). Ainsi, l'âge AFT de l'échantillon VIS 07 (670 m) est plus jeune que ceux en altitude (3,0±0,2 Ma). La première phase d'exhumation à la fin du Miocène, est commune à tous les massifs cristallins externes. Elle est reliée soit à un changement climatique au Messinien (Willett et al., 2006), soit à un contrôle tectonique (Schmid, 1996, Schwartz et al., 2017). Enfin, la glaciation pléistocène a eu un impact significatif sur la croissance du relief alpin (Valla et al., 2012), d'après les données thermochronométriques. Les échantillons du fond de vallée ont enregistré l'épisode de glaciation pléistocène : leur histoire thermique présente un refroidissement rapide il y a ~1 Ma (voir figure IV-5, VIS07).

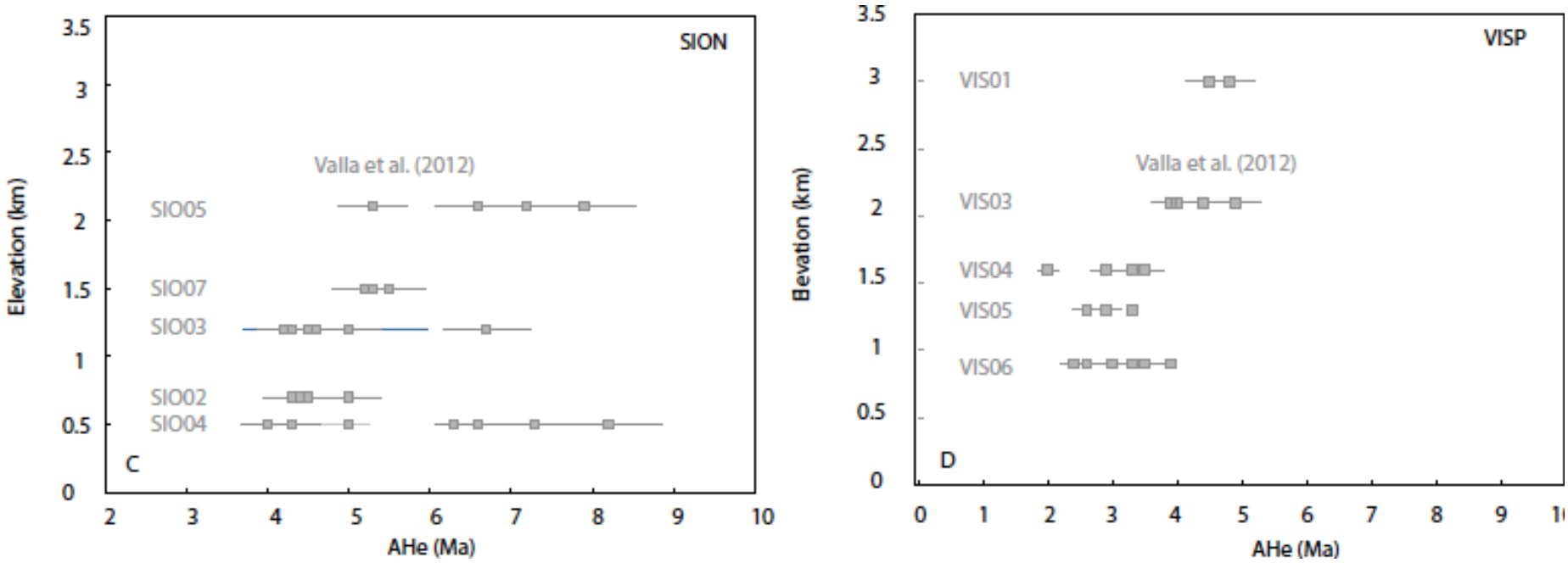


Figure IV-6 : Profils âge AHe vs altitude et dispersion des données

(d'après Valla, 2011)

Les âges AHe obtenus par Valla et al. (2011) sont intéressants car ils sont relativement dispersés. Néanmoins, il n'y a pas assez de données pour discuter de l'origine de cette dispersion. Ainsi, une étude spécifique de l'origine de la dispersion des données pour une même altitude est nécessaire.

4.Apatite (U-Th-Sm)/He thermochronometry in the Aiguilles Rouges and Aar massifs (Switzerland): how to interpret data dispersion?

Auteurs:

Alice Recanati[1]*, Cécile Gautheron[1], Pierre G. Valla[2], Yves Missenard[1], Peter A. Van der Beek [3], Rosella Pinna-Jamme[1], Frédéric Haurine[1]

(1) GEOPS, Univ Paris Sud, CNRS, Université Paris-Saclay, Rue du Belvédère, Bât. 504, Orsay, F-91405, France

(2) Institute of Geological Sciences, Univ. Bern, Baltzerstrasse, 3012 Bern, Switzerland.

(3) Institut des Sciences de la Terre, Univ. Grenoble, CS 40700, 38058 Grenoble cedex 1

* corresponding author

Tables

Figures

In preparation for:

Keywords: European Alps, Apatite, Thermochronology (U-Th-Sm)/He, glacial erosion

Résumé :

L'étude présentée ici s'intéresse à la dispersion naturelle des âges (U-Th-Sm)/He dans un contexte où l'exhumation des roches était rapide et jeune : les massifs Suisses externes. Nous avons montré une variation des âges AHe entre 1,3±0,1 et 9,3±0,7 Ma (à l'exception de cinq grains), dispersion qui ne peut être reproduite par les modèles actuels qui suggèrent une dispersion des âges entre 2 et 3 Ma. Notre étude montre que la dispersion est inversement corrélée à l'altitude des roches, mais n'est pas liée à la composition chimique de l'apatite ou au contenu en eU. Les grains d'apatite traités ont donc une grande capacité de retention d'hélium, comme observé dans les regions exhumées plus lentement. Des simulations effetuées avec le modèle de Gerin et al. (2017) montrent que cette rétention élevée peut être expliquée par une énergie de stockage relativement importante. Alternativement, il est possible que les défauts soient retenus à des temperatures plus élevées que suggéré en théorie. L'hélium serait ainsi retenu plus tôt dans l'histoire thermique. Si cela est vérifié, l'HePRZ pourrait commencer à des temperatures plus élevées (de l'ordre de 150°C) que prédit par les modèles de diffusion actuels..

Abstract:

The present study investigates the natural dispersion of (U-Th-Sm)/He data (AHe) in a context where rock exhumation was rapid and young: the Swiss external crystalline massifs. We evidence a scattering in AHe ages between 1.3±0.1 to 8.3±0.7 Ma (except five outliers), which is not predicted by the current models and question the origin of such dispersion. Our study shows that the dispersion is inversely correlated to rock altitude, but not with the apatite chemical composition nor the eU content. The current models involve a 2-3 Ma dispersion in AHe ages. Though, they underpredict helium retention by several Ma. These apatite grains thus have a high helium retention, as observed in slowly-exhumed regions. Simulations with the Gerin et al. (2017) model show that this high retention can be explained by a high trapping energy. Alternatively, if lattice defects can be recorded at higher temperatures than previously suggested, we can envision that helium is retained earlier in the thermal history. If this is verified, the HePRZ might begin at higher temperatures (e.g. 150°C) than predicted by current diffusion models, which has strong implications in thermochronometry.

1. Introduction

(U-Th-Sm)/He is a low temperature thermochronometer (Farley et al., 2002), widely used in order to determine the neogene exhumation history of mountain belts such as the Alps (ex: Vernon et al., 2008; Valla et al., 2011, 2012; Fox et al., 2016). The theory is based on the production of helium particles after radioactive decay of U and Th, and its retention within apatites at low temperatures. At high temperatures, helium diffuses out of the apatite crystals. The interval below which helium diffuses out of apatite crystals, and above which helium is retained in crystals is called the helium partial retention zone (HePRZ). In apatite it is between ~40 and 120°C (Stockli et al., 2000; Shuster et al., 2006; Flowers et al, 2009).

The duration of the residence of a rock within the HePRZ does influence a lot the AHe ages. For instance, the French Massif Central (Gautheron et al., 2009) and Massif Armoricain (Recanati et al., 2017) exhumed 300-250 Ma ago and were buried within the HePRZ for a long period since the Jurassic. AHe ages in such context is widely dispersed (e.g. 200 Ma dispersion in the Armorican Massif), and this scattering is created during the burial phases into the HePRZ.

The present study aims at investigating the origins of AHe age dispersion in a more simple geological history: that of an active mountain belt, which has exhumed recently below the HePRZ (end of the Miocene), and without subsequent burial. In such context, we expect AHe ages to be significantly younger than in slowly-exhumed regions, also with lower damage accumulation and thus smaller alpha doses to be expected.

To this aim, we selected the western European Alps as study site. Indeed, the thermal history is relatively well constrained. The external crystalline massifs in western Alps were were exhumed since the Oligo-Miocene (Coward and Dietrich, 1989). Valla et al. (2011) already dated samples from the Swiss Rhône Valley, within the Aar and the Aiguille Rouge massifs. The results evidenced young AHe ages, but which are quite dispersed between

1.1±0.1 and 8.2±0.8 Ma. Contrary to slowly-exhumed settings, the thermal history can not explain such dispersion in AHe ages. Our work studies the AHe age dispersion within the Rhône Valley on the same samples than reported in Valla et al. (2011), in order to confirm these preliminary observations made on few crystals for each sample. The purpose of this approach is to discuss the origins of such dispersion in AHe ages in a setting where the thermal history is relatively simple with rapid and young cooling.

As in Recanati et al. (2017), we will analyse the chemical composition of apatites and their eU content, and estimate the alpha dose that accumulated within crystals. Therefore, we will be able to determine which parameters influence the AHe age dispersion and the helium retention. In French Brittany, a positive correlation between AHe age and eU was found. In the Swiss Alps, it is interesting to note that the Aiguille Rouge massif apatites have higher eU content than apatites from the Aar massif (Valla et al., 2011). Therefore, we expect to determine the role of eU and damage in He retention. However, as the cooling was rapid, we do not expect to find the same AHe versus eU correlation than in French Brittany.

As the exhumation is more recent and rapid in the Alps than in Brittany or in the Massif Central, we expect AHe ages to be younger than in such contexts. Additionally, as the residence time in the HePRZ is short in the Alps, in the absence of burial phases, we expect less dispersion in AHe ages than in slowly-exhumed terranes. Additionally, in young samples, damage have not enough time to anneal. That's why, the role of chemistry on AHe ages likely will be less prominent in the Alps than in French Brittany or Massif Central. The purpose of our study is therefore to determine within the Swiss Alps which parameters control He retention and diffusion in apatites. The approach will be similar to that of Recanati et al. (2017), but in a very different geological case. To this aim, we analyze a series of 7-10 crystals per sample, and try to decipher whether AHe ages vary or not, and why. Our study

thus will improve our knowkedge of the (U-Th-Sm)/He thermochronometer and its applications in active mountain belts.

2. Geological setting and thermal history

The external crystalline massifs (ECM) are the backbone of the Alp topography (Schwartz et al., 2017). These massifs culminate at 4810 m (Mont Blanc), and are composed of deformed basement of the European Hercynian basement. They outcrop within a convex arc including from South West to North East the Argentera, Pelvoux, Belledone, Mont Blanc, Aiguilles Rouges, and Aar massifs (Figure IV-7) exhumed in the favor of thick-skinned tectonics from 8-15 km depth (Glotzbach et al., 2008). The Aar massif lies in South Eastern Switzerland, and culminates in the Finsteraarhorn at 4274 m. The Aiguilles Rouges massif is adjacent to the Mont Blanc Massif, and its highest summit is the Aiguille du Belvédère at 2965 m. Both massifs are separated by the Rhône Valley in Switzerland, oriented SW-NE.

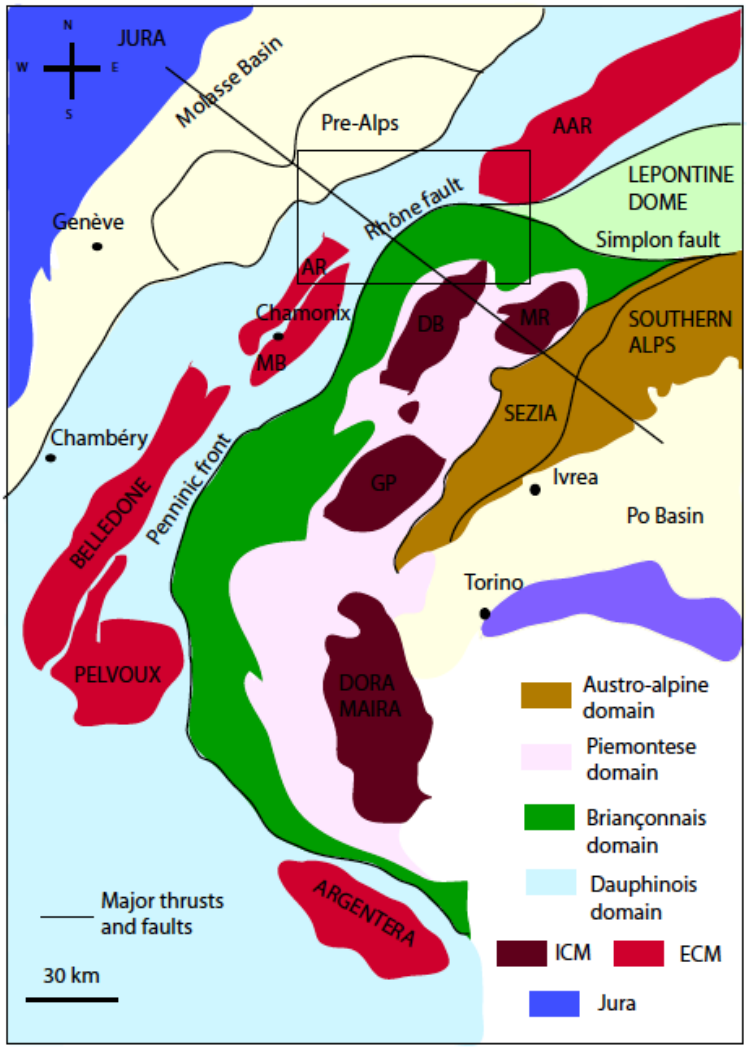


Figure IV-7 : Geological setting of the Aar and Aiguilles Rouges Massifs

The ECM underwent a similar polymetamorphic history. They are formed of a variscan basement, which have recorded three stages of deformation and metamorphism: the pan-african stage 680-480 Ma ago; the Caledonian stage 456-445 Ma ago, and the Hercynian stage ≈330 Ma ago (zircon U-Pb ages, Rubatto et al., 2001 in Argentera; Schaltegger 1993 in the Aar massif). Thereafter, meso- or late-hercynian granitoids intruded the basement in several magmatic pulses: 350 Ma ago (Southern Aar granite), 308-310 Ma, and 298-293 Ma ago (Schaltegger and Corfu, 1992; Rubatto et al., 2001). The most recent intrusions are the Mont-Blanc granite (304 Ma, Von Raumer et al., 2009) and the Gastern granite (at the western end of the Aar massif, dated at 303±4 Ma by U-Pb zircon by Schaltegger, 1993).

Several geochronological and thermochronometric studies were already performed on these meso- or late hercynian granites, such as in the Mont Blanc (Glotzbach et al., 2008), in the Ecrins-Pelvoux massif (Van der Beek et al., 2010, Beucher et al., 2012), or in the Aar and Gotthaard massifs (Michalski and Soom, 1990; Reinecker et al., 2008, Vernon et al., 2008; Glotzbach et al., 2010; Von Hagke et al., 2012). The current study focuses on two sites: the Aar and the Aiguille rouges massifs, delimited by the Rhône valley. Previous $^{40}Ar/^{39}Ar$ datation of the Helvetic nappes found above and between both massifs recorded ages on white micas between 32 and 13 Ma (Kirschner et al., 1996). These ages are interpreted as the age of the emplacement of the Aar and Aiguilles Rouges massifs below the Helvetic nappes. The emplacement of thrust sheets reheated the ECM. Biotite Ar-Ar ages in the Aar are 21 Ma, and phengite ages is 14-12 Ma (Rolland et al., 2009), which is interpreted as two ductile deformation stages. Within the Aiguilles Rouges Massif, the youngest shear zones are dates to 14-18 Ma (Boutoux et al., 2016).

Challandes et al. (2008) modeled the P-T-t paths within the Aar massifs by several independent ways (tectonostratigraphic and metamorphic reconstructions; or $^{40}Ar/^{39}Ar$ datation). They evidenced that the last ductile deformation episodes took place 21-17 ma ago, due to the last nappe emplacement stage, and reheated the Aar massifs to peak temperatures and pressures of of the Aar and Aiguilles Rou-18 Ma age was also obtained by Rolland et al. (2008) in the Mont Blanc, and interpreted as the age of the deformation and truncation of the Helvetic nappes due to the dextral Rhône fault. More recently, Boutoux et al. (2016) performed RSCM thermometry and showed that the Aiguilles Rouges reached maximum temperatures of 320°C (and 350°C in the Mont Blanc), and that this peak temperature lasted 5-10 Ma. As Challandes et al. (2009), they suggest that exhumation and cooling of the Aiguilles Rouge and Mont Blanc Massifs took place at around 18±1 Ma (following ZHe data).

After this nappe emplacement began the cooling and exhumation of the Aar and Aiguilles Rouges massif, due to tectonic uplift and erosion (Challandes et al., 2009). Available apatite and zircon fission track ages enable to constrain the cooling history and timing. Glotzbach et al. (2010) dated the Aar and Gotthard massifs and the Lepontine dome. They found ZFT ages mostly ranging between 13.5±0.6 and 18.9±1.3; and Michalski and Soom between 7.9±0.8 and 19.2±1.7 Ma. These ages date the cooling below the ZFT closure temperature (hese ages following Bernet et al., 2002; or 220-300 °C following Rahn et al., 1994). Glotzbach et al. (2010) interpreted their dataset by an accelerated exhumation 16-14 Ma ago due to thrusting at 0.7 km/Ma, followed by a slightly slower exhumation at 0.5 km/Ma since 14 Ma. In the Aiguilles Rouges Massif, one ZFT age is 17Ma (Soom et al., 1990) while other are much older and non reset (>100 Ma following Rahn 1994, see Valla et al., 2012).

The closure temperature of the ZHe system is smaller (140-195°C, Reiners et al., 2002), as well as that of the AFT system (95-160°C, Gallagher et al., 1998) and the AHe system (HePRZ at 40-120°C). Therefore, the combination of all of these thermochronometers enable to well constrain the cooling chronology of the massifs. ZHe dates in the Aiguilles Rouges massif lies between 4 and 8 Ma (Boutoux et al., 2016). Available AFT data in the Aar massif ranges between 3.8±0.4 and 14.2±2.4 Ma (Michalski and Soom, 1990, and other references in Glozbach et al., 2010), and in the Aiguilles Rouges it range between 3 and 9 Ma (Rahn, 1994; Seward and Mancktelow, 1994). These ages are similar to most AHe ages of 2.3±0.2 to 13.3±1.1 Ma in the Aar massif (Reinecker et al., 2008, Vernon et al., 2009) and 4 to 7 Ma in the Aiguilles Rouges massif (Boutoux et al., 2016). The AFT ages are similar in all of the alpine crystalline external massifs (Bogdanoff et al., 2000 in the Argentera; Van der Beek et al., 2010 and Beucher et al., 2012 in Pelvoux; Glotzbach et al., 2008 in the Mont

Blanc). They date the exhumation of these massifs below ~110°C by a major exhumation phase.

Valla et al. (2016) performed inverse modeling of the AFT and AHe dataset in the Aar mountains, suggesting that this cooling phase took place during the late Miocene ~6 – 4,5 Ma ago. The age/elevation profiles are used to quantify the denudation rate (0.5 km/Ma following Reinecker et al., 2008 and Glotzbach et al., 2010). This exhumation phase may be due either to the normal activity of the Simplon fault, or to an increase in erosion from a climatic-driven origin (Cederbom et al., 2004, 2011). Additionally, the samples from the bottom of the Rhône valley recorded an acceleration of the denudation rates 1 Ma ago due to the onset of the Pleistocene glaciations (Valla et al., 2012, 2016). Such increase in exhumation rates in the valley compared to mountain peaks was previously noticed in the Mont Blanc massif by Glotzbach et al., (2011).

3. Samples

The samples we use here were collected within the Rhône valley in the Aiguilles Rouges (Martigny-Sion profile SIO) and in the Aar (Visp profile VIS) massifs. They are post-hercynian granites that intruded ≈he Ma ago, were buried beneath the Helvetic nappes, which then have been eroded. The samples already have been analyzed for fission tracks by Rahn (1994) for the SIO profile and by Valla et al. (2016) for the VIS profile. Results are represented in the age/elevation profiles in Figure IV-8. AFT ages range between 3±0.2 and 6.4±0.4 Ma in the VIS profile, and from 4.2±0.3 Ma to 8.9±0.4 Ma in the SIO profile. A linear correlation is visible in both profiles (correlation coefficient: 0.7 in SIO and 0.9 in Visp), which enables deriving an exhumation rate of 0.5 km/Ma in SIO and 0.6 km/Ma in Visp).

(U-Th-Sm)/He dating were also performed on these samples by Valla (2011), and is represented in Figures IV-8. The AHe ages range from 4-9 Ma in the SIO profile and from 2-

5 Ma in the VIS profile. Additionally, they found linear correlation between the mean AHe age and elevation. The denudation rate is concordant with those found with fission tracks: ~0.6 km/Ma in SIO and 0.9 km/Ma in Visp.

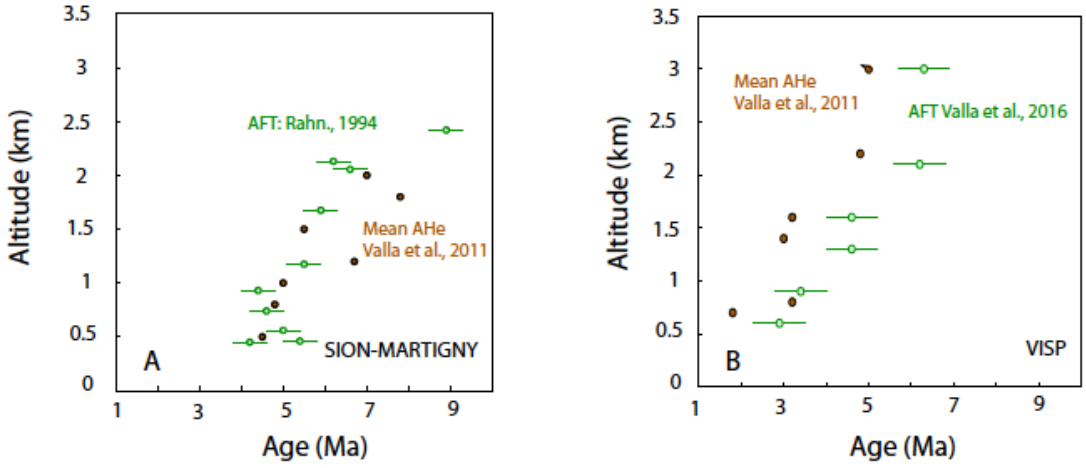


FIGURE IV-8: Age/elevation profiles

The AFT data (green dots) are from Rahn (1994) and Valla et al. (2016). The age/elevation profiles suggest a 0.5 km/Ma denudation rate. After 6Ma, a slope rupture is observable, linked to a slower denudation rate. The brown dots are the mean AHe dates from Valla et al. (2011). Note that the samples used for AFT analysis are different

For the Visp profile, Valla et al. (2016) recently proposed a multi-stage thermal history, including : (i) a Late Miocene tectonic exhumation stage, (ii) a Pliocene climatic pulse, and (iii) Quaternary cooling due to glacial carving. Our study will consider that the thermal history of the Rhône Valley is already well constrained by the work of Valla et al. (2011, 2012, 2016), and we will use the published fission track data to complement our (U-Th-Sm)/He study (Figure IV-9).

4. Methods

Apatite crystals were selected within powders from the samples collected by Valla et al. (2011, 2012): we used six samples from VIS profile and six samples from SIO profile. Sample location is indicated in Supplementary informaiton. For each of the samples, we selected 4-8 apatite grains for (U-Th-Sm)/He and elementary analyzes. All experiments were performed at the Geosciences Paris Sud Laboratory (GEOPS, University Paris XI, France).

^{4}He concentration was quantified using a quadrupole mass spectrometer. For each measurement, a ^{3}He spike is added for isotopic dilution. Calibration is performed using external standards of Durango, which AHe age is controlled (McDowell et al., 2005; Kraml et al., 2006). Blanks were also analyzed in order to check the line cleanliness. Apatite crystals were then dissolved in nitric acid, and spiked with ^{235}U, ^{230}Th, and ^{149}Sm. ^{238}U, ^{232}Th, and ^{147}Sm contents were measured by isotopic dilution, using an ELEMENT XR at GEOPS laboratory. The total analytical error on the AHe age is 8%.

After U, Th, and Sm measurement, major, trace, and REE elements were analyzed using ICP MS. The method is similar to what was performed in Recanati et al. (2017), except for few cations because we used another instrument. Calibration was performed with monoelementary solutions of Ca, P, and two multielementary solutions of major, and REE. In order to check the cleanliness of nitric acid and spikes, blanks (acid or acid + spike) were analyzed, and ultrapure acid was used for every dilution (see Recanati et al., 2017 for protocol details). External standards of NIST 1640a and BCR1 were used respectively for major and REE calibration. Additionally, Durango crystals were analyzed for double standardization and Ca calibration. No microprobe analyses were carried out, so the anion concentration was not analyzed.

5. Results

5.1. AHe data

AHe ages range from 2±0.2 to 16±2 Ma. Yet, five apatite crystals are characterized by (i) extreme values of Th/U or Sm/U compared to all other grains from the same sample and (ii) AHe ages that are significantly higher than all other ages found in the same sample (Tables SI1 and SI2 in the supplementary information). These grains might bear microinclusions of thorite or uraninite undetected by our binocular observations. Therefore, we excluded them from the rest of the description. Additionally, in sample SIO05, two crystals appear significantly younger than other grains. Those crystals have minimal values of Sm/U. There might have been an analytical problem in the degassing. Therefore, we exclude these from the rest of the description. In Figure IV-9, we did not represent those anomalous grains.

After exclusion of these anomalous grains, AHe ages range from 1.3±0.1 to 8.3±0.7 Ma and mean AHe ages vary between 3.2±1.3 and 7.5±0.7 Ma. AHe vs elevation profiles are presented in Figure IV-9. It can be observed that the mean AHe ages globally increase with elevation. For instance, the highest sample (SIO05 and VIS01) have the oldest mean AHe age of 6.9±0.5 Ma and 5.2±0.4 Ma while the lowest samples (SIO04 and VIS06) have the youngest AHe ages of 5.0 ±0.4 and 3.2±0.3 Ma. There is a linear relationship between rock elevation and mean AHe age (correlation coefficient of 0.9 in SIO and 0.5 in Visp). The apparent exhumation rate can be deduced from the slope of 0.7 km/Ma. This is close to the previous data from Valla et al. (2011, 2012), who determined a slope of 0.6 km/Ma in SIO and 0.9 km/Ma in VIS.

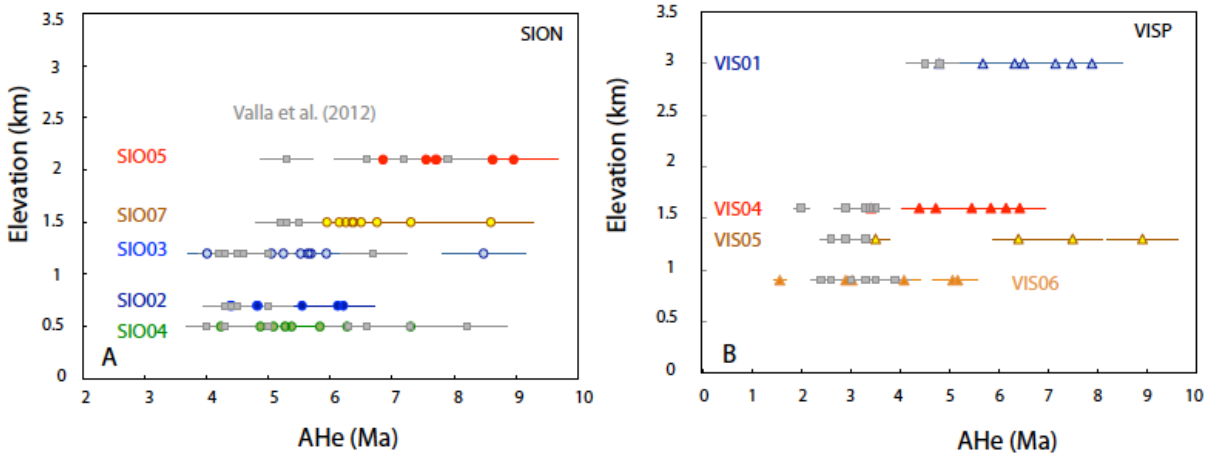


FIGURE IV-9: Apatite (U-Th-Sm)/He age/elevation profiles

This figure compiles our (U-Th-Sm)/He results (colored dots) with bibliographic results (grey dots) from Valla (2011) in the Rhone Valley, in SIO (A) and VIS (B).

Except samples SIO04 and VIS08, most of our dataset are slighlty older and more scattered than tha of Valla et al. (2012), in grey on Figure IV-9. Yet, we believe that we cannot calculate a dispersion value only from a few (2-8) grains. Therefore, as the techniques were similar to acquire both dataset, we chose not to compare both datasets but rather to combine both in a wider dataset more representative from the VISP and SIO profiles.

AHe dispersion is not related to crystal geometry variation: there is no correlation between AHe age and crystal length (L) nor crystal radius size (Rs), as illustrated in the supplementary information. There is no correlation either between AHe age and eU content, even though AHe ages globally decrease with eU contents as is shown in Figure IV-10. This absence of correlation between AHe ages and eU contents is common in contexts where rocks were exhumed in a fast and recent history. Note that the eU contents found in the VIS profile are smaller than those measured in the SIO profile (Figure IV-10).

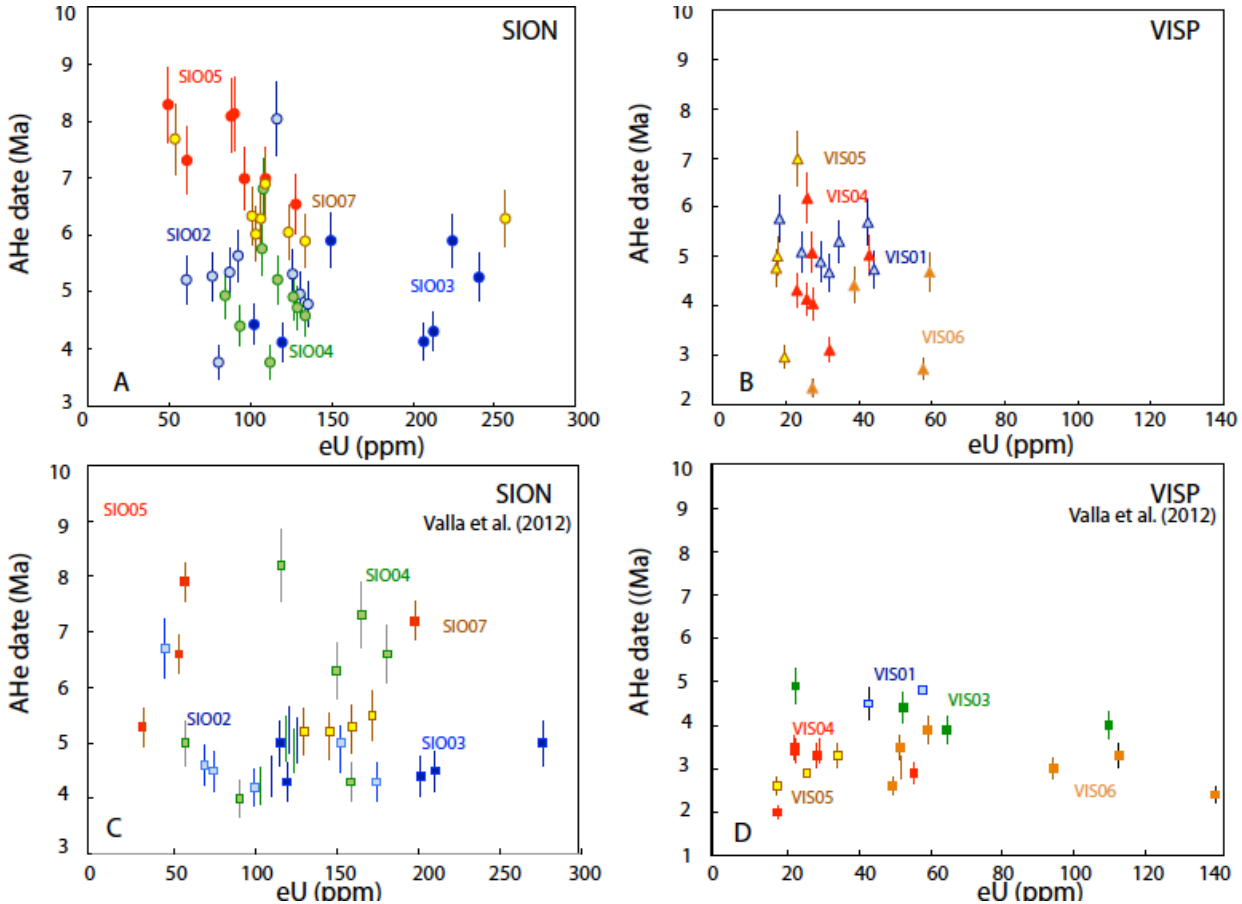


FIGURE IV-10: AHe ages against eU content in SIO (A,C) and VIS (B,D)

C and D represents the data from Valla (2011). Note that the x-axis are different between SIO (A, C) and VIS (B,D): VIS sample have much lower eU values than samples from the SIO profile.

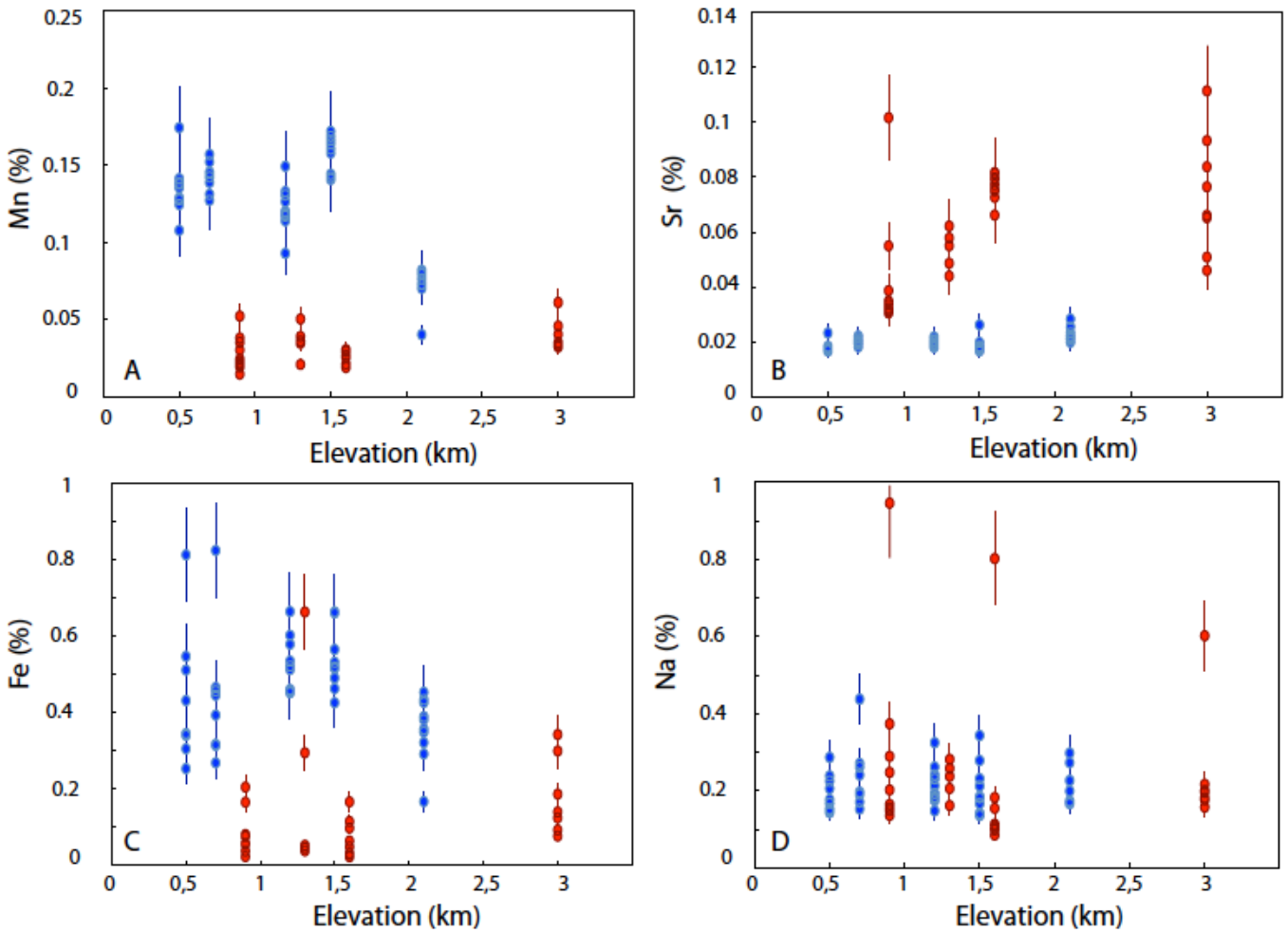


FIGURE IV-11: Chemical composition as a fontion of rock elevation

Red dots represent samples from the Aar mountains (VIS profile), while blue dots represent apatites from the Aiguilles Rouges Massif (SIO profile). The Aar mountain apatites (VIS) is richer in Sr, and poorer in Mn and Fe than the Aiguilles Rouges (SIO) crystals

5.2. Apatite geochemistry

Apatite chemical composition was analyzed with ICPMS technique on dissolved grains. Minor amounts of Na (<1%) are detected, as well as not negligible amounts of Mn (44-1952 ppm) and Sr (124-1114 ppm). Figure IV-11 presents the apatite chemical contents for different sample elevations. The most abundant rare earth elements are Y (172-5113 ppm), Ce (365-4236 ppm), Nd (259-1888 ppm), and La (121-3288 ppm). On the other hand, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, and Lu are present in trace only (<350 ppm).

When comparing the different samples, we can easily notice that apatites from the SIO profile have a chemical composition different from the Visp profile in several elements. Mn and Fe contents are higher in SIO (Figure IV-17), while the Visp grains are slightly enriched in Sr (Figure IV-11). No correlation between rock altitude and chemical composition could be clearly distinguished (Figure IV-11). The dispersion in chemical composition is not related either to altitude nor to profile location. In section 6, we investigated eventual relationships between the chemical composition and AHe age.

Regarding the rare earth elements, we could normalize each concentration to the chondrite composition and draw spider diagrams representing the REE pattern for each apatite crystal (Figure IV-12). The results were very reproducible among each sample, and every apatite from the SIO profile appear to have a similar REE pattern (represented in green in Figure IV-12). By contrast, the apatites from the VIS profile are characterized by a slightly different REE pattern (represented in red in Figure IV-12). The VIS samples are slightly richer in LREE such as Pr, Nd, Sm than the SIO apatites, and also slightly poorer in HREE such as Tb, Dy Ho. Additionally, the apatites from VIS04 sample have a drastically different REE pattern than other samples (represented in purple in Figure IV-18). This sample is depleted in every REE, especially HREE.

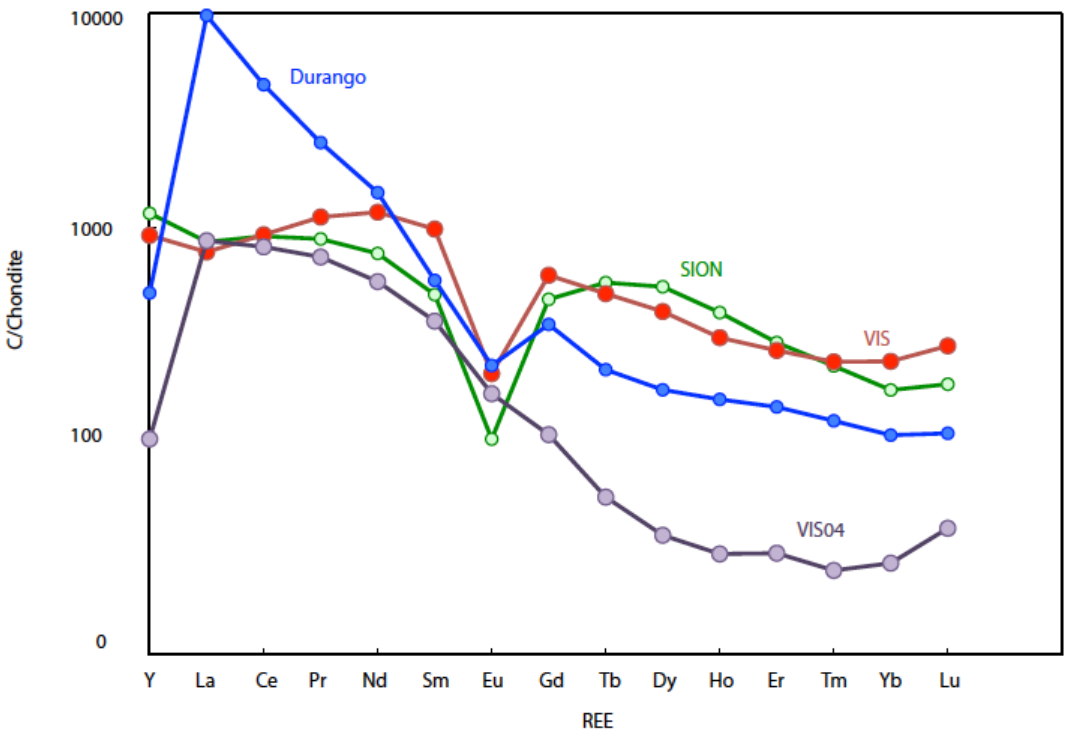


FIGURE IV-12: REE spider diagram of apatite crystals

6. Origin of AHe age dispersion

The AHe ages record the age of the cooling below 40-120°C (Stockli et al., 2000; Shuster et al., 2006; Flowers et al., 2009; Gautheron et al., 2009). If the cooling event is fast, the exhumation from 120 to 40°C is rapid and AHe ages are not expected to be dispersed as the age of the cooling is almost unique. For instance, given the thermal history issued from Valla et al. (2016) – i.e. a fast cooling event at 5-6 Ma -, the Flowers et al. (2009) model simulates a constant AHe age of 5 Ma, whatever composition in eU, or value of Rs and rmr_o are chosen.

Yet, our data are not consistent with these expectations. Despite the simple thermal history affecting the Alps exhumation, we observe a wide dispersion of the AHe ages, most of which range between 3.1±0.3 and 8.3±1 Ma in SIO and between 1.3±0.1 and 7.0±1 Ma in

Visp. The standard deviation, quantifying the dispersion among each sample, range between 0.4 and 1.6 Ma, which is equivalent to a mean relative dispersion of 16-40%.

Thus, our data show that the observed dispersion in AHe ages is unexplained by current models (Flowers et al., 2009; Gautheron et al., 2009). They involve a relatively simple description of helium retention below the HePRZ zone, i.e below ≈40°C. The aim of this study is to investigate the causes of AHe dispersion in such simple geological case, in order to propose a new model that better represent our observations.

We quantified the dispersion in AHe ages for each sample, as well as the relative standard deviation (standard deviation/mean AHe). Plotted against the rock elevation (Fig. IV- 19A), it appears that this dispersion is inversely and linearily related to rock elevation: the most elevated samples are the least dispersed ones (σ=0.4 Ma); while samples from the bottom of the valley have way more scattered AHe ages (σ=1.6 Ma). This is also the case of the relative standard deviation in the VIS profile, which increases from 10% for the mountain summits to 40% at the bottom of the valley. This is very interesting, as the most elevated samples did not have the same thermal history than the samples from the bottom of the valley. Following Valla et al. (2012), the samples from the top of the mountains were preserved from the glacial erosion that affected the bottom of the valley. Thus, we can imagine that the large AHe dispersion found in low-elevated samples is related to the erosion phase.

The aim of this section is to determine the origin of the dispersion in AHe ages that we here evidenced. Three hypotheses were tested here. In the section 6.1 we test whether the AHe age dispersion is related to the apatite damage content quantified by the eU content and the alpha dose. In the section 6.2 we test if the AHe dispersion is related to apatite chemical composition. Thereafter, in the section 6.3 we test whether the AHe ages are related to eventual crystal size variations.

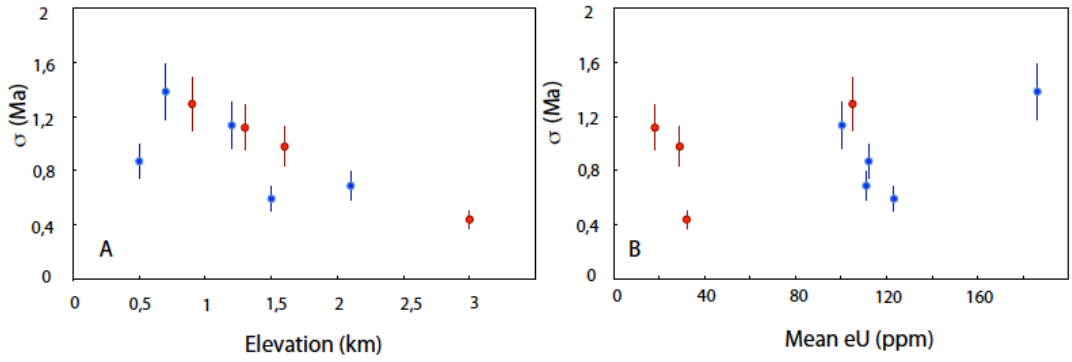


FIGURE IV-13: AHe age dispersion

Red circles represent samples from the VIS profile, while blue dots represent apatites from the SIO profile. The value σ is the standard deviation of individual AHe ages calculated for each sample. It appears that the most elevated samples are the least dispersed ones. No correlation is observed between AHe dispersion and mean eU content.

6.1. AHe dispersion and alpha-recoil damage

The eU content varies between 10 and 200 ppm, so our sampling includes low-damaged apatites (alpha dose= 8.10^{14} α/g) as well as highly damaged apatites (alpha dose = 1.10^{16} α/g). These alpha doses were calculated from U, Th, and Sm contents, based on the knowledge of the radioactivity constants and assuming that alpha particles accumulated since 10 Ma ago. As we mentioned, the apatites from VIS have lower eU contents (ranging from 10 to 70 ppm) than those from SIO (ranging from 50 to 250 ppm). Therefore, the sampling is adequate to investigate the role of damage on helium retention. Most models predict that AHe ages will increase with damage content. However, here it is interesting to note that AHe ages are not correlated to eU content (Figure IV-10), nor to alpha dose (Figure IV-14A). Additionally, the alpha dose and eU content do not appear to evolve in function of rock elevation. This absence of relationship between eU and AHe ages is often observed in active context, where the rock did not reside long within the HePRZ.

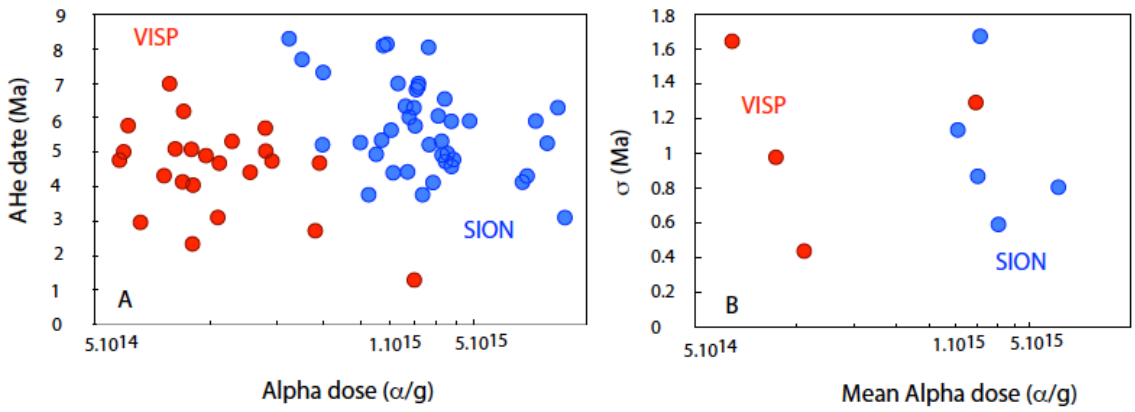


FIGURE IV-14: AHe ages and alpha dose

Red dots represent samples from the VIS profile, while blue dots represent apatites from the SIO profile. The value σ is the standard deviation of individual AHe ages calculated for each sample. The alpha dose was calculated based on the U, Th, and Sm contents, from the radioactivity disintegration law, assuming accumulation of damage for 10 Ma. The VIS samples has lower alpha doses than the SIO samples. No correlation was found between AHe ages or AHe dispersion and alpha dose.

We now investigate any potential relationship between AHe age and eU for each sample. We failed to reveal any relationship between the AHe age and eU, except for one sample: SIO05, for which it was observed a negative correlation between AHe ages and eU content (Figure IV-10). There is no relationship neither between AHe dispersion and the mean eU content nor the mean alpha dose, as revealed in Fig. IV-13B and IV-14B. Therefore, in those samples that were rapidly cooled, there is no direct relationship between AHe ages and damage content.

6.2 AHe dispersion and apatite composition

The individual chemical composition varies from one grain to another. For instance, the La content ranges from 121 to 3288 ppm. As mentioned earlier, the SIO and the Visp profiles have not exactly the same compositions in minor and trace elements. They also do not have the same range of AHe ages: the VIS samples are younger than the SIO profile. Therefore, our sampling is adequate to investigate the role of apatite chemistry on AHe dating.

We looked for potential correlations between crystal chemistry and AHe ages. Figure IV-15 presents the relationship between AHe and La, Y, Mn, and Sr contents in apatites from the SIO profile. If we plot all of the AHe ages against elementary composition, we failed to evidence any correlation between He retention and apatite chemistry. Then, we investigated an eventual relationship between AHe ages and chemistry for each individual rock sample. We could not evidence any trend among the samples. Therefore, there is no systematics among the samples and we cannot explain the AHe age dispersion. To our knowledge, no previous study examines this correlation between AHe age dispersion and cation composition, except that of Recanati et al. (2017). They also did not observe any relationship between AHe age and chemical composition, except for Sr. Here, we did not observed such correlation with Sr.

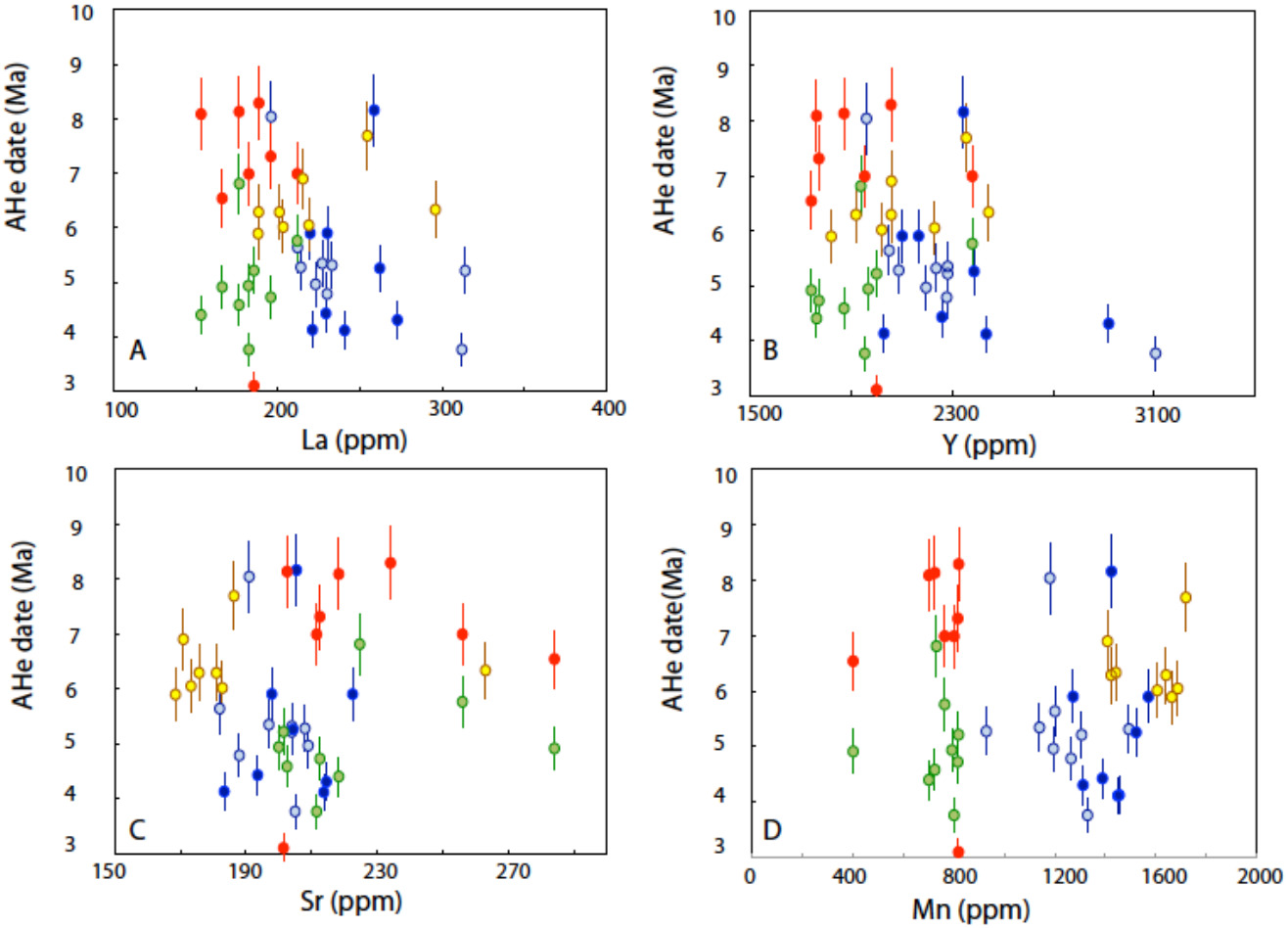


FIGURE IV-15: AHe ages and apatite composition in SIO

6.3 AHe dispersion and crystal size

Brown et al. (2013) and Beucher et al. (2013) interpreted the natural dispersion in AHe ages as related to crystal size variations in broken crystals. Here, we kept a track of the dimensions of the crystals and their morphologies. Most crystals had no pyramids (0 termination). Some of them had in addition one broken face. Two crystals had 1 pyramidal termination. No crystals were entire. No correlation was found between AHe age and the crystal radius size Rs, with the exception of sample VIS04 for which the AHe age appear to increase linearily with the radius size, between 4 Ma (Rs=50 μm) and 9 Ma (Rs=100 μm), as illustrated in the supplementary information. Similarly, no correlation was observed between AHe age and crystal length, except for the sample VIS04 for which the AHe age increase with L.

Therefore, except for this sample, it is not likely that the variation in grain morphologies and crystal lengths induce here a scatter in AHe ages. The number of grains is sufficient to affirm that there is no direct relationship between retention and crystal length. Yet, in Brown et al. (2013), their new model relates the age to the fragment length especially for 1 termination fragments. They reveal a parabolic-shaped curve of age vs. L. We could not perform the same analysis here, as we only have two crystals with one pyramidal termination. Therefore, the Brown et al. (2013) model is not applicable here given our sampling. More broken crystals with one pyramidal termination should be picked if we would like to see such correlation between dispersion and crystal length.

7. Modeling

7.1 Current diffusion models

As explained earlier, the thermal history of the Rhône Valley is already known thanks to ealier thermochronometric studies (Valla et al., 2011, 2012, 2016). These studies include:

$^{4}He/^{3}He$ thermochronometry, AFT studies, and (U-Th-Sm)/He ages. Therefore, we used the thermal histories defined by Valla et al. (2016) for each of the samples as an input for our forward modeling. This enabled us to test the different available diffusion models in a context where the thermal history was previously constrained. An example of such thermal histories is provided in Figure IV-16, for two samples at the same altitude in the Aiguilles Rouges and Aar massifs. In agreement with the AFT ages that are younger in the Aar massif, the exhumation above the partial annealing zone is earlier in the Aar massif than in the Aiguilles Rouges massif.

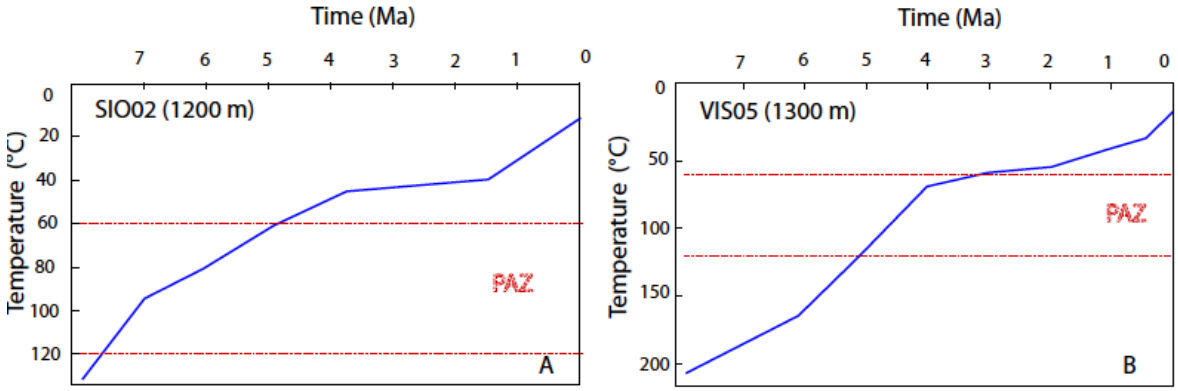


FIGURE IV-16: Thermal histories in VIS and SIO (from Valla et al., 2016)

PAZ: partial annealing zone of AFT. Exhumation of the SIO2 sample is earlier than that of the VIS 05 sample.

In a first time, we tested the Gautheron et al. (2009) and the Flowers et al. (2009) model on Visp and SIO dataset. Figure IV-17 presents the results of the forward simulations compared to the observed AHe vs eU relationship. There is no large difference between the predictions of both models (<0.5 Ma difference). Thus, both models are difficult to distinguish, especially given the analytical error of 8%. Additionally, both models underpredict the helium retention: the predicted values are around 2Ma lower than the measurements.

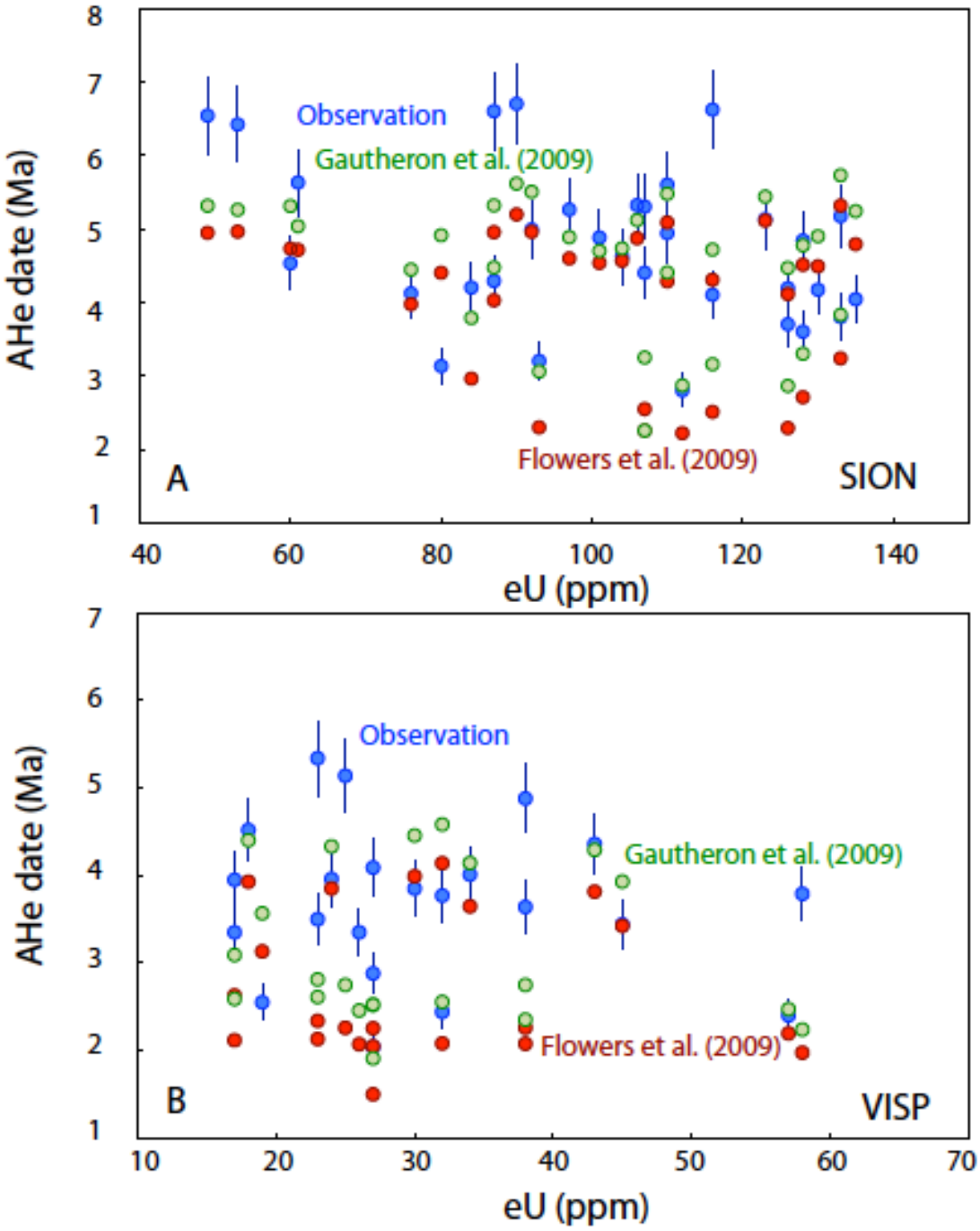


FIGURE IV-17: Forward simulations of AHe ages using the current He diffusion models

Therefore, given the thermal histories provided by Valla et al. (2016), the current model fail to reproduce adequately the measured AHe ages. This reveals either that the thermal histories are not fully understood yet, or that the current models do not reproduce adequately the observations. We will consider both possibilities in the following two sections.

7.2 Investigation of the Gerin et al. (2017) model previsions

In order to compare with the previous work of Recanati et al. (2017), we here tested the Gerin et al. (2017) model to try to reproduce precisely the dataset. Explanations about this model are provided in Gerin et al. (2017) and in Recanati et al. (2017). The physical equations describing the evolution of the diffusion coefficient with damage is similar to that of Gautheron et al. (2009) and Flowers et al. (2009). But the main difference with these models is that the trapping energy (ΔEa= Ea + Eb; where Ea is the activation energy and Eb the energy of traps) can vary for each crystal. This energy has to be provided by He atoms to leave damage sites once trapped. This parameter thus controls the damage retentivity, and therefore the AHe ages. Additionally, as in Recanati et al. (2017), we modeled the annealing of alpha damage with a alpha-recoil annealing parameter rmro', included in a law very similar to Ketcham et al. (2007). This parameter controls the damage annealing independently from the fission track annealing kinetics.

First, we predicted the AHe ages using forward simulations, with two different trapping energies : ΔEa= 50 kJ/mol and ΔEa= 80 kJ/mol. In these simulations we used a constant value of rmro' of 0.7. Figure IV-18A and 18B presents the results of these simulations in SIO and Visp. Noteworthly, the predictions made with ΔEa=50 kJ/mol are 3 Ma younger than observations and cannot reproduce them. When we increase the trapping energy, the predicted AHe ages also increase.

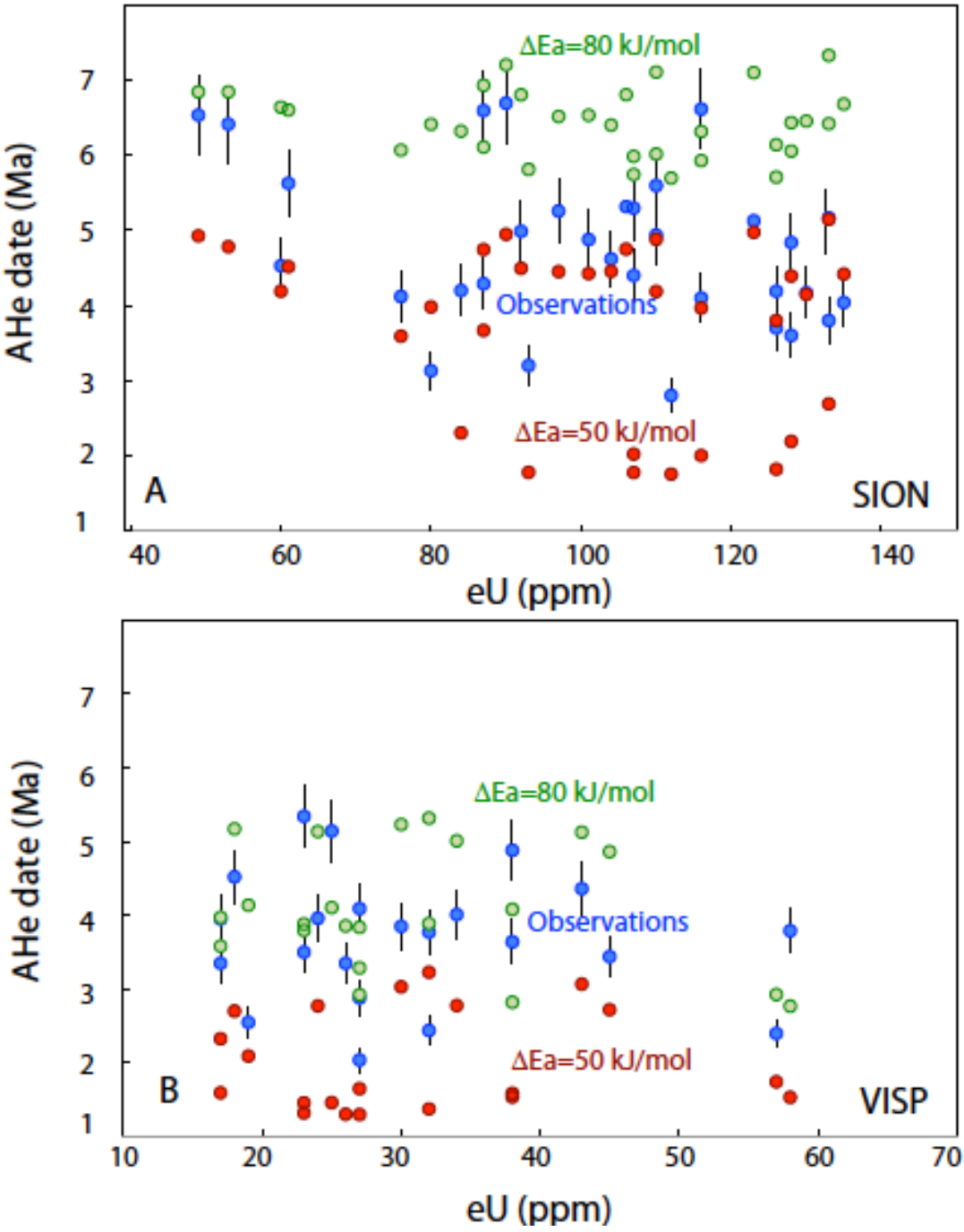


FIGURE IV-18: Forward modeling of the AHe dataset using the Gerin et al. (2017) model

AHe vs eU relationship simulated in SIO (A) and VIS (B) areas with a varying trapping energy

The predictions made with a trapping energy of 80 kJ/mol are 1-2 Ma older than observations. In an approach similar to what was done by Recanati et al. (2017), we defined the trapping energy required for each grain to reproduce the dataset. Most values are between 40 and 65-80 kJ/mol, even if few crystals were too old to be adequately reproduced. For the sample VIS 01, the energies are ≈ 56±3 kJ/mol, while for the sample VIS04 it is ≈ 70±10 kJ/mol. Therefore, as was shown in French Brittany by Recanati et al. (2017), our dataset requires a high value of the trapping energy in order to be reproduced. This evidences that apatites are very retentive in both geological contexts, and that this high retention is not taken into account in current models.

These simulations are in agreement with the physics of trapping. Indeed, the helium insertion energy is 64 kJ/mol. If defects are wide enough, the trapping energy equals the insertion energy, as helium atoms are free within the defects. If defect are small, the trapping energy is below 64 kJ/mol. Therefore, our simulations evidence that traps are large, as holes, and thus the trapping energy is High (40 -64 kJ/mol). Values higher than 64 kJ/mol does not agree with the physics of trapping. They evidence that empirical values may be higher than predicted by physical models.

Finally, we tested the influence of the alpha-recoil parameter on the predictions, by doing forward simulations with varying rmro' factor. In these simulations, we used a constant value of ΔEa of 80 kJ/mol. Figure IV-19 presents the results of these simulations in SIO (IV-19A) and Visp (19B). Surprisingly, the predictions do not vary a lot with the rmro' parameter: with a value of 0.7 the predictions are only slightly (<0.5Ma) older than with a value of 0.9. Therefore, variations in annealing kinetics or chemistry do not explain our dataset. This interpretation contrasts with the geological case studied in French Brittany by Recanati et al. (2017). Indeed, in such case, rmro' variation could induce a scatter in AHe ages.

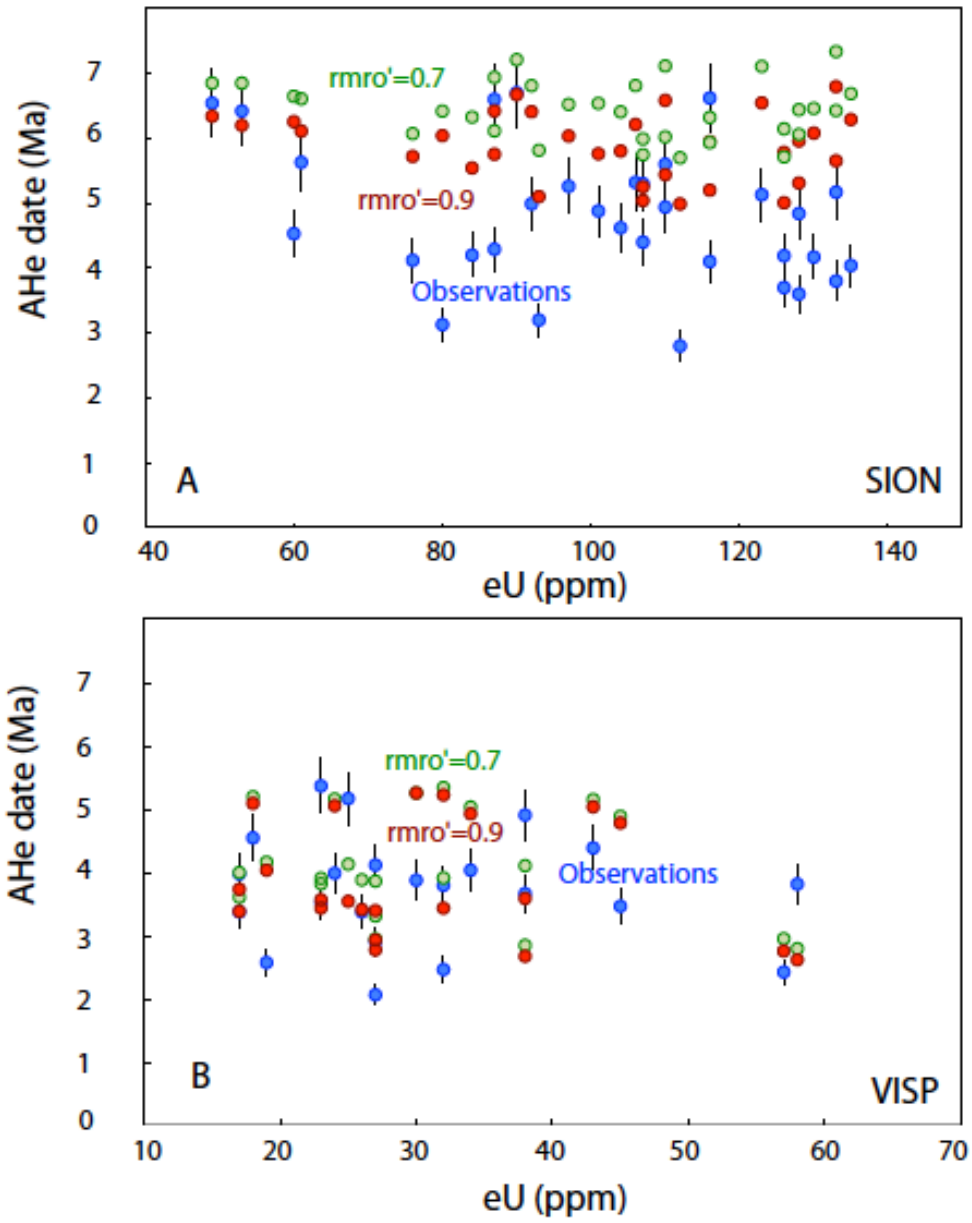


FIGURE IV-19: Forward modeling of the AHe dataset and alpha-recoil annealing parameter

AHe vs eU relationship simulated in SIO (A) and VIS (B) areas with a varying alpha-recoil

The difference between both case is the thermal history: in French Brittany it included long residence within the HePRZ, and several burial phases; while in the Western Alps the cooling is more uniform and simple. Therefore, it is likely that burial phase strengthen the role of rmro' (and eventually chemistry) on AHe age scattering which is not the case in the Alps.

8. Conclusions

Our work revealed significant dispersion in (U-Th-Sm)/He ages in the Aiguilles Rouges and Aar massifs while these settings involve fast cooling in an active mountain belt. As the current helium retention models do not predict such scattering in the ages, we tried to explain the observed dispersion and investigate the potential causes for the standard deviation in AHe ages in each sample. Results show that the AHe ages are not correlated to grain size, eU content, nor apatite chemical composition. Though, the scattering is inversely correlated to the rock elevation. Therefore, we suggest that helium retention in low-elevation samples is not yet fully understood and should be studied furthermore. The role of the glacial erosion phase that affected the bottom of the valley may be interesting to study. Low-elevation rocks were exhumed more recently above the HePRZ zone, and this residence time at depths has increased the scattering in AHe ages. Therefore, the error bars in predicted ages should be higher for low-elevation rocks than for summit samples. The effect of the HePRZ on damage should be further studied. By contrast, apatite chemical composition is not correlated to AHe age dispersion. Therefore, we cannot explain the scattering of the data by a variation of annealing rates with chemistry.

Despite this strong dispersion, the data presented here can be used to complement our knowledge of the Swiss Alps and the Rhône Valley. In order to make these interpretations, average AHe ages can be calculated for each sample. Mean age positively correlates with rock elevation, yielding to apparent exhumation rates of 0.5 km/Ma, which agree with the previous data from Valla et al. (2011, 2012; 2016).

Our study thus evidence that even in an apparently simple geological context, several uncertainties persist regarding (U-Th-Sm)/He methodology. Improvements in predictions should be performed by: (i) further studies of low-damaged and low-elevation apatites could be done, and (ii) error bars in predictions should be included in those samples to better

represent natural AHe dispersion. In the future, this scattering should be predicted as a parameter in addition to the mean AHe age. Dispersion should not be feared about, but should be used in order to improve helium retention models.

In this paper, we used the same numerical approach than in Recanati et al. (2017) in order to test the available diffusion models and to finally reproduce the observed dispersion in AHe ages. The conclusions are very similar to those in Recanati et al. (2017). First, the currently used models from Flowers et al. (2009) and Gautheron et al. (2009) underpredict the He retention. Additionally, the Gerin et al. (2017) model reproduces the dataset only with relatively high values of the trapping energy: 40-80 kJ/mol. Finally, contrary to what was observed by Recanati et al. (2017), variations in alpha damage annealing kinetics cannot account for the observed dispersion in AHe ages.

Therefore, this study of the Western Alps evidences now again that apatite crystals are more retentive than was previously thought. We envision several hypotheses. Either the retention of the damage site is currently underestimated, so that the trapping energy is higher than previously suggested (as proposed in Recanati et al., 2017) ; or the number of damage sites is currently underestimated because they can actually be retained at higher temperatures (e.g. 150°C) than previously thought. We must develop further the physical description of default in order to better understand the behaviour of the trapping energy in such a geological context.

Acknowledgments

This work is part of the ANR ANR-12-BS06-0005 HeDiff project.

References

Beucher R., Van der Beek P., Braun J., Batt G.E., 2012. Exhumation and relief development in the Pelvoux and Dora-Maira massifs (Western Alps) assessed by spectral analysis and inversion of thermochrhronological age transects. Journal of Geophysical Research 117 (F3).

Beucher R., Brown R.W, Roper S. Stuart F. Persano C., 2013. Natural age dispersion arising from the analysis of broken crystals. Part II: Practical application to aptite (U-Th)/He thermochronometry. Geochimica et Cosmochimica Acta 120: 395-416.

Bernet M., Brandon M.T., Garver J., Reiners P., Fitzgerald P.G., 2002. Determining the zircon fission-track closure temperature. Geological Society of America 34, 18 pp.

Bogdanoff S., Michard A., Mansour M., Poupeau G., 2000. Apatite fission track analysis in the Argentera massif: evidence of contrasting denudation rates in the External Crystalline Massifs of the Western Alps. Terra Nova 12 (3): 117-125

Boutoux A., Belhasen N., Nanni U, Pik R., Verlaguet A., Rolland Y., Lacombe O., 2016. Thermal and structural evolution of the external Western Alps: insights from (U-Th-Sm)/He thermochronology and RSCM thermometry in the Aiguilles Rouges/Mont Blanc massifs. Tectonophysics 683: 109-123.

Brown R.W., Beucher R., Roper S., Persano C., Stuart F., Fitzgerald P., 2013. Natural age dispersion arising from the analysis of broken crystals. Part I: Theoretical basis and implications for the apatite (U-th)/He thermochronometer. Geochimica et Cosmochimica Acta 122: 478-497.

Cederbom C., Sinclair H.D., Schlunegger F., Rahn M.K., 2004. Climate-induced rebound and exhumation of the European Alps. Geology 32:709-712.

Cederbom C., Van der Beek P.A., Schlunegger F., Sinclair H.D., Oncken O., 2011. Rapid extensive erosion of the North Alpine foreland basin at 5-4 Ma. Basin Research 23:528-550.

Challandes N., Marquer D., Villa I.M., 2008. P-T-t modeling, fluid circulation, and 39Ar-40Ar and Rb-Sr mica ages in the Aar Massif shear zones (Swiss Alps). Swiss Journal of Geosciences 101 (2): 269-288.

Coward M., Dietrich D., 1989. Alpine Tectonics. Geological Society London, special publications 45.

Farley K.A., 2002. (U-Th)/He dating: tchniques, Calibrations, and Applcations. Reviews in Mineralogy and Geochemistry 47 (1).

Flowers, R., Ketcham, R.A., Shuster, D., Farley, K.A., 2009. Apatite (U-Th)/He thermochronology using a radiation damage accumulation and annealing model. Geochim. Cosmochim. Acta, 73: 2347-2365.

Fox M., Herman R.A., Shuster F., Willett S.D., Schmid S.M., 2016. The exhumation history of the European Alps inferred from linear inversion of thermochronometric data. American Journal Of Science 316 (6): 505-541.

Gallagher K., Brown, R., Johnson C, 1998. Fission track analysis and its applications to geological problems. Annual Review of Earth and Planetray Sciences 26: 519-572.

Gautheron, C.E., Tassan-got, L., Barbarand, J., Pagel, M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. Chemical Geology, 266: 166-179.

Glotzbach C., Reinecker J., Danisik M., Rahn M., Frisch W., Spiegel C., 2008. Neogene exhumation history of the Mont Blanc Massif, Western Alps. Tectonics 27.

Glotzbach C., Reinecker J., Danisik M., Rahn M., Frisch W., Spiegel C., 2010. Thermal history of the central Gotthard and Aar massifs, European Alps: Evidence for steady state, long-term exhumation. Journal of Geophysical Research 115.

Glotzbach C., Van der Beek P., Spiegel C., 2011. Episodic exhumation and relief growth in the Mont Blanc massif, Western Alps, from numerical modeling of thermochronology data. Earth and Planetary science Letters 304 (3-4): 417-430.

Ketcham R.A., Carter A., Donelick R.A., Barbarand J., Hurford A.J., 2007. Improved modeling of fission-track annealing in apatite. American Mineralogist 92 (5-6).

Kirschner D.L., Cosca M.A., Masson H., Hunzicker J.C., 1996. Staircase 40Ar/39Ar spectra of fine-grained whitemica: timing and duration of deformation and empirical constraints on argon diffusion. Geology 24 (8): 747-750.

Kraml, M. et al., 2006. A new multi-mineral age reference material for 40Ar/39Ar, (U-Th)/He and fission track dating methods: The Limberg t3 tuff. Geostandards and Geoanalytical Research, 30(2): 73-86.

McDowell, F.W., McIntosh, W.C., Farley, K.A., 2005. A precise 40Ar-39Ar reference age for the Durango apatite (U-Th)/He and fission-track dating standard. Chem. Geol., 214(3-4): 249-263.

Michalski I., Soom M., 1990. The Alpine thermo-tectonic evolution of the Aar and Gotthard massifs, central Switzerland: fission track ages on zircon and apaite and K-Ar mica ages. Schweiz. Mineral. Petrogr. Mitt.

Rahn M.K., 1994. Incipient metamorphism of the glarus Alps: Petrology of the Taveyanne greywacke and fission track dating, PhD, Univ. of Basel, Switzerland., 209pp.

Rahn M.K., Brandon M.T., Batt G.E., Garver J.I., 2004. A zero-damage model for fission-track annealing in zircon. American Mineralogist: 1945-3027.

Recanati, A., Gautheron, C., Barbarand, J., Missenard Y., Pinna-Jamme R., Tassan-Got L., Carter A., douville E., Bordier L., Pagel M., Gallagher K., 2017. Helium trapping in apatite damage: insights from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoïd lithologies. Submitted to Chemical Geology.

Reinecker J., Danisik M., Schmid C., Glotzbach C., Rahn M., Frisch W., Spiegel C., 2008. Tectonic control on the late stage exhumation of the Aar Massif (Switzerland): Constraints from apatite fission track and (U-Th)/He data. Tectonics 27.

Reiners P.W., Farley K.A., Hickes H.J., 2002. He diffusion and (U-Th)/He thermochronometry of zircon: initial results from Fish Canyon Tuff and Gold Butte. Tectonophysics 349 (1): 297-308.

Rolland Y., Cox S.F., Corsini M., 2009. Constraining deformation stages in brittle-ductile shear zones from combined field mapping and 40Ar/39Ar dating: the structural evolution of the Grimsel Pass area (Aar Massif, Swiss Alps). Journal of Structural Geology 31 (11): 1377-1394.

Rubatto D., Schaltegger U., Lombardo D., Colombo F., Compagnoni R., 2001. Complex Paleozoic magmatic and metamorphic evolution in the Argentera massif (Western Alps), resolved with U-Pb dating. Schweizerische Mineralogische und petrographische Mitteilungen 81: 213-228.

Seward M.L., Mancktelow D., 1994. Neogene kinematics of the central and western Alps: evidence from fission-track dating. Geology 22(9):803-806.

Schaltegger U., Corfu F., 1992. The age and source of late Hercynian magmatism in the Central Alps: evidence from precise U-Pb ages and initial Hf isotopes. Contributions to Mineralogy and Petrology 111 (3): 329-344.

Schaltegger U., 1993. The evolution of the polymetamorphic basement in the Central Alps unraveled by precise U-Pb zircon dating. Contributions to Mineralogy and Petrology 131(4): 466-478.

Schwartz S., Gautheron C., Audin L., Dumont T., Nomade J., Barbarand J., Pinna-Jamme R., Van der Beek P., 2017. Foreland exhumation controlled by crustal thickening in the Western Alps. Geology 45 (2): 139-142.

Shuster D.L., Flowers R.M., Farley K.A., 2006. The influence of natural radiation damage on helium diffusion kinetics in apatite. Earth and Planetary Science Letters 249 (3-4): 148-161.

Soom M., 1990. Abkühlungs- und Hebungsgeschichte der Externmassive und der penninischen Decken beidseits der Simplon-Rhône-Linie seit dem Oligozän: Spaltspurendaiterung an Apatit/Zirkon und K-Ar Datierungen an Biotit/Muskovit (Westliche Zentralalpen). PhD, Univ. Bern, 119pp.

Stockli D.F., Farley K.A., Dumitru T.A., 2000. Calibration of the apatite (U-Th)/He thermochronometer on an exhumed fault block, White Mountains, California. Geology 28 (11): 983-986.

Valla P.G., Shuster D.L., Van der Beek P.A., 2011. Significant increase in relief of the European Alps during mid-Pleistocene Glaciations. Nature Geoscience 4: 688-692.

Valla P.G., Van der Beek P.A., Shuster D.L., Braun J., Herman F., -Tassan-Got L., Gautheron C., 2012. Late Neogene exhumation and relief development of the aar and Aiguilles Rouges massifs (Swiss Alps) from low-temperature thermochronology modeling and 4He/3He thermochronometry. Journal of Geophysical Research 117.

Valla P.G., Rahn M., Shuster D.L., Van der Beek P.A., 2016. Multi-phase late Neogene exhumation history of the Aar massif, Swiss Central Alps. Terra Nova 28: 389-393.

Van der Beek P.A., Valla P.G., Herman F., Braun J., Persano C., Dobson K., Labrin E., 2010. Inversion of thermochronological age-elevation profiles to extract independent estimates of denudation

and relief history-II: Application to the French Western Alps. Earth and Planetary Science Letters 296: 9-22.
Vernon A.J., Van der Beek P.A., Sinclair H.D., Rahn M., 2008. Increase in late Neogene denudation of the European Alps confirmed by isoage analysis of a fission-track database. Earth and Planetary Sicence Letters 270:316-329.
Vernon A.J., Van der Beek P.A., Sinclair H.D., Persano C., Foeken J., Stuart F.M., 2009. Variable late neogene exhumation of the central European Alps: low-temperature thermochronology from the Aar Massif, Switzerland, and the Lepontine Dome, Italy. Tectonics 28.
Von Hagke C., Cederbom C.E., Oncken O., Stökli D.F., Rahn M.K., schlunegger F., 2012. Linking the northern Alps with their foreland: the latest exhumation history resolved by low-temperature thermochronology. Tectonics 31.
Von Raumer J.F., Bussy F., Stampfli G.M., 2009. The variscan evolutio n in the External massifs of the Alps and place in their Variscan framework. Comptes Rendus Geoscience 341 (2-3): 239-252.

4. Conclusion générale

Les massifs cristallins externes constituent l'épine dorsale topographique de la chaîne des Alpes, et il est donc intéressant de déterminer les mécanismes de mise en place du relief dans ces massifs. Nous avons obtenu des données AHe et AFT sur les échantillons de Valla et al. (2011) situés dans le massif de l'Aar et des Aiguilles Rouges. Nous confirmons une dispersion assez importante des données. Selon notre étude, la dispersion est plus importante en fond de vallée qu'au sommet des massifs. Les Alpes sont une chaîne exhumée récemment par rapport au Massif Armoricain, et l'histoire thermique ne comprend pas de phases majeures d'enfouissement. C'est pourquoi nous ne nous attendions pas à avoir une telle dispersion des âges AHe. Cette dispersion ne semble pas liée aux variations de eU – puisqu'il n'y a pas de corrélation AHe vs eU dans ce contexte- ni à des variations de composition chimique des grains.

Comme dans le chapitre 3 et dans Recanati et al. (2017), la conclusion intéressante est que les apatites des Alpes Suisses retiennent plus d'hélium que prévu par les modèles actuels. Les modèles de Gautheron et al. (2009) et de Flowers et al. (2009) sous-estiment la rétention, ainsi que le modèle de Gerin et al. (2017) utiisé avec une énergie de trapping de 30 kJ/mol. Pour pouvoir reproduire les données, l'énergie de stockage doit être significativement plus élevée : environ 55 kJ/mol au moins. Cette conclusion est primordiale car elle montre que les

interprétations faites dans le cas du Trégor sont également valables dans le contexte Alpin. En revanche, dans les Alpes une variation du paramètre rmro' ne joue pas sur les simulations, car les défauts n'ont pas le temps de cicatriser lors d'une exhumation rapide. Ce chapitre, comme le précédent, concluent la 2ème partie de cette thèse avec des résultats méthodologiques nouveaux : les apatites pourraient être beaucoup plus rétentives que prévu initialement par les modèles, ou retiennent les dommages à des températures plus élevées ou sur des durées plus longues qu'envisagé actuellement.

5. Bibliographie du chapitre

Beucher R., Van der Beek P.A., Batt G.E., 2012. Exhumation and relief development in the Pelvoux and Dora-Maira massifs (Western Alps) assessed by spectral analysis and inversion of thermochronological age transects. Journal of Geophysical Research 117.

Campani M., Mancktelow N., Seward D., Rolland Y., Müller W., Guerra I., 2010. Geochronological evidence for continuous exhumation through the ductile-brittle transition along a crustal-scale low-angle normal fault: Simplon Fault Zone, Central Alps. Tectonics 29(3).

Challandes N., Marquer D., Villa I.M., 2008. P-T-t modeling, fluid circulation, and 39Ar-40Ar and Rb-Sr mica ages in the Aar Massif shear zones (Swiss Alps). Swiss Journal of Geosciences 101 (2): 269-288.

Coward M., Dietrich D., 1989. Alpine tectonics- an overview. Geoplogical society London, special publications 45:1-29.

Davies J.H., Von Blanckenburg F., 1995. Slab breakoff : a model of lithosphere detachment and its test in the magmatism and deformation of collisional orogens. Earth and Planetary Science Letter 129 : 85-102.

Flowers, R., Ketcham, R.A., Shuster, D., Farley, K.A., 2009. Apatite (U-Th)/He thermochronology using a radiation damage accumulation and annealing model. Geochim. Cosmochim. Acta 73: 2347-2365.

Fügenschuh B., Schmid S.M., 2003. Late stages of deformation and exhumation of an orogen constrained by fission-track data: a case study in the Western Alps. GSA Bulletin 115 (11):1425-1440.

Froitzheim N., Placienka D., Schuster R., 2008. Alpine tectonics of the Alps and Western Carpathians. In: T. Mc Cann (eds) The Geology of Central Europe. Volume 2: Mesozoic and Cenozoic.

Fügenschuh B., Schmid S.M., 2003. Late stages of deformation and exhumation of an orogen constrained by fission-track data: A case study in the Western Alps. GSA Bulletin 115 (11): 1425-1440.

Gautheron, C., Tassan-got, L., Barbarand, J., Pagel, M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. Chem. Geol. 266: 166-179.

Gerin, C., Gautheron, C., Oliviero, E., Bachelet, C., Djimbi, M.D., Seydoux-Guillaume, A.M., Tassan-Got, L., Sarda, P., Roques, J., Garrido, F. Influence of vacancy damage on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scales. Geochim. Cosmochim. Acta. 197: 87-103.

Glotzbach C., Reinecker J., Danisik M., Rahn M., Frisch W., Spiegel C., 2008. Neogene exhumation history of the Mont Blanc massif, western Alps. Tectonics 27, 18pp.

Glotzbach C., Reinecker J., Danisik M., Rahn M., Frisch W., Spiegel C., 2010. Thermal history of the central Gotthard and Aar massifs, European Alps: evidence for steady state, long-term exhumation. Journal of Geophysical Research 115.

Grosjean G., Sue C., Burkhard M., 2004. Late neogene extension in the vicinity of the Simplon fault zone (Central Alps, Switzerland). Eclogae Geologicae Helvetiae 97 (1): 33-46.

Grundmann G., Morteani G., 1985. The young uplift and thermal history of the contral Eastern Alps (Austria/Italy), evidence from apatite fission track ages. Jahrb. Geol. Bundesanst. 128(2):197-216.

Mancktelow N.S., 1992. Neogene lateral extension during convergence in the Central Alps: evidence from interrelated faulting and backfolding around the Simplonpass (Switzerland). Tectonophysics 215(3-4): 295-317.

Michalski L., Soom M., 1990. The Alpine thermotectonic evolution of the Aar and Gotthard massifs, central Switzerland: Fission track ages on zircon and apatite and K-Ar mica ages. Schweiz. Mineral. Petrogr. Mitt. 70: 373-387.

Rahn M.K., 1994. Incipient metamorphism of the glarus Alps: Petrology of the Taveyanne greywacke and fission track dating, PhD, Univ. of Basel, Switzerland., 209pp.

Rahn M., 2005. A revised late-stage exhumation history of the Aar and Gotthard crystalline rocks based on FT data. 3d Swiss Geoscience Meeting, Zürich.

Recanati A., Gautheron C., Barbarand J., Missenard Y., Pinna-Jamme R., Tassan-Got L., Carter A., Douville E., Bordier L., Pagel M., Gallagher K., 2017. Helium trapping in apatite damage: insights from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoid lithologies. Chemical Geology, 470, 116-131.

Reinecker J., Danisik M., Schmid C., Glotzbach C., Rahn M., Frisch W., Spiegel C., 2008. Tectonic control on the late stage exhumation of the Aar Massif (Switzerland): constraints from apatite fission track and (U-Th)/He data. Tectonics 27, 17pp.

Schmid S.M., Pfiffner O.A., Froitzheim N., Schönborn G., Kissling E., 1996. Geophysical-geological transect and tectonic evolution of the Swiss-Italian Alps. Tectonics 15 (5): 1036-1064.

Schwartz S., Gautheron C., Audin L., Dumont T., Nomade J., Barbarand J., Pinna-Jamme R., Van der Beek P., 2017. Foreland exhumation controlled by crustal thickening in the Western Alps. Geology 45 (2): 139-142.

Seward D., Mancktelow N.S., 1994. Neogene kinematics of the central and western Alps: evidence from fission-track dating. Geology 22(9):803-806..

Schmid S.M., Pfiffner O.A., Froitzheim N., Schönborn, Kissling E., 1996. Geophysical-geological transect and tectonics evolution of the Swiss-Italian Alps. Tectonics 15 (5):1036-1064.

Schmid S.M., Kissling E., 2000. The arc of the western Alps in the light of geophysical data on deep crustal structure. Tectonics 19 (1): 62-85.

Soom M., 1990. Abkühlungs- und Hebungsgeschichte der Externmassive und der penninischen Decken beidseits der Simplon-Rhône-Linie seit dem Oligozän: Spaltspurendaiterung an Apatit/Zirkon und K-Ar Datierungen an Biotit/Muskovit (Westliche Zentralalpen). PhD, Univ. Bern, 119pp.

Van der Beek P., Valla P.G., Hermann F., Braun J., Persano C., Dobson K.J., Labrin E., 2010. Inversion of thermochronological age-elevation profiles to extract independent estimates of denudation and relief history-II: Application to the French Western Alps. Earth and Planetary Science Letters 296 (1-2): 9-22.

Valla P.G., 2011. Quantification de l'évolution du relief néogène et quaternaire des Alpes occidentals. Apports de la thermochronologie basse-température couplée à la modélisation numérique. phD Univ. Grenoble, 410 pp.

Valla P.G., Shuster D.L., Van der Beek P., 2011. Significant increase in relief of the European Alps during mid-Pleistocene glaciations. Nature Geoscience 4: 688-692.

Valla P.G., Van der Beek P., Shuster D.L., Braun J., Herman F., Tassan-Got L., Gautheron C., 2012. Late Neogene exhumation and relief development of the Aar and Aiguilles Rouges massifs (Swiss

Alps) from low-temperature thermochronology modeling and 4He/3He thermochronometry. Journal of Geophysical Research 117, 23 pp..

Valla P.G., Rahn M., Shuster D.L., Van der Beek P., 2016. Multi-phase late-Neogene exhumation history of the Aar massif, Swiss central Alps. Terra Nova 28: 383-393.

Vernon A.J., Van der Beek P.A., Sinclair H.D., Rahn M.K., 2008. Increase in late neogene denudation of the European Alps confirmed by isoage analysis of a fission-track database. Earth and Planetary Science Letters 270 (3-4): 316-329.

Vernon A.J., Van der Beek P.A., Sinclair H.D., Persano C., Foeken J., Stuart F.M., 2009. Variable late Neogene exhumation of the central European Alps: low-temperature thermochronology from the Aar Massif, Switzerland, and the Lepontime Dome, Italy. Tectonics 28, 21pp.

Von Blanckenburg F., Davies J.H., 1995. Slab breakoff: a model for syncollisional magmatism and tectonics in the Alps. Tectonics 14 (1): 120-131.

Von Hagke C., Cederbom C.E., Oncken O., Stockli D.F., Rahn M.K., Schlunegger F., 2012. Linking the northern Alps with their foreland: the latest exhumation history resolved by low-temperature thermochronology. Tectonics 31, 25pp.

Von Hagke C., Oncken O., Ortner H., Cederbom C.E., Aichholzer S., 2014. Late Miocene to present deformation and erosion of the Central Alps-Evidence for steady state mountain building from thermokinematic data. Tectonophysics 632: 250-260.

PARTIE III: APPROCHES INTERDISCIPLINAIRES

CHAPITRE 5 : APPORT DES ALGORITHMES D'APPRENTISSAGE POUR COMPRENDRE LA DISPERSION DES AGES (U-TH-SM)/HE SUR APATITE 261

1. INTRODUCTION: 261

2. INTERET DES METHODES D'EXPLORATION DE DONNEES 263

3. PROTOCOLE ET METHODES 271
3.1 DONNEES D'ENTREE 271
3.2 ALGORITHME DE PREDICTION : ARBRES DE REGRESSION ET FORETS ALEATOIRES 272
3.3 LOGICIEL KNIME ET ALGORITHMES UTILISES 279

4. RESULTATS 282
4.1 : FORET ALEATOIRE ET RESULTATS DES PREDICTIONS 282
4.2 : ARBRES PREDICTIFS : QUELLE EST L'INFLUENCE DE LA CHIMIE ? 284
4.3 : ARBRES PREDICTIFS : QUELLE EST L'INFLUENCE DE LA GEOMETRIE DES CRISTAUX ? 289
4.4 : PREVISION DE LA DISPERSION DES AGES THERMOCHRONOMETRIQUES 290

5. CONCLUSION 291

6. BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 293

CHAPITRE 6 : OBSERVATION ET CARACTERISATION DES DOMMAGES DANS L'APATITE 295

1. BUT DES EXPERIENCES 295

2. CARACTERISATION DES DEFAUTS PAR MICROSCOPIE ELECTRONIQUE 302
2.1. RESULTATS DES IMPLANTATIONS 302
2.2. OBSERVATION DE L'ECHANTILLON TEMOIN 304
2.3. OBSERVATION DES ECHANTILLONS IRRADIES 307

3. CARACTERISATION DES DEFAUTS PAR SPECTROSCOPIE RETRODIFFUSEE DE RUTHERFORD 309
3.1. CRISTAL HE 1 309
3.2 AUTRES CRISTAUX 312

4. CONCLUSION GENERALE 314

5. REFERENCES 315

Chapitre 5 : Apport des algorithmes d'apprentissage pour comprendre la dispersion des âges (U-Th-Sm)/He sur apatite

1. Introduction:

Comme l'article de Recanati et al. (2017) l'a montré, l'une des questions méthodologiques en suspens associées à la technique (U-Th-Sm)/He sur apatite est la détermination de l'ensemble des paramètres qui dispersent les âges AHe dans le nord du Trégor. Il est nécessaire de comprendre l'évolution des paramètres de diffusion d'un grain à l'autre pour connaître l'origine de la variation des âges AHe. Pourquoi certains cristaux retiennent-ils mieux l'hélium que d'autres ?

Ce qui est intéressant dans le cas du nord du Trégor est que tous les échantillons ont subi la même histoire thermique, étant à la même altitude et proches les uns des autres (Recanati et al., 2017). Ainsi, bien que l'histoire thermique joue un rôle déterminant, les variations des âges AHe dans le Trégor impliquent que le coefficient de diffusion n'est pas constant et que l'âge dépend d'autres paramètres que l'histoire thermique.

Comme on l'a déjà expliqué précédemment, plusieurs paramètres interviennent dans la rétention d'hélium par les apatites. Tout d'abord, la concentration en eU et la quantité de dommages peuvent être impliqués. D'autre part, la composition chimique du grain influe sur les modèles d'âge AHe. Les premiers modèles tiennent compte de la composition en Cl, mais le dernier modèle de Ketcham et al. (2015) et celui de Barbarand et al. (2001) prennent en compte la composition totale des grains. Cependant ces modèles étant liés à la cicatrisation

des traces de fission, on peut envisager que n'importe quel élément chimique ait une influence sur les âges AHe.

En raison du grand nombre de données et de paramètres à étudier, l'interprétation de la donnée thermochronologique AHe peut paraître complexe. Dans le chapitre 3, nous avons tracé des graphiques de l'âge (U-Th-Sm)/He sur apatite en fonction de chacun des paramètres afin de rechercher d'éventuelles corrélations. Néanmoins, les paramètres qui influencent l'âge AHe peuvent être multiples, et les variations des âges AHe observées dans le Trégor sont probablement liées à une combinaison de ces paramètres. L'utilisation de graphiques et de statistiques en 2D n'est donc pas suffisante.

L'analyse de données est une famille de méthodes statistiques multidimensionnelles (ou multivariées) qui aident à révéler des tendances au sein des données. Par exemple, à partir d'un jeu de données sur une population d'individus (âge, sexe, mode de vie, présence ou non d'une maladie spécifique), on peut savoir s'il existe une relation entre l'âge, le sexe, le mode de vie et la présence de la maladie. Plus précisément, on pourrait essayer d'inférer la probabilité d'avoir cette maladie en fonction des paramètres « âge », « sexe », et « mode de vie » (en pratique, il faudrait pouvoir mettre une valeur numérique sur le paramètre « mode de vie », mais cet exemple est uniquement illustratif). L'adjectif « multidimensionnel » signifie simplement qu'il y a plusieurs paramètres. Cette méthode permet de traiter un grand nombre de données, dépendant de multiples paramètres (Husson et al., 2009). L'exploration de données, ou « fouille de données », est une discipline à l'interface entre statistiques et informatique. Elle explore les relations entre une donnée et un ensemble de paramètres afin d'expliquer la donnée et d'en proposer un modèle (Larose, 2005 ; Tufféry, 2010).

Par exemple, si l'âge (U-Th-Sm)/He sur apatite ou le coefficient de diffusion dépendent d'une combinaison de paramètres chimiques et physiques décrivant les grains d'apatite, alors l'exploration de données pourrait permettre de déterminer cette combinaison

de paramètres et d'élaborer un nouveau modèle de diffusion qui prévoit mieux la dispersion des âges AHe. Le but de cette section est d'initier un travail à l'interface entre la thermochronologie AHe et les statistiques et l'informatique, afin de mieux comprendre la combinaison de paramètres qui est à l'origine de la dispersion des âges (U-Th-Sm)/He sur apatite dans le cas du Trégor. Pour cela, j'ai initié une collaboration avec Younès Bennani et Nistor Grozavu, du Laboratoire d'Informatique de l'Université Paris Nord (LIPN), dont une des spécialités est l'analyse et l'exploration de données.

2. Intérêt des méthodes d'exploration de données

Nous avons acquis dans le chapitre 3 un certain nombre de données sur les cristaux d'apatite du Trégor. Nous avons mesuré les dimensions de chaque grain, analysé la composition chimique des cations majeurs, mineurs, et traces, ainsi que de l'uranium, thorium, et samarium. A partir de la concentration en uranium, thorium, et samarium, nous avons estimé la concentration effective en uranium eU qui quantifie le taux d'endommagement des cristaux.

De nombreux paramètres peuvent entrer en jeu dans les variations des âges AHe. Le but de ce chapitre est de déterminer, par le biais des outils informatiques et statistiques, quels sont les paramètres ou la combinaison de paramètres qui influent majoritairement sur la quantité d'hélium présente dans les grains – et donc l'âge AHe - en plus de l'histoire thermique. Notamment, une question primordiale est la suivante : est-ce que la rétention de l'hélium dépend, ou non, de la composition chimique des grains ? Si oui, quels éléments jouent un rôle sur les variations de concentrations en hélium retenues dans les apatites ? Néanmoins, les liens de causalité ne pourront pas être envisagés avec cette approche statistique.

Dans la section précédente, nous avons simplement fait des graphiques en 2D entre l'âge AHe et chacun des paramètres (eU, chimie, taille des cristaux) afin de rechercher la présence d'éventuelles corrélations. Cependant, cette approche ne tient pas compte du fait qu'une combinaison de plusieurs paramètres peut jouer sur l'âge, sans qu'aucun paramètre pris individuellement ne permette de le déterminer. Il est alors possible qu'un graphique en 2D ne montre aucune corrélation car plusieurs paramètres jouent dans la dispersion. Il existe en statistiques des méthodes plus adaptées pour interpréter les données et expliquer les variations de rétention entre les grains.

Parmi les techniques que les informaticiens et statisticiens ont à leur disposition, nous avons utilisé les techniques d'apprentissage numérique (Smola et Vishwanathan, 2008 ; Murphy, 2012). Il existe deux types principaux d'apprentissage : l'apprentissage supervisé et l'apprentissage non supervisé (Murphy, 2012). Dans l'apprentissage supervisé, ou prédictif, on donne des connaissances sur un jeu de données d'apprentissage ainsi que la réponse à priori. Puis on demande à l'algorithme de prévoir la réponse pour une donnée quelconque dans un deuxième stade. L'apprentissage non supervisé, ou descriptif, ne prévoit pas de données de sorties : l'algorithme trouve des patterns ou des groupes de données homogènes (clusters) dans le tableau de données d'entrée. Il n'y a alors pas d'erreur associée, car il n'y a pas de prévision à comparer aux observations.

Nous allons par la suite nous intéresser uniquement aux techniques d'apprentissage supervisé, que nous avons utilisées pour prévoir la rétention d'hélium des grains. Ces techniques permettent de prédire une donnée à partir d'une série de paramètres, pourvu qu'on fournisse à l'algorithme un ensemble d'observations (incluant la « réponse », i.e. la donnée que l'on souhaite prédire et les paramètres). Elles sont utilisées par exemple en météorologie, pour prévoir la température. La base de l'apprentissage numérique est d'observer un jeu de données du passé, pour prévoir une donnée dans le futur. Par exemple, on peut prévoir la

température qu'il fera demain à 10h à Paris en mesurant plusieurs paramètres météorologiques P_1 à P_N (ex : pression atmosphérique, température de l'océan, vitesse du vent, etc…) et en renseignant la température, et les valeurs de ces paramètres météorologiques du dernier mois. Pour cela, l'algorithme découvre dans les données météorologiques du mois dernier une relation f entre la température et d'autres paramètres P_1 à P_N. Si on lui renseigne les valeurs P_1 à P_N qu'il y a aujourd'hui, il peut alors déterminer la température en appliquant cette relation f.

Prenons un exemple simple : la température à l'intérieur d'un bâtiment dépend de la température extérieure, de l'état (marche ou arrêt) des radiateurs, et de l'épaisseur des murs. Si je renseigne la température qu'il faisait tous les jours de la semaine dernière à l'intérieur du bâtiment, ainsi que des paramètres de contrôle (la température extérieure, l'état des radiateurs et l'épaisseur des murs), je peux alors trouver la fonction reliant cette température et les paramètres de contrôle (sans faire de modèle physique fondé sur l'expérience ou l'intuition humaine !). Si on me dit alors que demain le radiateur sera en marche, que l'épaisseur des murs sera de 10 cm, et qu'il fera 12°C dehors, je peux prévoir quelle sera la température intérieure.

Ces algorithmes sont également utilisés en informatique pour la reconnaissance d'images : l'ordinateur peut apprendre à reconnaître une image de chien si on lui renseigne un grand nombre d'images de chiens ainsi que d'autres images (figure V-1). Le but est de révéler les caractéristiques qui distinguent les chiens des « non-chiens », en lui indiquant quelles images sont des positifs (celles qui représentent bien un chien) et lesquelles sont des négatifs (qui ne contiennent pas de chien).

Les logiciels de reconnaissance faciale peuvent également à apprendre à reconnaître le visage de quelqu'un (figure V-2). On renseigne à priori plusieurs photographies de cette personne en lui disant qu'il s'agit bien de lui (et, également, des exemples négatifs comme

des photographies d'autres personnes, pour que l'algorithme apprenne les traits qui sont caractéristiques de la personne qui doit être détectée). Enfin, les méthodes d'apprentissage sont également utilisées pour filtrer les e-mails en spam ou non-spam.

Ces méthodes permettent notamment d'aller au-delà de la régression linéaire (qui postule *a priori* qu'il existe une relation linéaire entre la donnée d'intérêt et les paramètres et qui cherche à trouver la « pente » de la fonction linéaire qui correspond- en anglais, « fit » - le mieux aux données), et de trouver « automatiquement » un autre modèle de relation entre donnée et paramètre, potentiellement non linéaire.

Revenons au cas de la rétention de l'hélium dans les apatites. Soit Y la concentration d'hélium dans l'apatite, et soit n paramètres X_1 à X_n (dimensions des grains, eU, concentrations en cations). Soit $p \leq n$. S'il existe une fonction f telle que

$$Y=f(X_1, \dots, X_p)$$

Équation V-1: Fonction de prédiction f

alors un algorithme d'apprentissage est capable de trouver cette fonction f, pourvu qu'on lui fournisse suffisamment d'observations ($Y, X_1,\dots, X_n$), c'est à dire suffisamment de grains d'apatite. Dans la figure V-3, nous avons représenté uniquement 5 observations à priori, ce qui est bien entendu beaucoup trop faible. Dans le cas du Trégor, nous disposons de 35 observations sur des grains. Grâce à un tel algorithme, on peut prévoir la valeur de Y dans un grain à partir de la connaissance des paramètres X_1 à X_p, grâce au schéma d'apprentissage supervisé indiqué figure V-3.

Autrement dit, si l'on renseigne des exemples de valeurs de Y et des X_1 à X_n correspondants, les méthodes statistiques peuvent déterminer quels sont les paramètres qui jouent sur Y et quels sont ceux qui n'ont pas d'influence sur Y.

Figure V-1 : Exemple de problème d'apprentissage- chiens et non-chiens.

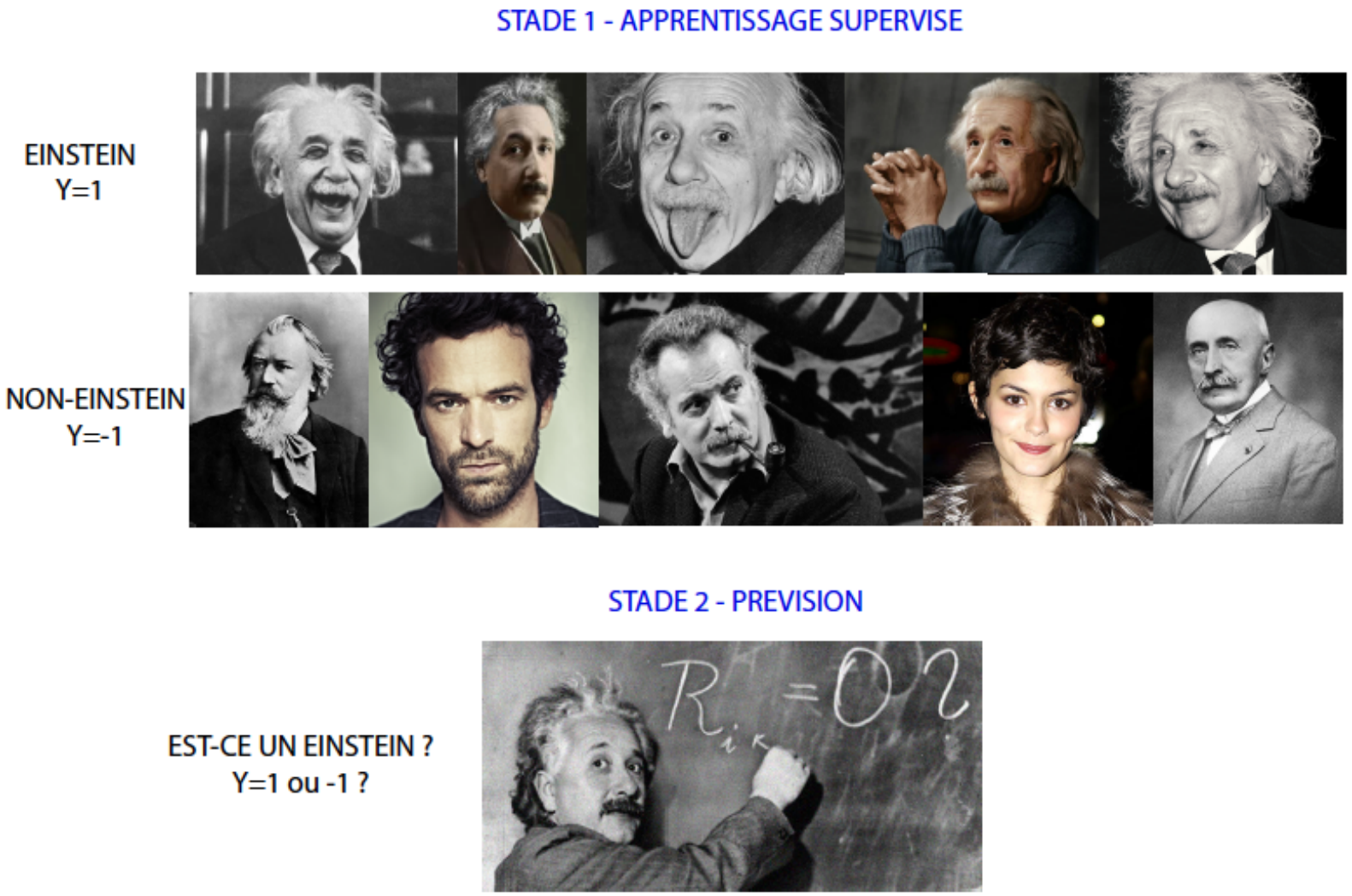


Figure V-2 : Exemple de problème d'apprentissage – reconnaître Einstein

Figure V-3 : Application à la thermochronométrie – Prévision de la rétention d'hélium

Ainsi, en trouvant f, l'algorithme peut également prévoir les valeurs que prendra Y si on lui renseigne les paramètres X_1 à X_n. On peut alors prévoir les valeurs de la rétention d'hélium à partir des uniques paramètres décrivant les grains (Stade 2, figure V-3).

Si au contraire, une telle fonction f n'existe pas - par exemple, si la rétention d'hélium ne dépend pas des paramètres que l'on a renseignés – alors l'algorithme d'apprentissage ne serait pas capable de prévoir les concentrations d'hélium Y à partir des paramètres X_1 à X_n. Cela nous donnerait une information intéressante : la concentration en hélium serait indépendante des dimensions des grains, de eU, et des concentrations en cations des apatites.

Les méthodes d'apprentissage numérique permettent ainsi non seulement de prévoir les rétentions d'hélium, mais également de classer les paramètres X_1 à X_p (ou une combinaison d'entre eux, par exemple $X_1+0.5*X_2$) par ordre d'influence sur la variable Y, et d'éliminer les paramètres X_p à X_n qui n'influent pas sur la rétention. Cela est extrêmement intéressant pour nous, thermochronologues, car à partir d'un jeu de données comme celui du Trégor, on va pouvoir déterminer quels sont les paramètres (taille de grains, eU, concentrations en cations) qui expliquent les variations de concentrations en hélium mesurées dans les apatites, et exclure certains paramètres qui n'auraient au contraire aucune influence. Les diagrammes 2D ne permettent pas cela, car la rétention est une fonction de multiples paramètres qui agissent en même temps.

Par ailleurs ces méthodes peuvent répondre à la question de l'influence de la composition chimique sur les âges AHe. En effet, en trouvant la fonction f et en classant les paramètres par ordre d'importance, l'algorithme pourra déterminer si la concentration en un cation influe ou non sur la rétention. Si c'est le cas, ce paramètre chimique sera dans les X_p paramètres les plus influents, sinon il n'apparaîtra pas dans f. Nous allons ainsi voir si les données chimiques permettent d'améliorer la prévision de la concentration d'hélium dans les apatites, ou si ces données n'ont aucune importance dans cette prévision. Le but de ce

chapitre 5 est donc de classer les paramètres par ordre d'influence sur la rétention d'hélium dans l'apatite, et de prévoir et donc d'expliquer la dispersion de ces rétentions pour chaque grain. Le nombre d'analyses, bien qu'un peu faible par rapport aux milliers de données que l'algorithme peut traiter, est néanmoins suffisant pour pouvoir interpréter les résultats des algorithmes.

3. Protocole et méthodes

3.1 Données d'entrée

	L	H	W	FT	Rs	... Radionucléides pères ...	eU	Th/U	... Chemical composition ...	He
Ap1										
Ap2										
. . .										
. . .										
Ap34										
Ap35										

Figure V-4 : Schéma de la matrice M des données d'entrée

Cette matrice comprend 35 lignes (une par apatite), et 30 colonnes. 19 colonnes correspondent à la composition chimique, et 4 colonnes à dimensions des grains, puis la dernière colonne (en jaune) est celle de la concentration en hélium. L'objectif est de trouver des relations entre la dernière colonne et les autres colonnes.

Pour cette étude, nous avons utilisé le jeu de données acquises sur le Tregor, présentées dans le chapitre 3. Les compositions chimiques des grains ont été déterminées (U-Th-Sm, majeurs, traces, y compris REE). Pour chaque cristal, la concentration effective en uranium a été calculée à partir des données U-Th-Sm. Par ailleurs, les dimensions des cristaux (longueur, largeur, épaisseur) ont été mesurées et le rayon équivalent des grains a été estimé ainsi que le facteur d'éjection F_T.

Ainsi, les données d'entrée sont réunies dans une matrice M caractérisant les 35 cristaux (un par ligne), et les 30 paramètres les décrivant (en colonnes) : 29 paramètres P_1 à P_{29} (n=29), plus une colonne liée à la concentration d'hélium analysée dans l'apatite (en nccSTP/g). Le but du chapitre est de prévoir cette dernière colonne en fonction des autres colonnes contenant les paramètres P_1 à P_{29}. Cette matrice d'entrée est représentée schématiquement figure V-4.

3.2 Algorithme de prédiction : arbres de régression et forêts aléatoires

Plusieurs méthodes d'apprentissage numérique existent, par exemple les réseaux de neurones (Hopfield, 1982), les arbres décisionnels (Quinlan, 1993), les statistiques bayésiennes (Lindley, 1965, 1972), etc… Notre objectif était de pouvoir classer les paramètres, et interpréter les résultats de l'algorithme pour expliquer la dispersion des capacités de rétention d'hélium des cristaux d'apatite. Les arbres décisionnels permettent d'interpréter les données, contrairement aux réseaux de neurones qui peuvent fournir de meilleures prédictions mais sans interprétation.

Nous avons donc choisi d'utiliser les arbres comme méthode de « prédiction » de la concentration en hélium. Il existe deux types d'arbres (Quinlan, 1993 ; Kohavi et Quinlan, 1999 ; Shalizi, 2006) : les arbres de régression (lorsque l'on souhaite prévoir une variable pouvant prendre n'importe quelle valeur réelle) et les arbres de classification (lorsque l'on

souhaite simplement distinguer deux classes, par exemple les images de « chiens » et « non-chiens »). Etant donné que la variable que nous souhaitons prévoir (la concentration en hélium) est une valeur numérique, l'arbre adapté à notre problème est l'arbre de régression. Un des modèles de régression les plus simple est celui de la régression linéaire. Si l'on choisit des variables multiples V_1 à V_p réunis dans un vecteur V, la régression linéaire postule qu'il existe, à une incertitude ε près, une relation linéaire entre la valeur de la concentration en hélium et les variables. Ce modèle de régression est le plus connu :

$$Y = \beta_0 + \beta^T V + \varepsilon$$

Équation V-2: Relation linéaire

Le bruit ε peut-être dû aux incertitudes expérimentales, ou simplement tenir compte du fait que le modèle linéaire n'est qu'une approximation dominante d'une loi plus complexe. Le vecteur β et le décalage ou offset β_0 sont des coefficients de cette relation de linéarité (en 2D, β serait un nombre au lieu d'un vecteur, qui correspondrait à la pente de la relation linéaire entre deux variables, et β_0, « l'ordonnée à l'origine »). Faire la régression linéaire à partir de nos données reviendrait à chercher le vecteur de coefficients β qui correspond le mieux aux observations, c'est-à-dire celui qui minimise l'erreur moyenne $(Y-[\beta_0+ \beta^T V])$ sur les échantillons présents dans notre matrice.

Il n'y a pas nécessairement de relation linéaire entre la rétention d'hélium et les paramètres P_1 à P_{29}, mais les arbres de régression permettent de trouver des lois non linéaires. Cette loi n'a pas nécessairement de formulation explicite (contrairement à la relation linéaire): il peut s'agir d'une séquence d'instructions, présentée sous forme d'arbre (d'où le nom), par exemple, « si la valeur de V_1 est supérieure à 5, regarder la valeur de V_2 », et ainsi de suite. Avec une telle instruction, que V_1 valle 5.1 ou 1000, la réponse sera la même, ce qui n'est évidemment pas vrai pour une relation linéaire.

Un arbre de régression correspond à une séquence d'instructions, dont l'instruction suivante dépend de la réponse à la question précédente. Il peut être représenté graphiquement par un arbre, on parle alors de feuilles, reliées à des nœuds par des branches. La lecture de l'arbre commence par le nœud terminal. A chaque feuille, une question est posée sur l'un des paramètres. En fonction de la réponse à la question, la lecture de l'arbre se poursuit soit sur la feuille de droite soit sur celle de gauche. A la fin de l'arbre, sur les feuilles terminales, se trouvent les résultats des prévisions. Prenons un exemple concret sur un arbre à 7 feuilles, représenté sur la figure V-5 ci-après.

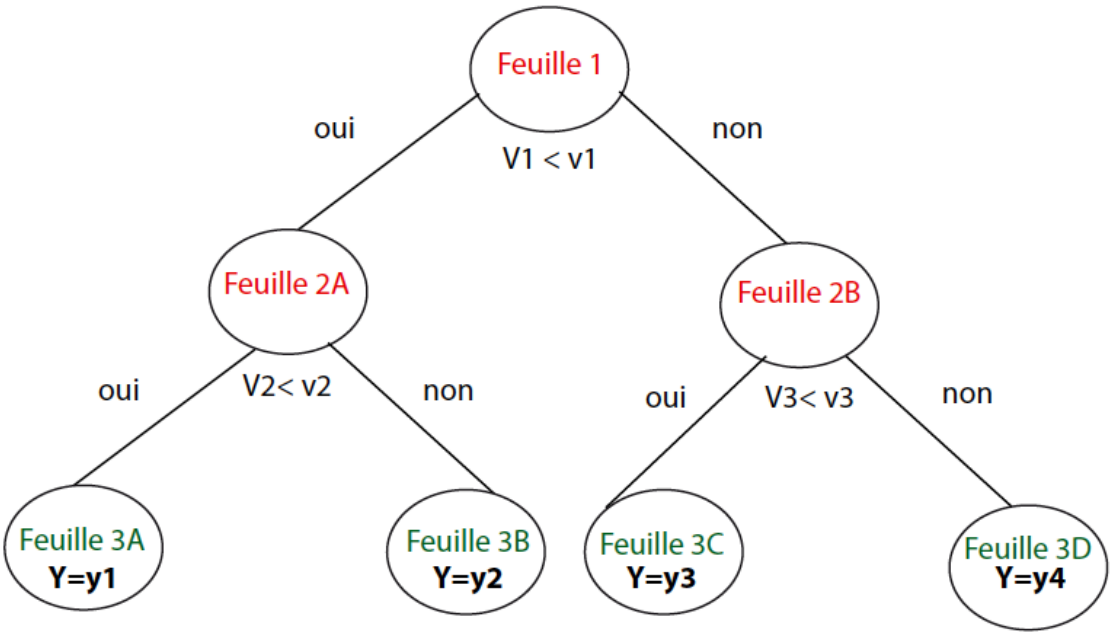


Figure V-5: Exemple théorique d'arbre

Cet arbre contient 7 feuilles, réparties en 3 niveaux. Sur la feuille 1, la question porte sur le paramètre V1 : s'il est plus petit que la valeur v1 alors l'on doit suivre la branche de gauche et aller vers la feuille 2A. Sinon, l'on doit prendre la branche de droite et aller vers la feuille 2B. Les paramètres expliquant la variable Y sont V1, V2, et V3, et V1 est le plus influent. Les prédictions sont indiquées en gras dans les feuilles terminales (feuilles vertes, du niveau 3). Par exemple, si V1<v1 et V2<v2, alors la prédiction est indiquée sur la feuille 3A : Y=y1.

La lecture de cet arbre débute par le nœud terminal, c'est-à-dire la feuille 1 en haut de l'arbre. L'arbre suggère que la variable qui influe le plus sur Y est la variable V1 indiquée sur la feuille 1. L'arbre sépare les données en deux sous-groupes selon la valeur de V1 : si V1<v1, où v1 est un seuil déterminé, par exemple v1=5 (dans la suite on utilise les minuscules pour les valeurs fixes, et les majuscules pour les variables), alors la donnée est dans le sous-groupe de gauche, feuille 2A. Si V1≥v1, alors la donnée appartient au sous-groupe de droite, feuille 2B. Sur les feuilles du niveau 2, l'arbre sépare à nouveau les données, en 4 sous-groupes différents selon la valeur des variables V2 et V3. Les prédictions de Y sont indiquées dans le dernier niveau de feuille (feuilles vertes). Prenons un exemple simple. Si la variable V1 <v1 et V2<v2, alors l'arbre prévoit que Y=y1 (c'est indiqué feuille 3A).

Prenons un exemple concret d'arbre de décision pour mieux comprendre l'utilisation ou la lecture d'un tel arbre : on souhaite programmer un radiateur électrique afin qu'il chauffe lorsqu'il fait moins de 20°C la nuit jusqu'à 9h du matin, et lorsqu'il fait moins de 15°C la journée (après 9h du matin). Soit V1=t la variable temps, avec des valeurs entre 0 et 24 h. Soit V2=V3=T la variable température, avec des valeurs comprises entre -15 et 40 °C. Soit Y la variable de commande du radiateur = 0 si le radiateur doit être éteint et 1 si le radiateur doit être allumé. La figure V-6 représente un arbre de décision pour prédire Y (et donc décider si le radiateur doit être allumé ou éteint). Dans cet arbre, je suggère que la variable contrôlant l'état du radiateur est jour/nuit, puis le thermostat est indiqué dans les feuilles 2A et 2B (20°C si c'est le jour, 15°C si c'est la nuit). La valeur prédite est Y : elle vaut 1 soit si c'est la nuit sous 20°C (feuille 3A), soit si c'est le jour sous 15°C (feuille 3C).

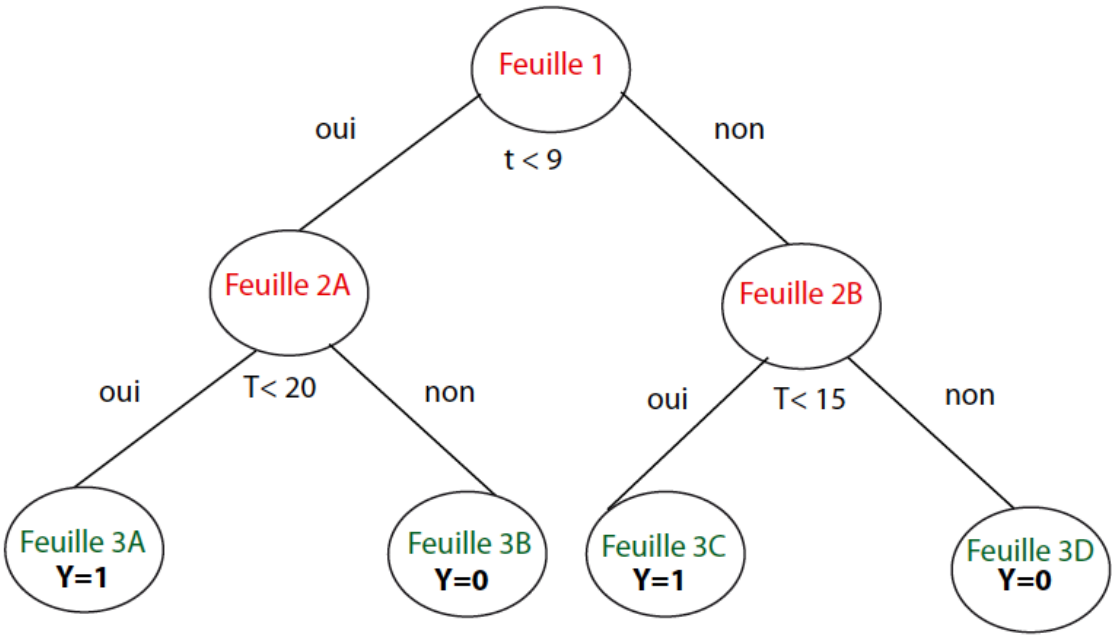


Figure V-6 : Exemple pratique d'arbre

S'il est moins de 9h (c'est la nuit), alors l'on doit aller feuille 2A. Si la température T est inférieure à 20°C il faut aller en feuille 3A : l'arbre prédit que Y=1 (il faut allumer le radiateur). Sinon, l'arbre prédit d'aller en feuille 3B où Y=0 : il faut éteindre le radiateur. Si c'est le jour on va en feuille 2B, où le thermostat est passé à 15°C.

Remarquez que l'arbre de prédiction du radiateur n'est pas unique. Voici ci-dessous dans la figure V-7 un autre arbre qui explique tout autant l'état du radiateur. Dans ce deuxième arbre, ma première variable est la température : si elle est en dessous de 15°C il faut allumer le radiateur (feuille 2A). Sinon, si elle est au dessus de 20°C il faut éteindre le radiateur (feuille 3D). Si la température est entre 15 et 20°C (feuille 3C), alors intervient la variable temps : le chauffage n'a lieu que la nuit.

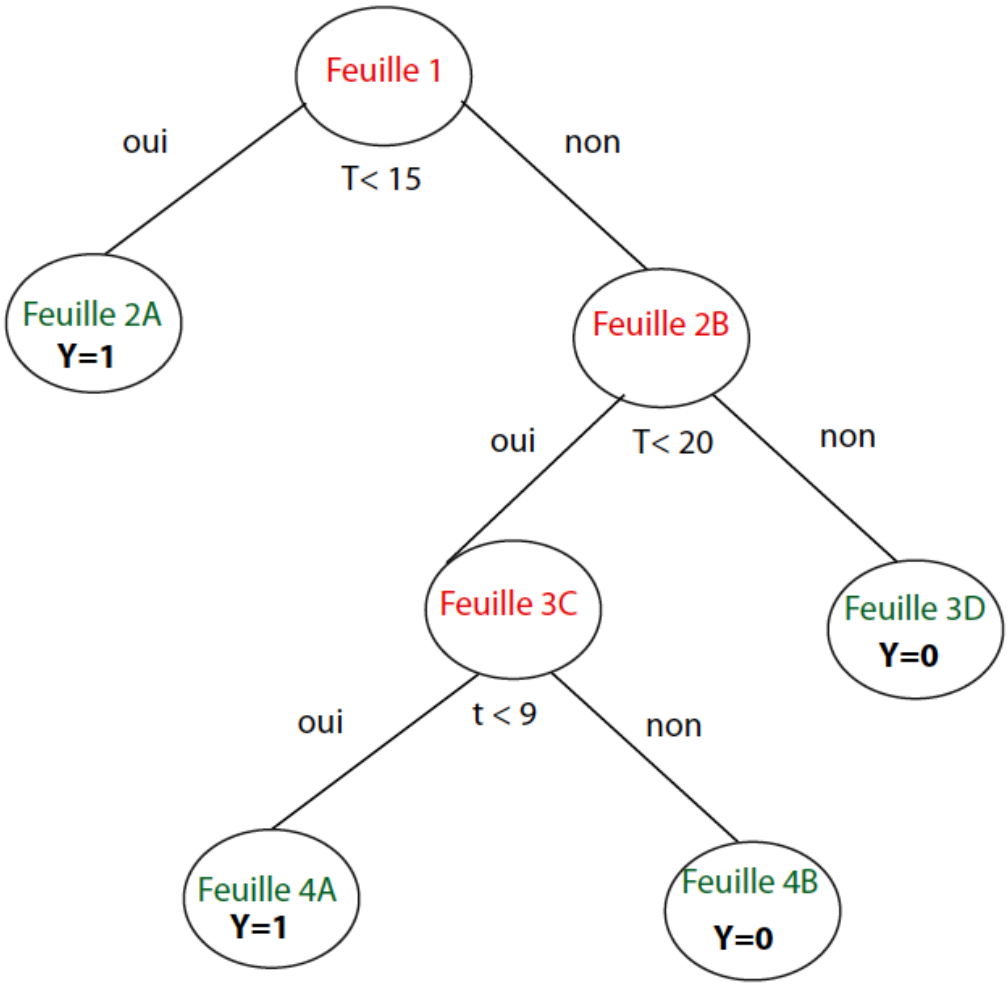


Figure V-7 : Deuxième exemple pratique d'arbre

S'il fait moins de 15°C (feuille 2A) ou s'il fait entre 15 et 20°C et que c'est la nuit (feuille 4A), alors Y=1 : le radiateur doit s'allumer. S'il fait plus de 20°C (feuille 3D) ou qu'il fait entre 15 et 20°C le jour (feuille 4B), alors le radiateur doit être éteint Y=0. Cet arbre montre que l'arbre de prédiction des données n'est pas unique.

On peut également échanger la question T<20 et t<9. Il peut donc y avoir plusieurs arbres qui aboutissent aux mêmes résultats. Dans cet exemple, nous avons vu des arbres qui permettent d'exprimer une consigne que nous connaissions déjà. Dans le cas de l'apprentissage automatique, la situation (certes, un peu absurde) serait celle où nous avons accès à un ensemble de relevé de valeurs de températures, d'horaires, et de de mesures booléennes indiquant si le radiateur était en marche à ce moment là ou pas, et nous

souhaiterions retrouver la consigne (qui sera donnée sous la forme d'un arbre). Nous ne savons donc pas *a priori* que les seuils intéressants pour la température sont de 15°C et 20°C, et nous voudrions tester en parallèle plusieurs seuils possibles, donnant lieu à plusieurs arbres, et retenir celui qui donne en pratique la meilleure prédiction (c'est-à-dire l'arbre qui revient à au même comportement que la consigne qui est programmée dans le radiateur). Par ailleurs, il se peut qu'un arbre donne dans l'ensemble une bonne prédiction (ou ici, une bonne consigne), mais qu'il ait un biais. Par exemple, s'il donne systématiquement la bonne consigne lorsque nous sommes la nuit (t<9), mais se trompe parfois lorsque nous sommes le jour (t>9). C'est pourquoi, afin que les prédictions soient les plus robustes possibles, on utilise ce que les informaticiens-statisticiens appellent des « forêts aléatoires ». C'est-à-dire que l'on génère un grand nombre d'arbres (100 par exemple), et l'on fait une moyenne pondérée des résultats de prédictions afin d'avoir une estimation plus robuste de la variable à prédire Y.

Par ailleurs, imaginons qu'on ajoute maintenant d'autres variables au problème, qui n'aient rien à voir avec l'état du radiateur. Par exemple, soit V_4= la date d'anniversaire de mon frère et V_5= le prix d'une place de cinéma. Ces deux variables ne jouent pas sur la prévision de l'état du radiateur (Y=0 ou 1). Seuls t et T jouent. Les arbres de prédictions possibles (figures V-6 et V-7) ne font pas apparaître les variables V_4 et V_5. Des arbres faisant intervenir V_4 et V_5 seraient plus complexes (car ils ont plus de feuilles) mais aboutiraient au même résultat. L'algorithme de forêts aléatoires ne retiendra pas de tels arbres (plus complexes, sans amélioration de la prédiction). Ainsi l'utilisation de l'arbre permet de trouver quelles variables jouent et lesquelles n'ont rien à voir avec la donnée à prévoir. Dans l'arbre figure V-6, on considère que la variable primordiale est le temps (le jour le radiateur fonctionne différemment que la nuit). Dans l'arbre figure V-7 on considère que la variable la plus importante est la température (en-dessous de 15 on chauffe, au-dessus de 20 on éteint le radiateur).

Revenons au problème de la rétention d'hélium. Le paramètre Y à prévoir est la concentration d'hélium dans les grains. Au lieu de prendre deux valeurs (0 ou 1) comme dans le cas du radiateur, il prend des valeurs réelles entre 0 et 300 Ma. La prévision se fait par une régression multiple non linéaire à partir des autres variables : P_1 à P_{29}. Nous avons décidé de faire une forêt d'arbres décisionnels (Tim Kam, 1998 ; Breiman, 2001) qui prédit la concentration d'hélium Y à partir des autres paramètres P_1 à P_{29}. Cette forêt permettra de classer les paramètres en fonction de leur importance dans l'explication de la dispersion des concentrations d'hélium Y. Comme dans le cas du radiateur, on pourra dire que les variables qui arrivent en tête de l'arbre (le temps et la température dans le cas du radiateur) jouent un rôle important dans la rétention d'hélium. Au contraire, les variables qui ne sont pas liées à la rétention d'hélium dans l'apatite n'apparaîtront pas dans les arbres (comme V_4 et V_5 dans le cas du radiateur). Nous pourrons ainsi déterminer si les paramètres chimiques ont ou non une influence sur la rétention d'hélium dans l'apatite, et si cette influence est plus ou moins importante que celle des autres paramètres.

3.3 Logiciel Knime et algorithmes utilisés

Knime, Konstanz information miner, est un logiciel libre développé par l'université de Constance (Allemagne). Il intègre tous les modules du logiciel Weka (Holmes et al., 1994 ; Witten et al., 2011) créé par l'université de Waikato (Nouvelle Zélande). Il comprend une succession d'algorithmes d'apprentissage automatique et de fouille de données, que l'on peut adjoindre les uns après les autres comme des pièces de lego sans avoir à tout reprogrammer. C'est donc très pratique pour effectuer une série de tâches informatiques via un logiciel, car tous les modules ont déjà été codés, et tout se fait via une interface graphique pédagogique et compréhensible.

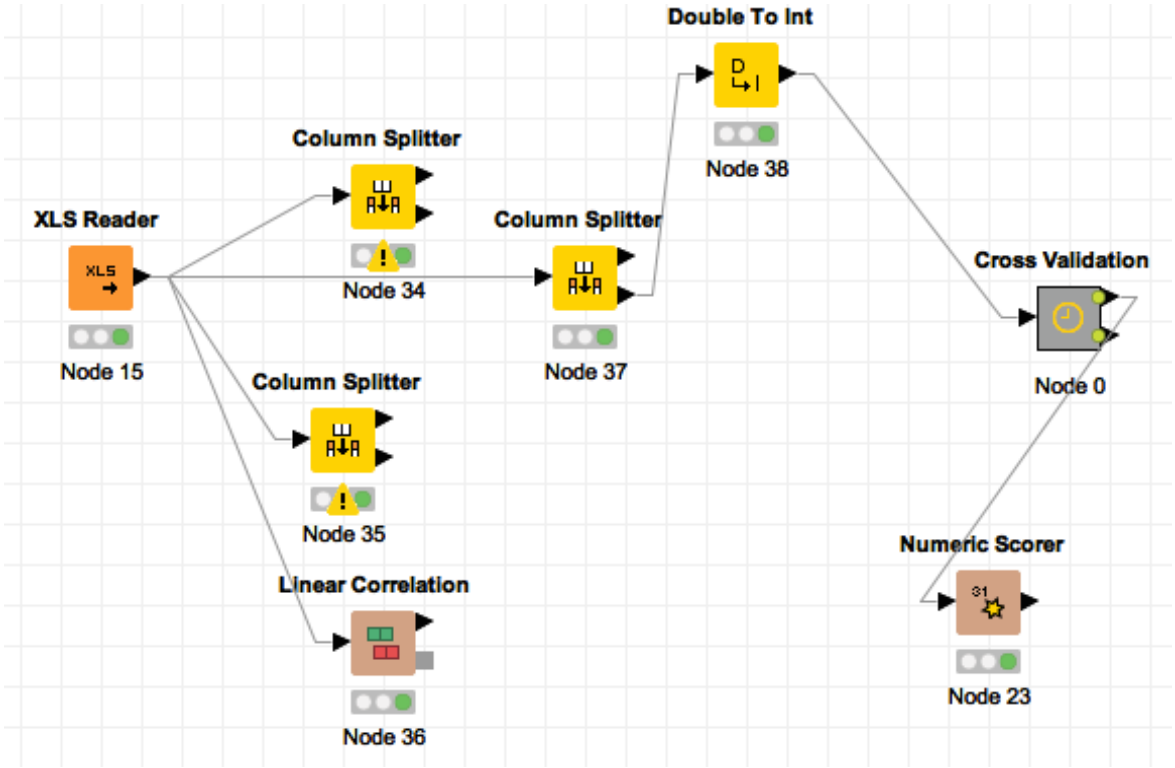


Figure V-8 : Interface graphique de knime

L'interface graphique est constituée d'une série de nœuds (les boîtes rectangulaires), séparés par des flèches. Pour comprendre la procédure suivie par l'algorithme l'on suit les flèches. Ici, on démarre par le XLS reader pour lire la matrice en fichier excel. Puis on arrive au nœud 37 (column splitter) pour exclure certaines colonnes, le nœud 38 (double to int) pour enlever les chiffres après la virgule, le nœud 0 (cross validation) qui effectue l'apprentissage et construit le modèle par itération sur un sous-groupe de données et le teste sur un échantillon. Enfin, le nœud 23 (numeric scorer) indique les statistiques de réussite de la prédiction de la forêt.

Dans le cadre de notre étude nous avons utilisé plusieurs modules, assemblés par des « nœuds » (voir figure V-8). Le premier nœud « XLS reader » permet de lire la matrice d'entrée sous format excel. Le deuxième nœud « column splitter » permet d'exclure certaines colonnes de la matrice (et donc d'exclure certains paramètres de l'analyse). Nous avons ajouté un nœud « double to int » qui convertit les données de double (chiffres à virgule) en entiers, car nous souhaitons que les concentrations soient des entiers en l'absence d'une précision suffisante. Le quatrième nœud « validation croisée » est la méthode qui permet de construire les arbres et la forêt aléatoire. Enfin, le dernier nœud est le « numeric scorer », qui permet de

visualier les statistiques des prédictions de la forêt aléatoire : la moyenne des valeurs absolues des erreurs, la moyenne des carrés des erreurs, et la moyenne des erreurs.

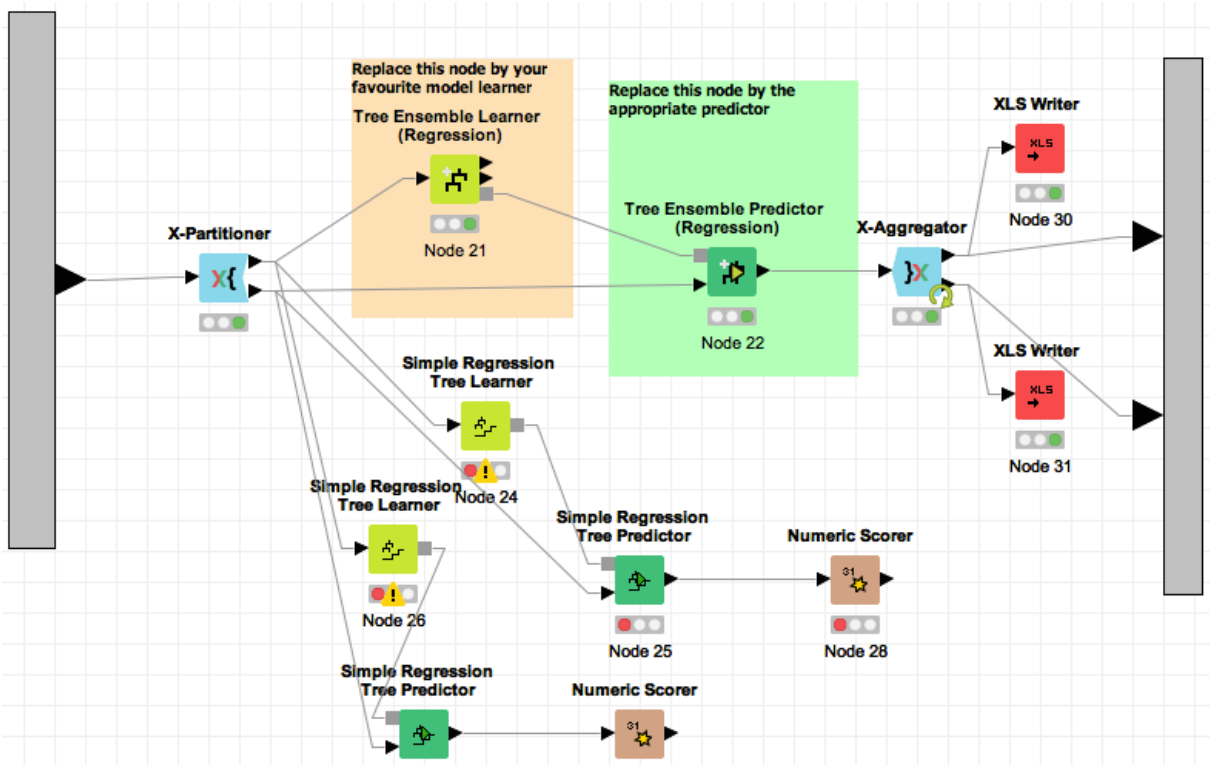


Figure V-9 : Détail du nœud de validation croisée

La boucle est formée du X-partitioner suivi du nœud 21 qui crée la forêt d'arbres prédictifs, du nœud 22 qui prédit le résultat à partir de tous les arbres, et le X-aggregator qui collecte ces résultats. Suit le XLS writer qui écrit les résultats dans un fichier excel. Tous les nœuds en bas (24 à 28) sont des modèles de régression simple que l'on a voulu tester.

Le nœud de validation croisée est en détail une boucle itérative, constituée elle-même d'une série de nœuds (voir figure V-9). Le premier nœud est le « X-partitioner », qui démarre la boucle d'itération. Nous avons choisi l'option « leave one out » : l'algorithme apprend sur 34 grains (tous sauf 1) dont il connaît à la fois la variable à prédire et les autres paramètres. Il construit un modèle, qu'il teste ensuite sur un grain dont il ne connaît pas la variable à prédire, et compare ses résultats aux observations. Ceci est réitéré 35 fois (le nombre de grains). Puis, le nœud 21 est l'algorithme d'apprentissage : il construit une forêt de N arbres de régression (nous avons choisi arbitrairement N=1000). Nous avons choisi comme

algorithme de création d'arbre l'algorithme C4.5, publié par Ross Quinlan (Quinlan, 1986). Ce nœud est suivi du nœud 22 : le prédicteur. Il permet d'effectuer une prévision à partir des 1000 arbres du nœud précédent. Enfin, la boucle est terminée par le nœud « X-aggregator », qui collecte les résultats, visibles sous forme d'un tableau de prédiction contenant les résultats observés, les résultats prédits, ainsi qu'un tableau des erreurs. Nous avons relié ce nœud à un « XLS writer », qui écrit les résultats dans un ficher excel, afin de pouvoir dessiner des graphiques plus simples à lire.

Par souci de clarté et de vulgarisation des résultats, nous ne montrerons pas les arbres prédictifs dans la section suivante mais nous les décrirons, et indiquerons les résultats des prédictions de la forêt d'arbres sous forme de graphiques en 2D. L'erreur pourra ainsi être appréciée visuellement en comparant les prédictions et les observations.

4. Résultats

4.1 : Forêt aléatoire et résultats des prédictions

Nous avons construit une forêt aléatoire constituée de 1000 arbres prédictifs à partir de l'ensemble des données d'entrée. Le résultat de la forêt est un tableau de prédiction, indiquant les âges prédits et la variance associée. L'erreur de prédiction peut donc être calculée pour chaque grain (=prédiction-observation). Si cette erreur est faible, alors cela signifie que l'apprentissage est réussi. Cela indique que les paramètres d'entrée sont suffisants pour expliquer la dispersion des données. Dans le cas contraire, la forêt n'a pas réussi à apprendre. Cela voudrait dire que les paramètres d'entrées ne permettent pas de déterminer la rétention d'hélium dans les apatites.

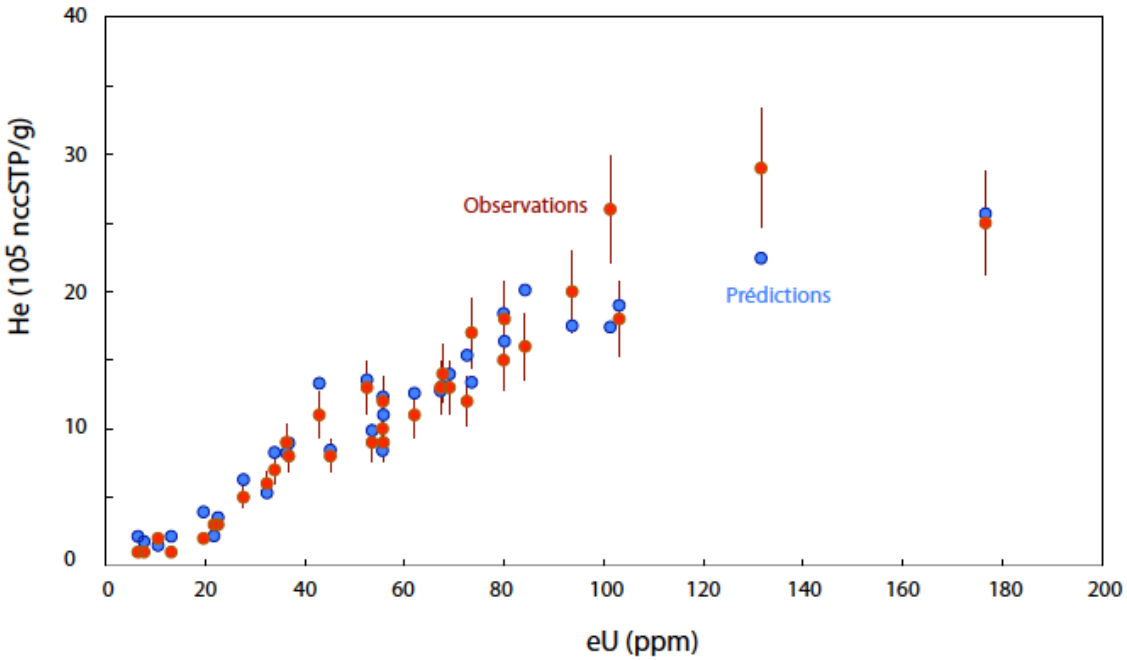


Figure V-10 : Résultats de prédiction de la forêt aléatoire

Les points rouges sont les données obtenues pour chaque cristal daté. L'erreur analytique représentée à titre informatif est de 15%, ce qui est plus élevé que l'erreur analytique qui est de 2%. Les prédictions en bleus sont les résultats de la forêt aléatoire. Comme on peut le voir, ils sont relativement proches des points rouges (erreur de -8 à 3 10^5 nccSTP/g. Cela signifie que l'apprentissage a bien fonctionné : le modèle reproduit bien les observations.

La figure V-10 présente les résultats de prédiction de la forêt comparés aux observations, représentées en fonction de l'eU. Les prédictions sont satisfaisantes : les erreurs de prédiction vont de -8×10^5 à $+3 \times 10^5$ nccSTP/g. A l'exception des quelques grains à fort eU (>100 ppm), la valeur de la prédiction est proche de la barre d'erreur analytique associée à l'observation. Ainsi, la forêt aléatoire arrive bien à modéliser les observations.

Concrètement, cela signifie que les paramètres d'entrées (dimensions des grains, concentrations des radionucléides pères, chimie des cations) permettent à eux seuls d'expliquer les variations de la concentration d'hélium retenue dans le grain d'apatite. Ainsi, nous pouvons déduire de cette première forêt que les paramètres d'entrée jouent dans la rétention. Cette figure V-10 montre également qu'il n'est pas nécessaire d'ajouter d'autres

paramètres, comme la concentration en anions (Cl, F, OH) par exemple, pour pouvoir comprendre les variations de rétention en hélium des grains. Si un tel paramètre avait une influence sur la dispersion, alors il n'aurait pas été possible de prédire les concentrations d'hélium comme sur la figure V-10. Ainsi, selon notre étude, il est peu probable que la concentration en anions joue sur la rétention. De toute façon, cette concentration est constante dans le pluton de Ploumanac'h, et n'aurait donc pas pu expliquer les variations d'âge mesuré.

4.2 : Arbres prédictifs : quelle est l'influence de la chimie ?

En plus de prédire l'âge AHe, les arbres prédictifs servent à classer les paramètres d'entrée dans l'ordre de leur influence respective sur l'âge AHe. Les paramètres présents dans les feuilles des premiers niveaux (proches du nœud terminal) ont plus d'influence sur la dispersion des concentrations en hélium que les paramètres indiqués plus bas dans l'arbre de prédiction. Sont éliminés de l'arbre les paramètres qui n'ont rien à voir avec le problème (par exemple dans le cas du radiateur, les variables V4 et V5).

Si l'on regarde plus attentivement les mille arbres qui constituent la forêt, on s'aperçoit que les radionucléides pères (U, Th, Sm, et donc le eU) arrivent en première position dans l'arbre, et occupent les premiers niveaux de feuilles. Ce résultat était attendu et cohérent avec nos connaissances thermochronométriques. Ne pouvant pas représenter ici les mille arbres de la forêt, j'en présente un seul, qui montre que les radionucléides pères sont en première position. La lecture d'un arbre n'étant pas usuelle en sciences de la Terre, détaillons d'abord les 2 premiers niveaux de feuilles de l'abre (figure V-11). L'arbre sépare l'ensemble des grains en deux sous-groupes, de façon à ce que ces groupes soient le plus homogène possible. La condition et le seuil utilisés (U<28 ppm) minimisent l'erreur de prévision dans chacun des sous-groupes. Ainsi, dans l'arbre présenté figure V-12, la première feuille sépare l'ensemble

des grains selon leur concentration en U. Les feuilles 2A et 2B constituent les deux sous-groupes de grains. Puis, l'arbre réitère cette procédure sur chaque sous-groupe.

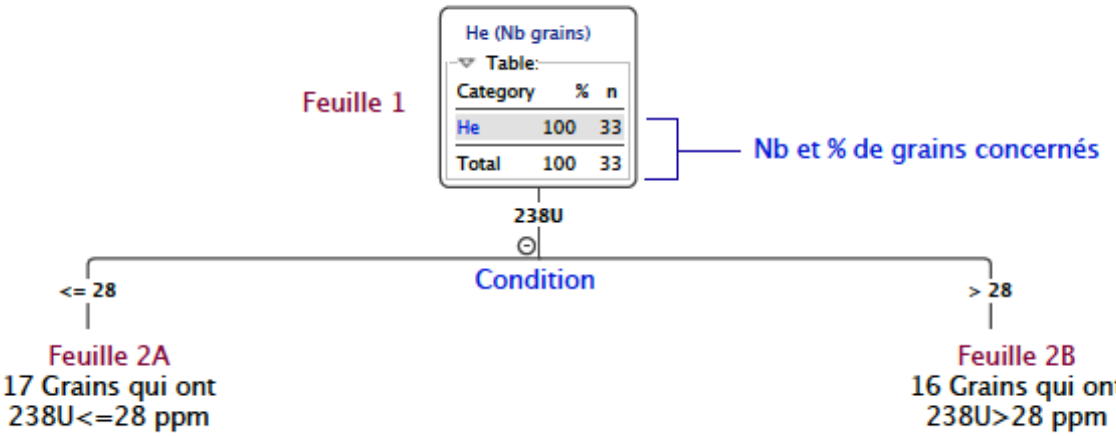


Figure V-11 : Deux premiers niveaux de feuilles d'un arbre de la forêt.

Sur la première feuille, tous les grains (33=100%) sont représentés. Puis ils sont divisés en deux sous-groupes (feuilles 2A et 2B) selon leur concentration en uranium. Ces deux sous-groupes sont le plus homogène possible et minimisent l'erreur de prédiction.

A la fin de l'arbre, les dernières feuilles contiennent des groupes de 2 ou 3 grains, sur lesquels est effectuée la prévision de la concentration d'hélium (feuilles vertes figure V-12). Cette concentration prédite est calculée selon la série de conditions (indiquées dans chaque feuille), et varie donc d'un grain à l'autre. L'arbre complet contient 6 niveaux de feuilles. Ne pouvant pas présenter l'ensemble de l'arbre pour des raisons de place et de lisibilité, la figure V-12 représente les quatre premiers niveaux de feuilles. Ce sont ces trois premiers niveaux qui ont le plus d'importance pour expliquer la rétention de l'hélium.

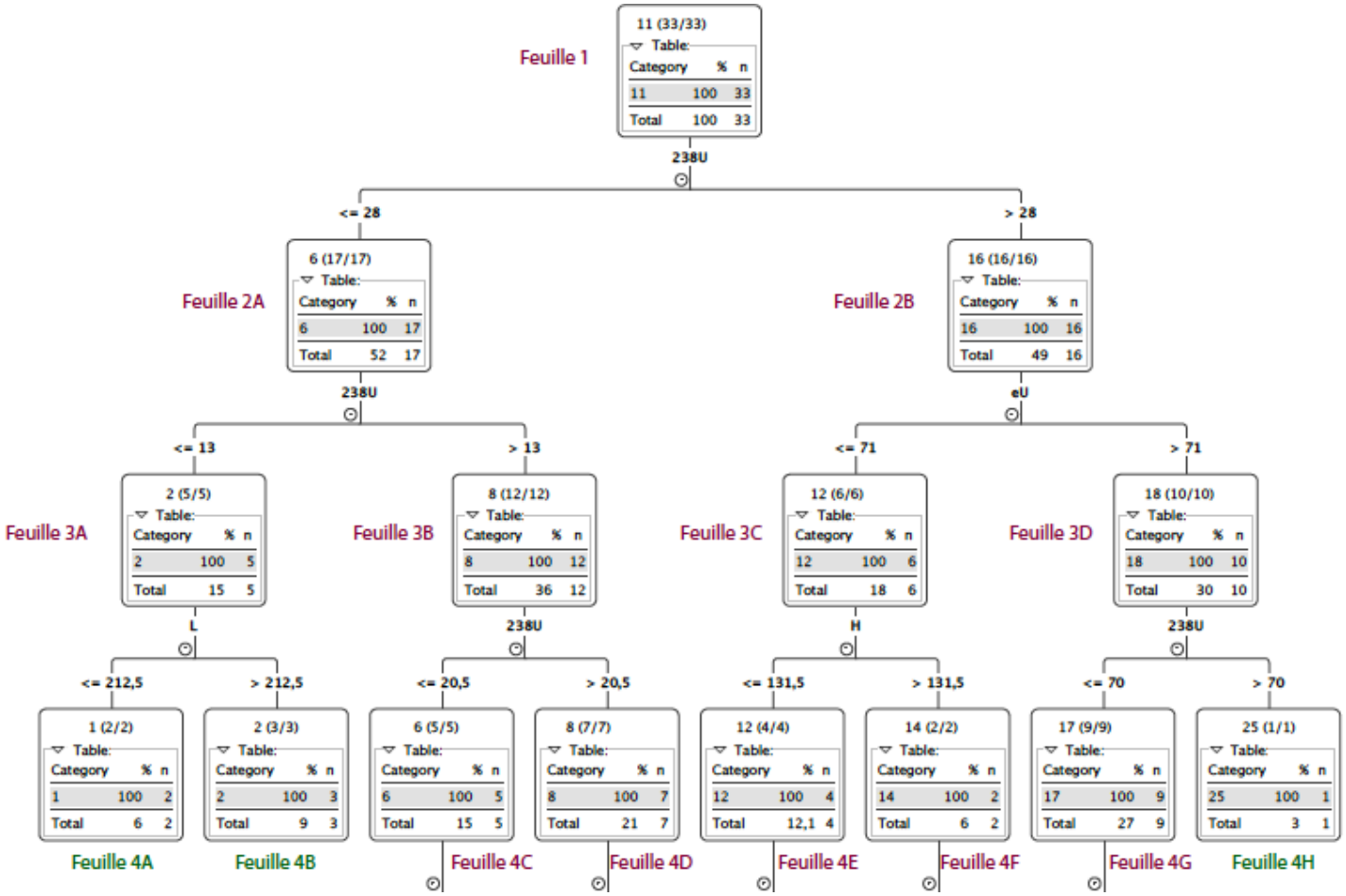


Figure V-12 : Détail des quatre premiers niveaux de feuilles d'un arbre de la forêt

La première feuille contient tous les grains (33 ici, =100%) utilisés pour la validation croisée. L'arbre sépare ces grains en deux groupes homogènes entre eux selon une condition : ici U < à 28 ppm. Chacun des groupes se situe dans une feuille et suivra sa propre procédure de prévision.

L'arbre présenté figure V-12 montre que les paramètres les plus importants pour expliquer la concentration d'hélium dans les grains sont la concentration en uranium, le eU. Puis, les dimensions des grains (L et H) apparaissent dans le troisième niveau de feuilles. La rétention d'hélium est donc expliquée par la production d'hélium radiogénique par les éléments pères essentiellement. Les dimensions des grains jouent relativement peu sur la rétentivité.

Nous nous attendions à ce que les radionucléides pères arrivent en première position. Néanmoins, le résultat intéressant de notre étude est que les compositions chimiques sont généralement éliminées des arbres. Dans l'arbre précédent, seule la concentration en barium arrive, au cinquième niveau de feuilles. Cela signifie que les paramètres chimiques n'influent pas sur la rétention d'hélium. Ainsi, la rétentivité en hélium ne dépend pas de la composition chimique des apatites. Cela répond à la question initiale, de savoir quel rôle a la chimie sur la capacité de rétention en hélium des grains. Ici, nous observons que la quantité d'hélium retenue dans les cristaux d'apatite n'est pas liée à leur chimie en cations. La concentration d'hélium est une fonction f (radionucléides pères, géométrie des grains), indépendante de la composition chimique.

Pour le confirmer nous avons fait deux tests afin de voir si la chimie influence la prédiction :

(i) nous avons fait une forêt d'arbres sans utiliser les paramètres chimiques,

(ii) nous avons réalisé également une forêt d'arbres en utilisant uniquement la chimie (sans radionucléides pères, ni dimensions des grains).

Les résultats sont présentés figure V-13, et les erreurs associées sont compilées dans la tableau V-1. Si l'on n'utilise pas les données chimiques, la prévision reste bonne et donne la même erreur moyenne que si l'on avait utilisé ces paramètres (erreur de 11 x 10^5 nccSTP/g,

voir tableau V-1). Ainsi, sur la figure V-13 les prévisions sont proches des observations. Cela indique que les données de composition chimique n'apportent pas d'information sur la dispersion des rétentivités, par rapport aux données de concentrations des radionucléides pères (du moins dans la large classe de modèle explorée par les forêts aléatoires). Ainsi, les variations de rétentivité d'hélium sont liées à des variations de contenus en U, Th, Sm, mais pas à des variations en Sr, Mn, REE.

	Erreur moyenne (10^5 nccSTP)
Sans Dimensions	7
Uniquement pères	8
Tous paramètres	11
Sans chimie	12
Uniquement chimie	60
Uniquement dimensions	146

Tableau V-1: Erreurs moyennes des prédictions

Ce tableau représente les statistiques (erreurs moyennes) associées aux prédictions effectuées en utilisant tout ou partie de la matrice d'entrée. Les meilleures prévisions sont celles utilisant les radionucléides pères (et éventuellement la chimie). La chimie seule, ou les dimensions seules ne permettent pas un apprentissage correct car les erreurs sont beaucoup plus élevées. Ainsi, la rétention d'hélium n'est pas expliquée par la chimie et les dimensions des grains.

Si l'on utilisait uniquement les données chimiques, à l'exception des concentrations en radionucléides pères, alors les prédictions seraient nettement moins bonnes. L'erreur de prédiction grandirait jusqu'à 60 x 10^5 nccSTP (voir tableau V-1), et comme on le voit sur la

figure V-13, les données prédites seraient éloignées des observations. Cela indique que l'algorithme ne réussit pas l'apprentissage si on utilise comme données d'entrée les compositions en cations. Ainsi, les données des radionucléides pères et les dimensions des grains sont primordiales pour prévoir la dispersion des âges. Les données chimiques à elles seules ne peuvent pas expliquer les variations de rétentivité.

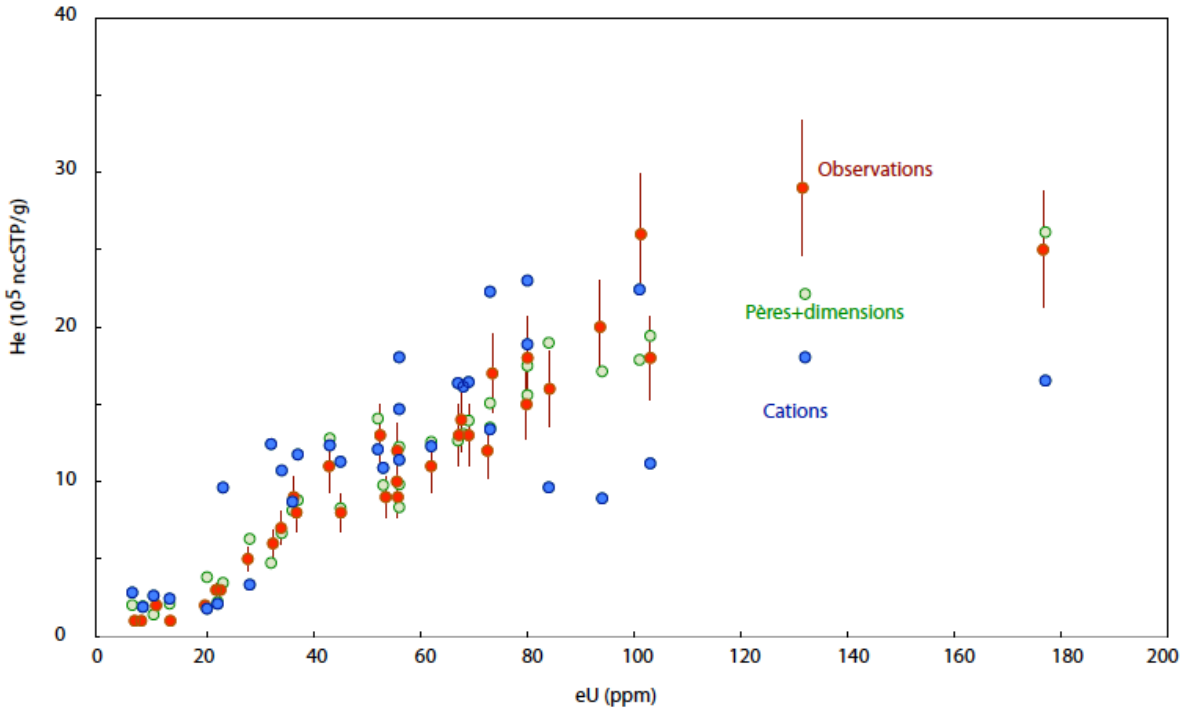


Figure V-13: Résultats de prédiction en éliminant certains paramètres

Les points rouges sont les mesures effectuées sur les apatites. L'erreur analytique représentée à titre informatif est de 15%. Les prédictions en bleu sont les résultats de la forêt aléatoire lancée avec uniquement les compositions en cations. Comme on peut le voir, ils sont relativement éloignés des points rouges (erreur supérieure aux erreurs analytiques. Cela signifie que les compositions en cations ne sont pas suffisantes pour prévoir la concentration en hélium. Au contraire, les points verts sont proches des points rouges. Ces points verts correspondent aux résultats d'une forêt aléatoire réalisée sans les données de chimie. Donc ce sont les concentrations des pères et les dimensions des grains qui contrôlent au premier ordre la rétention d'hélium.

4.3 : Arbres prédictifs : quelle est l'influence de la géométrie des cristaux ?

Dans la forêt d'arbres, les concentrations des radionucléides pères arrivent dans les premiers niveaux de feuilles car ils jouent un rôle primordial dans la production d'hélium.

Néanmoins, dans les niveaux les plus éloignés du nœud terminal apparaissent le plus souvent les dimensions du grain, en particulier la longueur L des cristaux. Cela signifie que la géométrie du grain influe sur la rétention d'hélium mais pas au premier ordre. Cela implique qu'il existe une fonction f (radionucléides pères, longueur L)=$^{4}He_{apatite}$. Ceci est intéressant, par rapport aux modèles récents de Beucher (2013) et Brown (2013) qui expliquent la variabilité des âges par celle des géométries de grains.

Néanmoins nous avons fait un dernier test pour déterminer l'influence de la connaissance de la dimension des grains sur la variabilité des rétentions en hélium. Nous avons créé une forêt aléatoire à partir des uniques données des radionucléides pères. Les résultats montrent que la prédiction est meilleure si l'on utilise uniquement les radionucléides pères que si l'on ajoute les données des dimensions des grains. Ainsi, la connaissance des dimensions des cristaux détériore la prédiction de l'algorithme. On en déduit que la rétention d'hélium des cristaux d'apatite est indépendante de la géométrie des cristaux. Néanmoins, bien que ces interprétations soient vraies sur ce jeu de données, il reste à vérifier leur applicabilité à d'autres contextes.

4.4 : Prévision de la dispersion des âges thermochronométriques

Afin de déterminer l'influence des paramètres sur les âges AHe, nous avons suivi la même approche que précédemment mais en remplaçant dans la matrice d'entrée la colonne He par une colonne AHe contenant les âges AHe des cristaux d'apatite. De nouveau, on a constaté que l'apprentissage fonctionne le mieux si l'on utilise uniquement les données des radionucléides pères que si l'on ajoute les dimensions des cristaux ou la composition chimique des grains. Les variations en eU expliquent donc une variation d'âge de 130 à 230 Ma (voir figure V-14).

En revanche, les âges prévus par l'algorithme d'apprentissage sont beaucoup moins dispersés que les âges observés, pour un même eU. Par exemple, pour eU=70 ppm, on observe une dispersion de 60 Ma tandis que les prédictions suggèrent une dispersion de seulement 20 Ma (figure V-14). L'ajout des données chimiques ne change rien à l'affaire, elle réduit même la dispersion prévue.

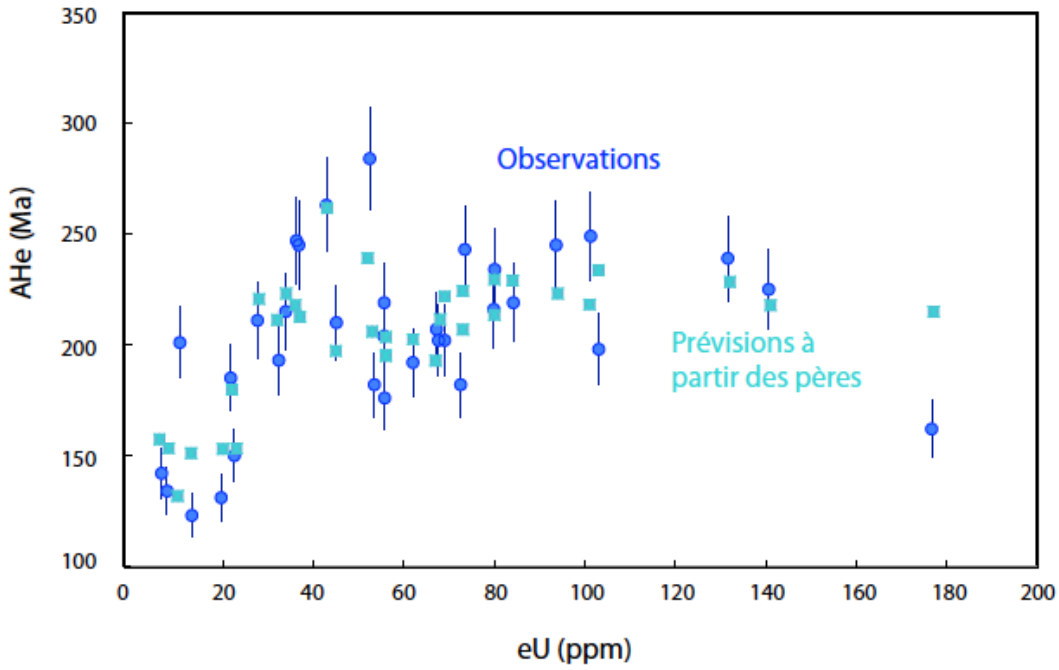


Figure V-14 : Résultats de prédiction des âges AHe à partir des radionucléides pères

Les points en bleu foncé sont les mesures effectuées sur les apatites. L'erreur analytique représentée à titre informatif est de 15%. Les prédictions en bleu clair sont les résultats de la forêt aléatoire lancée avec uniquement les concentrations des radionucléides pères. Comme on peut le voir, ils sont relativement proches des points bleu foncé (erreur inférieure aux erreurs analytiques – c'est à dire les erreurs dans la mesure des concentrations d'hélium). Cela signifie que les concentrations en radionucléides pères sont suffisantes pour prévoir la concentration en hélium. Néanmoins, la dispersion prévue est plus faible que celle observée pour une même valeur de eU.

5. Conclusion

Nous proposons ici une nouvelle approche permettant de fouiller les données thermochronologiques, appliquée aux données obtenues dans le Trégor (Recanati et al.,

2017). L'enjeu est de déterminer quelles sont les relations entre les âge AHe et les paramètres physiques et chimiques que l'on a mesurés sur les grains d'apatite individuels. L'intérêt de ce massif est que toutes les apatites ont subi la même histoire thermique, donc les variations des âges ne sont pas liées à des changements dans l'histoire thermique mais à d'autres paramètres. L'algorithme est très robuste, et fonctionne même sur une relativement faible quantité d'information en entrée. Ainsi, les interprétations statistiques sont fiables.

Les algorithmes d'apprentissage automatique permettent de déterminer si un paramètre est prépondérant, ou si certains paramètres sont inutiles pour expliquer la donnée [^{4}He] ou AHe. Ils cherchent une fonction f telle que :

f (U, Th, Sm, dimensions cristal, composition chimique de l'apatite) ≈ [^{4}He].

Équation V-3: Fonction de prévision de la concentration d'hélium

Ils permettent d'éliminer les variables non contraignantes, et de ne conserver que la combinaison de variables qui jouent sur la donnée.

Ici, nous avons montré qu'en réalité, la composition de l'apatite n'influence vraisemblablement pas les contenus en hélium de l'apatite. Cela s'explique probablement par la faiblesse des concentrations (en ppm), qui ne peuvent pas influencer la structure du minéral et la place de l'hélium. Donc f ne dépend que de U, Th, Sm, et des dimensions du cristal. La prévision est meilleure si l'on ne renseigne que les compositions en radionucléides pères, ce qui signifie que l'algorithme n'est pas parfait et que les dimensions du cristal n'influencent pas non plus la rétentivité. Donc, il est ici très justifié que les modèles actuels expliquent les âges en fonction de eU, car ce paramètre est primordial pour expliquer les âges AHe.

La variabilité des âges dépend donc en premier lieu des variations de eU, comme on l'avait montré dans Recanati et al. (2017). Néanmoins, on montre ici que la dispersion observée pour un même eU n'est pas liée à la variation de composition des cations que l'on a déterminée. Ainsi, en ajoutant la composition chimique des grains, on ne prévoit pas mieux la dispersion observée. On peut, à partir des contenus en U, Th, Sm, expliquer une dispersion d'environ 20 Ma (≈10%), mais pas de 60 Ma comme observé (nviro.

Une hypothèse raisonnable serait que les âges mesurés les plus vieux aient une erreur d'analyse de 8% trop élevée (dans la gamme d'erreur analytique), et qu'au contraire les âges les plus jeunes aient une erreur de 8% trop faible. Ainsi, la dispersion serait explicable en termes d'erreurs analytiques. Nous montrons ici que la dispersion n'est pas simplement liée à des variations de géométrie des cristaux, comme le suggèrent Beucher et al. (2013) et Brown et al. (2013), et qu'elle ne dépend pas au premier ordre de la chimie.

En conclusion, cette approche novatrice est très intéressante à appliquer à la thermochronologie. En effet, ces algorithmes que nous avons utilisés permettent de mieux interpréter les nombreuses données que nous avons acquises sur cet ensemble d'apatites. Les graphiques en 2D n'étaient pas suffisants pour prouver cela, l'apport de l'apprentissage statistique s'avère conséquent. De nombreuses perspectives en découlent. Nous souhaitons par la suite l'appliquer aux données traces de fission afin de déterminer si les données chimiques et/ou les variations de Dpar influent sur les âges AFT des grains afin de comparer les résultats obtenus sur les deux thermochronomètres.

6. Bibliographie du chapitre

Barbarand J., Pagel M., 2001. Importance of the chemistry to characterise apatite fission-track annealing. Comptes-rendus de l'académie des sciences 332 (4): 259-265.

Beucher R., Brown R.W., Roper S., Stuart F., Persano C., 2013. Natural age dispersion arising from the analysis of broken crystals. Part II. : Practical application to apatite (U-Th)/He thermochronometry. Geochimica et cosmochimica Acta 120 : 395-416.

Breiman L., 2001. Random Forsts. In: Machine Learning 45 (1), Springer: 5-32.

Brown R.W., Beucher R., Roper S., Persano C., Stuart F., Fitzgerald P., 2013. Natural age dispersion arising from the analysis of broken crystals. Part I. : Theoretical basis and implications for the apatite (U-Th)/He thermochronometer. Geochimica et Cosmochimica Acta.

Hopfield J.H., 1982. Neual networks and physical systems with emergent collective computational abilities. Proceedings of the National Academy of Sciences 79: 2554-2558.

Ketcham R.A., 2015. Technical note : Calculation of stoichiometry from EMP data for apatite and other phases with mixing on monovalent anion sites. Am. Mineral. 100 : 1620-1623.

Holmes, Donkin A., Witten I.H., 1994. Weka: A machine learning workbench. Proc. Second Australia and New Zealand Conference of Intelligent information systems , Brisbane, Australia.

Husson F., Lê S., Pagès J., 2009. Analyse de données avec R, Rennes, Presses Universitaires de Rennes, 224 pp.

Kohavi R., Quinlan J.R., 2002. Decision tree discovery. In: Klosgen, W., Zytow J.M., Eds.: Handbook of data mining and Knowledge Discovery. Oxford University Press, New York: 267-276.

Larose D.T., 2005. Introduction to data mining. In: Discovering knowledge in data: an introduction to data Mining,

Lindley D.V., 1965. Introduction to probability and statistics from a Bayesian viewpoint. Part 2: Inference. Cambridge University Press, Cambridge.

Lindley D.V., 1972. Bayesian statistics: A review. University College of London, London UK.

Murphy K.P., 2012. Machine Learning: A probabilistic Perspective. The MIT Press, 2012.

Quinlan R., 1986. Induction of decision trees. In: Machine Learning. 1(1): 81-106. Springer.

Quinlan R., 1993. C4.5: Programs for Machine Learning,.Morgan Kaufmann Publishers Inc.

Recanati A., Gautheron C., Barbarand J., Missenard Y., Pinna-Jamme R., Tassan-Got L., Carter A., Douville E., Bordier L., Pagel M., Gallagher K., 2017. Helium trapping in apatite damage: insights from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoid lithologies. Chemical Geology, 470, 116-131.

Shalizi C.R., 2006. Methods and techniques of complex systems science: An Overview. In: Complex Systems Science in Bioedicine. Eds: Deisboeck T., Kresh J.Y., Springer. 33-114.

Shuster D.L., Flowers R., Farley K.A., 2006. The influence of natural radiation damage on helium diffusion kinetics in apatite. Earth and Planetary Science Letters 249 : 148-161.

Smola A., Vishwanathan R., 2008. Introduction to Machine Learning. Cambridge University Press, Cambridge UK, 2008.

Tin Kam H., 1998. The random subspace method for constructing decision forests. IEEE Transaction on pattern analysis and Machine Intellignece 20 (8): 832-844.

Tufftéry S., 2010. Data mining et statistique décisionnelle. Paris, Editions Technip, 705pp.

Witten I.H., Frank E., Hall M.A., 2011. Data mining: practical machine learning tools and techniques, 3d Edition. Kaufmann M., San Francisco (USA).

Chapitre 6 : Observation et caractérisation des dommages dans l'apatite

1. But des expériences

Pour améliorer les modèles d'accumulation d'hélium dans les défauts, ou de cicatrisation, il devient crucial de connaître la topologie et la morphologie de ces dommages. En effet, les chapitres 3 à 5 ont montré l'importance des dommages et de la dose d'alpha reçue dans les mécanismes de rétention d'hélium. Ils ont démontré que l'énergie de stockage dans les défauts varie, vraisemblablement en fonction de la topologie des dommages et influence la dispersion des âges. La capacité de rétention des défauts semble plus élevée que prévu par les modèles antécédents, soit parce que les dommages seraient plus larges, soit parce qu'ils se regrouperaient en « clusters ». Néanmoins, la nature de ces défauts n'a pas été abordée jusqu'à présent dans le manuscrit.

Quels sont les dommages engendrés dans le réseau cristallins lors de son irradiation par les particules alpha ? Comme nous l'avons montré dans le chapitre 2, des outils analytiques comme la microscopie électronique à transmission ou la spectroscopie permettent de détecter et de caractériser les défauts dans les cristaux. Les travaux d'Anne-Magali Seydoux Guillaume ont essayé de les caractériser sur divers minéraux comme la monazite (e.g. Seydoux-Guillaume et al., 2002 ; 2003, 2011).

Physiquement, les particules alpha perdent une partie de leur énergie par ionisation, mais provoquent des déplacements balistiques par collision (e.g. Weber et al., 1998). Mais ces particules alpha sont peu destructrices (100 déplacements par atome) contrairement aux noyaux de recul (800-2000 déplacements par atome), qui font néanmoins un plus court trajet (20-50 nm, comparé aux 10-30 μm des particules alpha). L'impact de l'irradiation peut être

étudié : (i) expérimentalement, en irradiant artificiellement des minéraux (Meldrum et al., 1998) ou en les dopant (Begg et al., 2000), (ii) numériquement, par des simulations du trajet des particules et de leur énergie pour des zircons (Trachenko et al., 2001), ou (iii) empiriquement, par l'étude d'échantillons naturels plus ou moins riches en U (Seydoux-Guillaume et al., 2002).

D'après les simulations numériques (Trachenko et al., 2001) sur des zircons, les défauts de recul endommagent le réseau cristallin en créant une zone périphérique polymérisée dense atour d'un noyau local de 5 nm, appauvri en atomes (Trachenko et al., 2001). Ces zones finissent par percoler, s'interconnecter, et devenir majoritaires par rapport aux zones cristallines (Geisler et al., 2003, 2007). Ainsi, la figure VI-1 présente la simulation dynamique de l'endommagement. Les déplacements pourraient engendrer, à terme, la métamictisation du réseau.

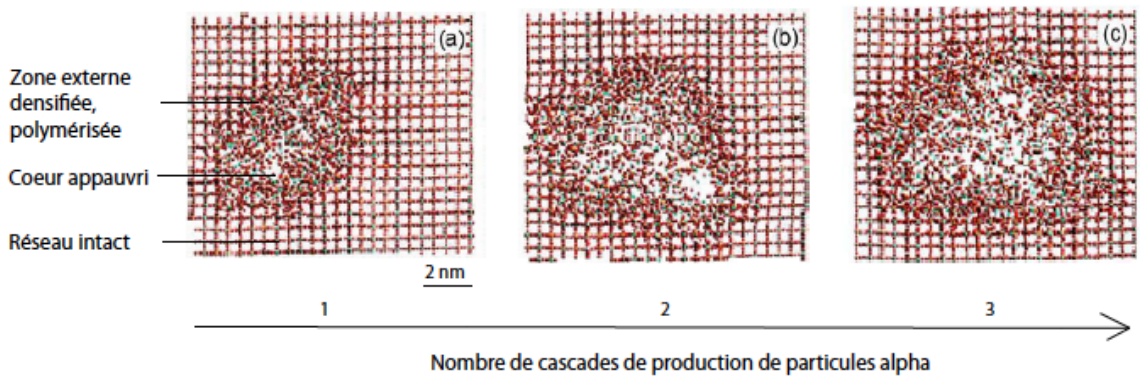


Figure VI-1: Simulation dynamique de l'endommagement du réseau d'un zircon par les particules alpha (d'après Geisler et al., 2003)

La production de particule alpha endommage le réseau cristallin. Une première cascade de production de particules crée un dommage sur une zone d'environ 5 nm, avec un cœur appauvri en matière entouré d'une zone périphérique densifiée due à la polymérisation des atomes. Les boules rouges sont les atomes du réseau cristallin. Une deuxième cascade élargit la zone d'endommagement en créant de nouveaux cœurs vides de matière. Une troisième cascade engendre la percolation des cœurs appauvris pour former un large dommage. La zone de réseau intact se rétrécit.

Néanmoins, les minéraux comme les phosphates ont une résistance apparente à la métamictisation (Seydoux-Guillaume et al., 2002), qui est liée à une guérison très efficace des défauts (Soulet et al., 2001), qui empêche l'amorphisation. Selon Trachenko et al. (2005), cette capacité est contrôlée par les liaisons chimiques covalentes dans les matériaux. Ainsi, même après irradiation par des particules alpha, la monazite reste dans un état cristallin et ne s'amorphise pas (Seydoux-Guillaume et al., 2002 ; 2004), contrairement au zircon. Ainsi, il n'existe pas de monazite amorphe dans la nature, et la structure de ce minéral n'est pas affectée par la dose d'U et de Th (Black et al., 1984).

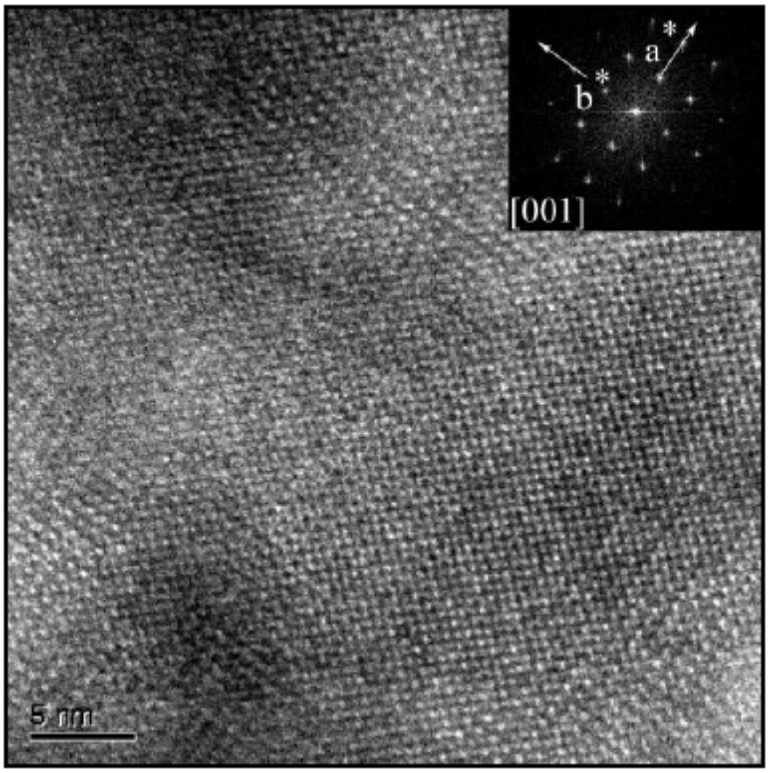


Figure VI-2: Image HRTEM et cliché de diffraction d'une monazite

(Seydoux-Guillaume et al., 2002)

Monazite de Moacyr (Brésil). Le réseau cristallin est tordu, mais n'est pas amorphe.

Les images HRTEM et les clichés de diffraction des monazites montrent un réseau légèrement tordu, mais pas amorphe (Figure VI-2). Récemment, Deschanels et al. (2014) ont montré que des monazites dopées au ^{238}Pu restent cristallines jusqu'à des doses de 0.8 dpa.

Cet aspect est intéressant pour cette thèse, car les apatites sont également des phosphates. Nous pourrons ainsi comparer les résultats à ceux obtenus dans la monazite précédemment.

L'effet des particules alpha ou des atomes de recul peut également être détecté expérimentalement. Soulet et al. (2001a, b, c) et Ouchani et al. (1997) ont bombardé des apatites avec des ions lourds (Pb) pour simuler les dégâts des noyaux de recul, et avec de l'He pour représenter l'irradiation avec des particules alpha. La densité de défauts dans ces apatites ainsi implantées peut ainsi être évaluée soit avec un MET couplé à l'implanteur (Soulet et al., 2001 a, b, c), soit par des techniques de spectroscopie, comme la spectroscopie rétrodiffusée canalisée de Rutherford RBS/C (Ouchani et al., 1997, 1998). Ces expériences, ainsi que celles de Li et al. (2017), montrent qu'au fur et à mesure de l'irradiation avec un faisceau d'hélium, les apatites recristallisent : c'est le recuit alpha. Au MET, de nouveaux domaines cristallins sont alors visibles et indiquent une cicatrisation induite par les particules alpha. Cet aspect est très important pour cette thèse, car nous avons des chances de le détecter également au cours de nos expériences.

Comme indiqué dans le chapitre 2, la RBS/C consiste à canaliser un faisceau entre les rangées atomiques afin de détecter d'éventuels défauts atomiques. L'énergie rétrodiffusée en conditions canalisée est minimale, tandis qu'elle est maximale en conditions aléatoires. L'intensité du spectre enregistré en conditions canalisées est donc inférieure à celle du spectre aléatoire. Ce dernier est caractéristique de la chimie du matériau (voir chapitre 2, Figure II-23). Dans un matériau endommagé, le faisceau rencontre un défaut et l'énergie rétrodiffusée est donc supérieure à celle d'un matériau parfait. Ainsi, en conditions canalisées, le spectre d'un matériau endommagé est au-dessus de celui du matériau intact.

Ouchani et al. (1997) ont enregistré les spectres RBS/C d'un cristal intact et d'un cristal après implantation avec de l'hélium, afin d'évaluer l'impact de l'irradiation d'une apatite par des particules alpha. Ces spectres sont présentés figure VI-3. Les spectres du

matériau intact sont similaires à ceux présentés dans le chapitre 2 (figure II-23) : le spectre obtenu en conditions canalisées (en rouge) a une énergie minimale tandis que le spectre en conditions aléatoires a une intensité maximale (en bleu). Ce dernier dépend de la chimie du matériau : l'énergie indiquée sur l'axe de abscisses dépend des éléments chimiques en présence. Par exemple, la gamme d'énergie de 335 à 367 keV, appelée canal du calcium, indique la présence de calcium dans le matériau. Ainsi, le spectre bleu montre une diminution de l'intensité mesurée pour l'énergie 350-360 keV car l'apatite contient du calcium. La figure VI-3 présente également en vert le spectre d'une apatite ayant été implantée. Ce spectre a enregistré des intensités plus élevées que dans l'apatite vierge (le spectre vert est au-dessus du spectre rouge). Or, comme indiqué dans le chapitre 2, la présence de défauts dus à des déplacements atomiques augmente l'énergie rétrodiffusée. Le spectre vert montre donc que l'énergie rétrodiffusée du matériau implanté est supérieure à celle du matériau vierge. L'implantation a donc provoqué une création de défauts. D'autre part, Ouchani et al. (1997) montrent la présence d'un pic autour du canal du calcium dans le spectre vert. Ainsi, la présence de défauts est détectée par ce pic. Les défauts correspondent à un déplacement des atomes de calcium.

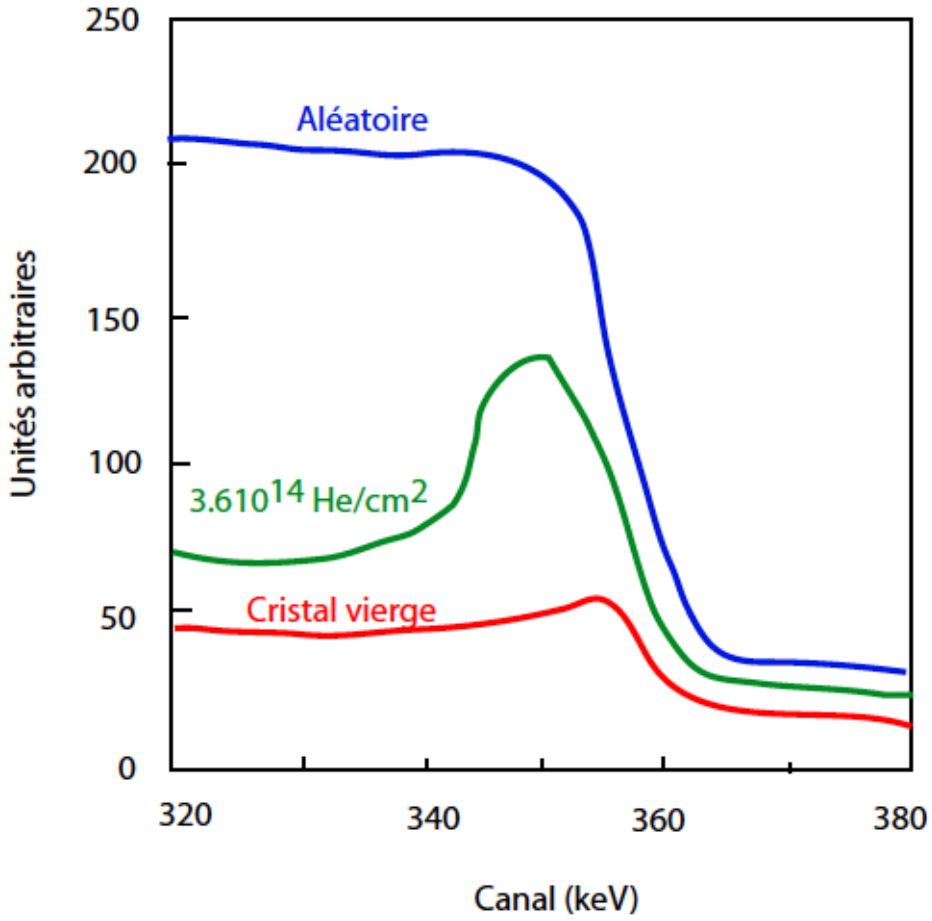


Figure VI-3: Spectres RBS/C d'une apatite avant et après implantation

(d'après Ouchani et al., 1997)

Le cristal vierge (c'est à dire avant implantation) n'a pas de défauts. Le spectre en conditions canalisées (en rouge), est en dessous du spectre en conditions aléatoires (bleu) comme indiqué dans le chapitre 2. Le spectre obtenu après implantation d'hélium (en vert) a une énergie supérieure à celle du spectre rouge. D'autre part, on remarque un pic d'énergie autour du canal représentatif des atomes de Ca (canal d'énergie 335 à 367 keV, correspondant à l'excitation des atomes de Ca).

La concentration de défauts est alors quantifiée en intégrant l'aire du pic du calcium sur le spectre obtenu en mode canalisé, et en soustrayant le signal de bruit de fond et l'aire du pic pour une apatite non endommagée. Ouchani et al. (1997) montrent ainsi que, contrairement aux noyaux de recul, l'irradiation avec des particules alpha n'induit pas d'amorphisation de la structure cristalline. Elle produit des défauts caractérisés par un

déplacement des atomes de calcium. La densité de défauts engendrée par les particules alpha diminue avec l'énergie de l'irradiation (figure VI-4), démontrant un phénomène de cicatrisation des défauts.

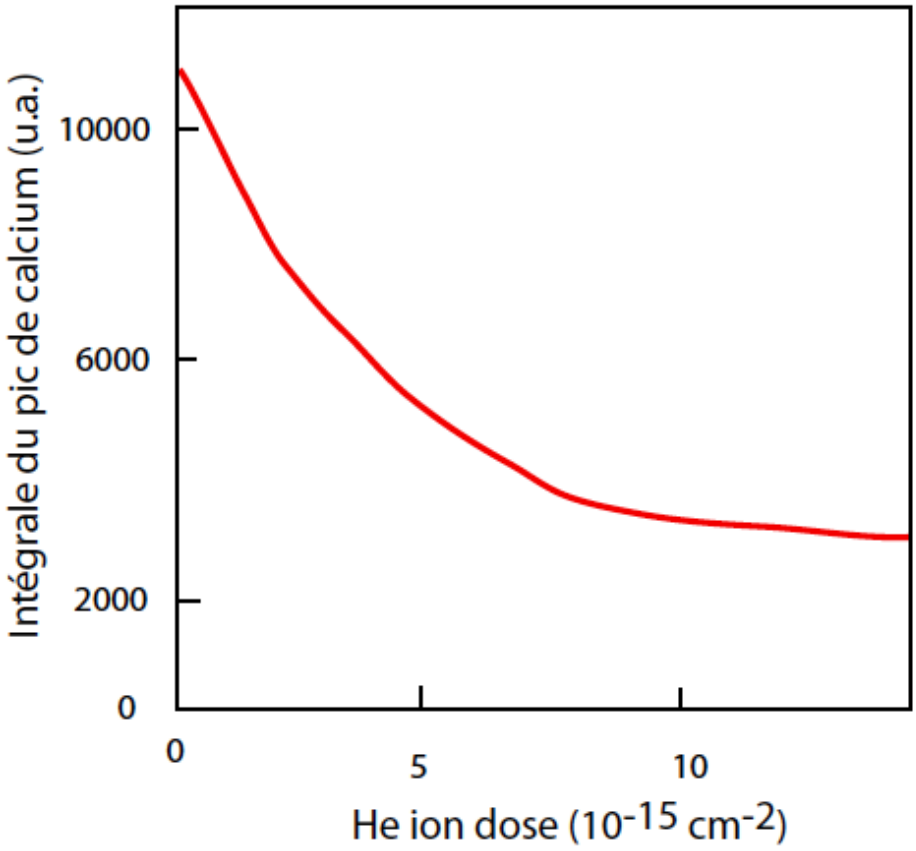


Figure VI-4: Quantification de la densité de défauts par RBS/C

(d'après Ouchani et al., 1997)

L'intensité du pic de calcium mesuré à 0.35 MeV diminue avec la dose d'hélium, du fait de la cicatrisation des défauts.

Dans ce chapitre, nous réaliserons un travail expérimental similaire, en combinant la microscopie électronique et la spectroscopie RBS/C sur des apatites implantées à plusieurs doses en hélium et en or. Ainsi, nous évaluerons l'impact de l'irradiation sur le réseau cristallin. Le protocole expérimental a été décrit au chapitre 2 : les apatites sont préparées,

implantées, puis utilisées en microscopie électronique et en spectroscopie afin de caractériser les défauts induits par l'implantation. Une trace de l'apatite vierge avant implantation est gardée à titre de comparaison (image HRTEM, cliché de diffraction, spectre RBS/C). Nous présentons ici les résultats de nos expériences, et suggérons des projets d'amélioration à effectuer pour aboutir à des conclusions sur l'impact des particules alpha sur l'apatite.

Bien entendu, les expériences réalisées dans ce chapitre sont faites à courte échelle de temps comparé aux échelles de temps géologiques. L'effet de l'implantation pendant une journée peut être différent de celui d'une irradiation aux particules alpha pendant plusieurs millions d'années. Néanmoins, nous avons également adapté les doses : les doses d'irradiation en milieu naturel sont significativement plus faibles que celles utilisées ici (environ 10^{12} ions/cm^2 en milieu naturel, et 10^{15} ions/cm^2 en conditions expérimentales). Dans nos expériences, la dose maximale utilisée est de 0,062 dpa (10^{15} He^+/cm^2), ce qui est bien en dessous de la dose critique au-delà de laquelle les minéraux s'amorphisent (0,3 à 0,7 dpa selon Lian et al., 2010). Ainsi, nous pensons que, bien que les conditions soient différentes de celles du milieu naturel, nos expériences peuvent aider à comprendre les mécanismes de création de défauts dans l'apatite sous l'effet de l'irradiation des particules alpha.

2. Caractérisation des défauts par microscopie électronique

2.1. Résultats des implantations

Comme indiqué dans le chapitre 2, nous avons effectué une série d'implantations d'apatites de Durango à l'or et à l'hélium afin de simuler les déplacements induits par les particules alpha et les noyaux de recul. Le protocole de préparation des apatites a été décrit dans le chapitre 2 : les apatites ont été sectionnées en tranches parallèlement à l'axe c, puis collées sur un porte-échantillon et polies. Enfin, une métallisation au carbone a été réalisée, avant de transférer les sections sur le porte-échantillon de l'implanteur.

Nom échantillon	Fluence Ions/cm^2	Energie (keV)	RBS/C	Observation MET
Témoin	Non	Non	Non	Oui
Au1	7.7×10^{12}	1200	Oui	Oui
Au2	3.8×10^{11}	1200	Oui	Oui
Au3	7.7×10^{11}	1200	Oui	Oui
Au4	3.8×10^{12}	1200	Oui	Non
He1	10^{15}	30	Oui	Oui
He2	5×10^{13}	30	Oui	Oui
He3	10^{14}	30	Oui	Non
He4	5×10^{14}	30	Oui	Non

Tableau VI-1: Echantillons Observés au MET et en RBS/C

Quatre fluences ont été choisies pour l'implantation à l'or et à l'hélium. Un témoin non implanté a été observé au MET. Six lames FIB ont été extraites et observées. Etant donné que le témoin n'est pas dépourvu de défauts (voir ci-dessous), nous n'avons pas réalisé les lames FIB sur Au4, He3 et He4. Les profondeurs d'implantation sont de 0 à 400 nm selon le modèle SRIM (Figure IV-5).

Nous rapportons ici le résultat des implantations en hélium et en or. Six lames FIB ont été extraites par Stéphanie Reynaud à l'Université Jean Monnet de Saint Etienne. Ces lames ont été observées et caractérisées au microscope électronique à transmission JEOL 2100F à l'Université de Lyon, Centre Technologique des Microstructures (CTμ), par Anne-Magali Seydoux-Guillaume. J'ai eu la chance d'assister à la dernière séance. Les échantillons observés au MET sont indiqués dans le tableau VI-1.

Une simulation des défauts engendrés par les implantations a été effectuée par Frédérico Garrido grâce au modèle SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter). Ce modèle simule les déplacements engendrés en fonction de la profondeur. La figure VI-5 présente les résultats de cette simulation pour une implantation en hélium à 30 keV et pour une

implantation en or à 1.2 MeV. Elle prévoit que l'implantation provoque des déplacements d'atomes (au moins 10^{20} atomes/cm^3) sur une profondeur d'environ 300 nm, avec un pic à 220 nm de profondeur pour l'hélium et 170 nm pour l'or.

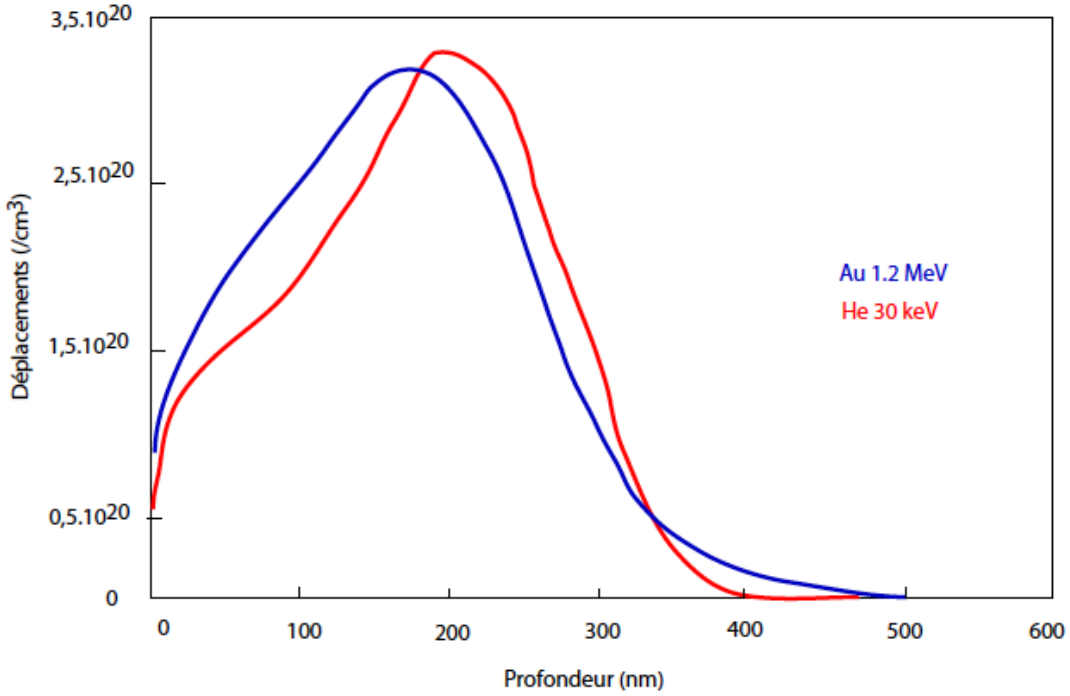


Figure VI-5: Simulations SRIM des déplacements induits par l'irradiation

Les simulations suggèrent un déplacement sur une profondeur d'environ 300 nm, avec un déplacement maximal à des profondeurs de 220 nm pour l'He et 170 nm pour l'Au.

2.2. Observation de l'échantillon témoin

Un échantillon témoin a été préparé. Cet échantillon est un cristal d'apatite qui a été coupé en tranches et poli de la même façon que les autres échantillons. Mais aucune implantation n'a été effectuée. Nous avons observé cette lame FIB en microscopie électronique en transmission afin d'étudier l'état de l'apatite avant implantation.

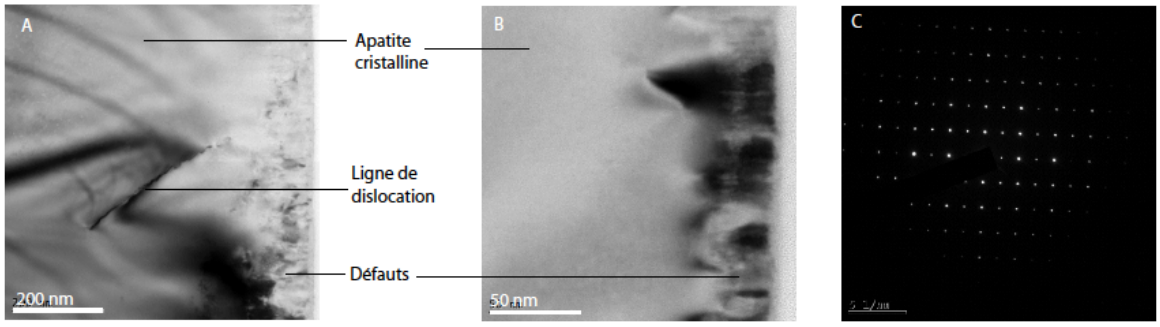


Figure VI-6: Observations MET de l'échantillon témoin

A, B : Images en champ clair. C : Cliché de diffraction. On remarque une zone de défauts sur environ 50-100 nm de profondeur.

A notre surprise, la lame FIB de l'échantillon témoin a aussi montré la présence d'une zone endommagée sous la surface (voir figures VI-6A et B) jusqu'à une profondeur d'environ 50 à 100 nm. Le cliché de diffraction montre un matériel bien cristallisé, ce qui est confirmé par la présence des lignes de Bragg dans les images en champ clair (figure VI-6A) et par la présence de tâches de diffraction bien nettes dans le cliché de diffraction (figure VI-6C). L'origine de cette zone de défauts reste mystérieuse. En effet, l'apatite n'a pas subi d'implantation qui aurait créé des défauts. Elle a simplement été préparée, de la même façon que les autres apatites.

Plusieurs hypothèses sont envisageables : (i) les défauts sont engendrés par le polissage mécanique de la section, (ii) les défauts sont liés à la préparation de la lame FIB. Nous avions au préalable observé la section du cristal, qui était très bien polie à l'œil nu : elle réfléchissait la lumière. Néanmoins, pour la préparation de cet échantillon témoin, nous n'avons pas chauffé les échantillons, ce qui aurait eu pour effet de cicatriser complètement d'éventuels défauts de polissage. D'autre part les lames FIB n'étaient pas préparées au même endroit que lors de la série d'expériences réalisées par Gérin et al. (2017).

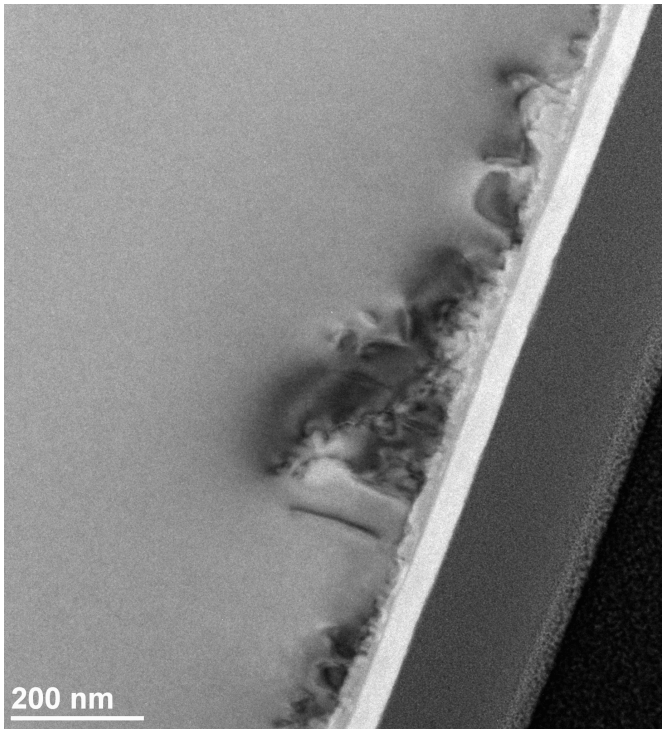


Figure VI-7: Observations MET d'un nouveau témoin

Pour savoir si la façon de préparer la lame FIB influe sur la quantité de défauts et pour pouvoir comparer avec les données de Gérin et al. (2017), nous avons refait une section en réalisant la lame FIB à l'université de Toulouse cette fois-ci, comme dans Gérin et al. (2017). Le résultat a été très similaire (Figure VI-7) : l'échantillon témoin contient des défauts. Ainsi, il est probable que ces défauts soient liés au polissage, et il conviendrait de refaire un échantillon témoin en chauffant bien après le polissage. Tant que nous n'obtenons pas un échantillon témoin vierge de défauts, nos expériences ne peuvent pas aboutir à des conclusions.

2.3. Observation des échantillons irradiés

Les lames FIB des apatites ayant été sectionnées après implantation d'hélium montrent une zone endommagée juste sous la surface, d'une épaisseur de moins de 100 nm (fluence de 1.10^{15}) à environ 150 nm (fluence de 5.10^{13} ions/cm^2). En dessous de cette zone de défauts, l'apatite est bien cristallisée (figures VI-8A, VI-8B), comme le montre le cliché de diffraction.

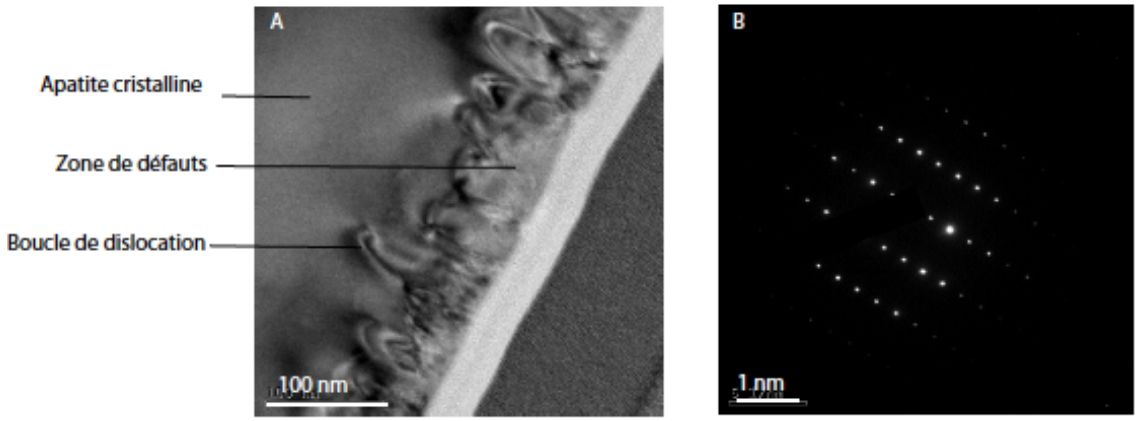


Figure VI-8: Observations des apatites implantées à l'hélium

A : Image en champ clair de l'apatite He1 (fluence : 10^{15}ions/cm^2). On voit une zone endommagée sur 100 nm d'épaisseur sous la surface. B : Cliché de diffraction dans la zone cristalline de He1, montrant un matériau bien cristallisé.

La zone endommagée est visible dans les images MET en champ clair (figures VI-6A): elle apparaît sous forme de boucles de dislocations voire d'une zone amorphe sous la surface de la lame FIB. Des images à haute résolution dans la zone de défauts montrent que le réseau cristallin est tordu.

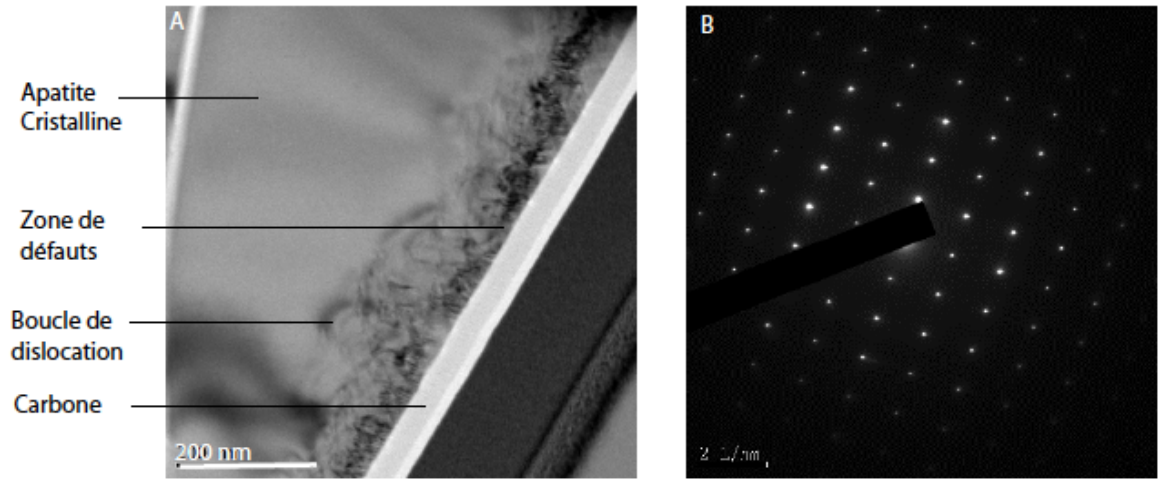


Figure VI-9: Observations MET des échantillons irradiés à l'or

A : Image en champ clair de la lame FIB Au1 (fluence : 7.7. 10^{12} at/cm^2). B : Cliché de diffraction de l'apatite Au1 On note une zone endommagée riche en défauts et en boucles de dislocations sous la surface sur une profondeur d'environ 150 nm. La zone de défauts contient un réseau avec des zones de torsion.

Les irradiations à l'or montrent des résultats très similaires : des défauts sont présents sous la surface sur une épaisseur de 150 nm (voir figure VI-9). Le cliché de diffraction est parfaitement cristallin (figure VI-9B) avec des tâches de diffraction bien nettes, et l'image en HRTEM montre un réseau comportant de légères torsions du réseau. D'autre part, peu de différences existent entre les échantillons en fonction de la dose d'irradiation reçue (e.g. figures VI-9A et VI-9C).

Malheureusement, nous ne savons pas si la zone de défauts de 150 nm observée dans les lames implantées à l'hélium et à l'or est liée à la préparation des échantillons (comme l'échantillon témoin), ou à l'implantation. Cette zone semble légèrement plus grande que dans l'échantillon témoin. Néanmoins, nous ne pouvons pas conclure quant à l'impact des particules alpha sur le réseau de l'apatite.

3. Caractérisation des défauts par spectroscopie rétrodiffusée de Rutherford

3.1. Cristal He 1

Afin de caractériser les défauts, nous avons effectué des manipulations de spectroscopie rétrodiffusée de Rutherford en canalisation après avoir irradié les échantillons à différentes fluences. Lorsque le faisceau rencontre les défauts, il réémet de l'énergie vers le détecteur rétrodiffusé. Ainsi, le spectre obtenu dans un cristal défectueux est au-dessus du spectre aligné dans un cristal parfait. La figure VI-10 représente le spectre obtenu en canalisation après l'irradiation (en vert).

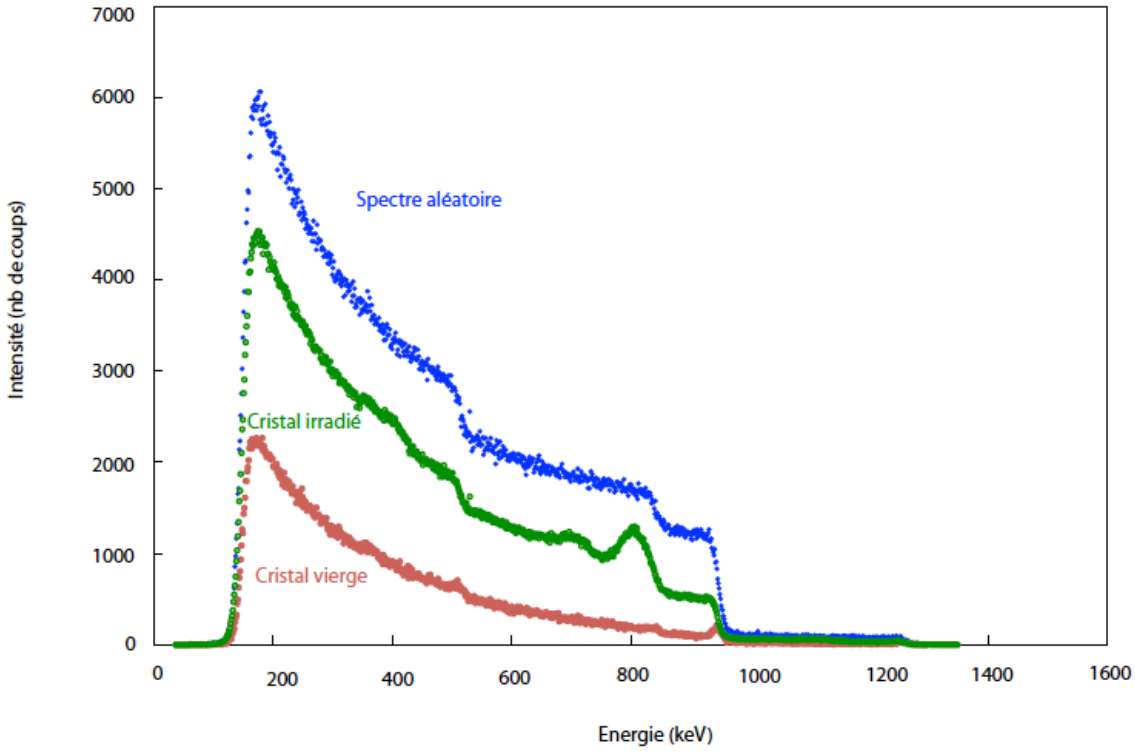


Figure VI-10: Spectres RBS/C d'un cristal irradié

Le spectre vert est le spectre du cristal après irradiation, en mode canalisé. Il est au-dessus du spectre obtenu pour le cristal vierge (en rouge). Il contient deux pics d'énergie 800 keV et 700 keV. Le spectre bleu est le spectre du cristal vierge en conditions aléatoires. Les marches sont liées à la chimie de l'apatite.

Le spectre bleu est le spectre enregistré en conditions aléatoires. Ce spectre est acquis avec un faisceau orienté aléatoirement sur le cristal, et donc pas aligné avec les rangées atomiques. Ainsi, l'énergie rétrodiffusée en conditions aléatoires est maximale car le faisceau est rétrodiffusé sur les atomes en présence. Les pics du spectre aléatoire correspondent donc à l'excitation des différents atomes présents. Sur le spectre aléatoire, trois marches sont visibles et caractérisent la chimie de l'apatite : à 500 keV le pic est lié à la présence d'oxygène, à 850 keV la marche est liée aux atomes de phosphore, puis à 900 keV la présence de calcium crée un pic. L'on constate que le spectre de l'apatite irradiée contient également ces marches ; mais un pic significatif est notable à l'énergie 800-850 keV. Ainsi, ce spectre indique que les défauts sont liés au déplacement d'atomes de phosphore.

Pour interpréter les spectres, nous avons simulé les spectres que l'on obtiendrait pour un profil donné de défauts en profondeur, présenté figure VI-11. Ce profil de défaut est simple : avec un endommagement maximal pour une profondeur donnée variable. Nous avons choisi ce profil pour sa simplicité, pour tester si les simulations avec ce spectre peuvent reproduire les observations. Pour un cristal parfait, la simulation reproduit entièrement les spectres mesurés. Ainsi, notre cristal initial ne contenait pas de défauts. Pour le cristal irradié, nous avons testé plusieurs profils de défauts afin d'obtenir un spectre simulé qui reproduise les mesures. La figure VI-12 présente les spectres simulés, ainsi que le spectre mesuré vert clair. On remarque que le spectre simulé reproduit raisonnablement bien les mesures, en particulier pour le pic de l'énergie à 800 keV. Ainsi, cette bonne adéquation entre les mesures et les simulations signifie que notre profil de défauts en profondeur (présenté figure VI-11) est correct.

Le calcul de la fraction de dommages indique qu'elle est élevée : au moins 30% d'endommagement. Ainsi, l'implantation a bien endommagé l'apatite.

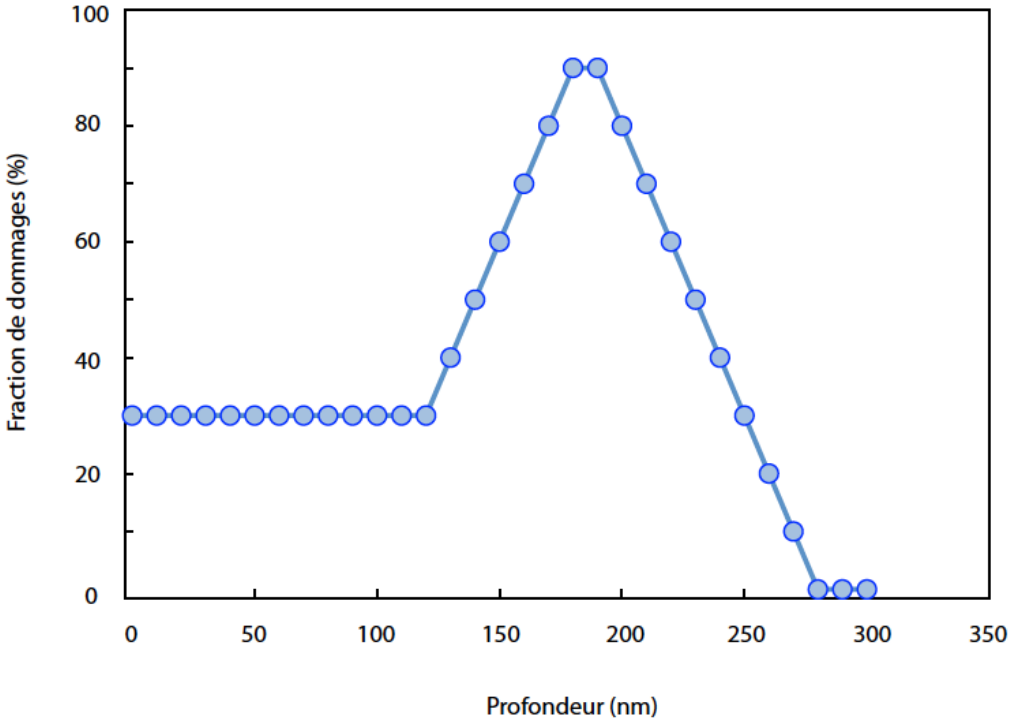


Figure VI-11: Profil de défauts en profondeur

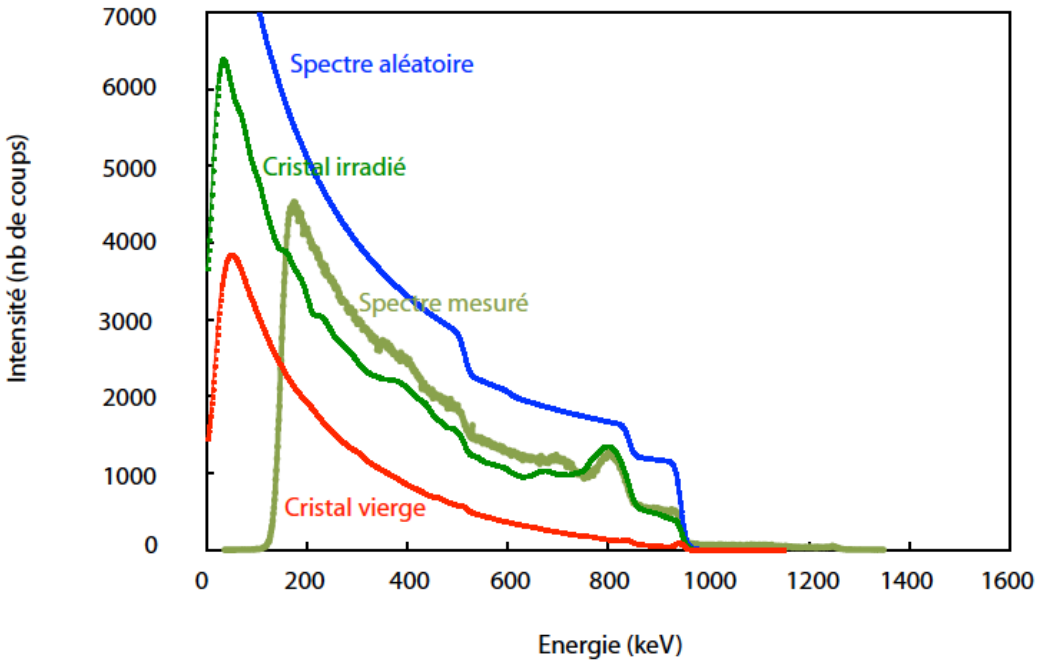


Figure VI-12: Spectres RBS/C simulés

Les spectres bleus et rouges sont simulés pour des cristaux parfaits. Le spectre vert foncé est simulé pour le profil de défauts indiqué en figure VI-11. Le spectre vert clair a été mesuré après irradiation sur le cristal en conditions canalisées.

En surface (<125 nm de profondeur), on note que l'endommagement n'est pas nul, il est de 30%. Nous interprétons cette fraction non négligeable de défauts comme liée à l'irradiation du cristal et l'implantation en surface. Les atomes sont donc déplacés dès la surface, jusqu'en profondeur

Le profil des défauts en profondeur est relativement simple : la fraction de dommages augmente linéairement de 30% à 125 nm de profondeur à 90% à 190 nm de profondeur, puis diminue de nouveau linéairement jusqu'à 0% à 275 nm de profondeur. Notez d'une part que ces fractions d'endommagement sont élevées : jusqu'à 90% des atomes sont déplacés par l'implantation. D'autre part, la profondeur d'implantation d'environ 200 nm est en accord avec les simulations des déplacements selon SRIM présentées en figure VI-5.

3.2 Autres cristaux

L'expérience a été répétée pour tous les autres cristaux, afin d'étudier l'impact de la fluence sur le profil de défauts et de pouvoir comparer l'implantation à l'hélium et celle d'or. Néanmoins, les manipulations de canalisation ont échoué pour ces autres cristaux. En effet, avant implantation, le profil acquis en conditions canalisées a des énergies rétrodiffusées élevées comparé au profil d'un cristal parfait. La simulation d'un cristal parfait, présentée figure VI-12 (spectres rouge et bleu) suggère en effet qu'à 200 keV par exemple le spectre en conditions canalisées est trois fois plus faible que le spectre aléatoire.

La figure VI-13 présente les spectres obtenus avant toute implantation sur les autres cristaux. La canalisation n'a pas eu lieu correctement. En effet, le spectre canalisé est élevé. A 200 keV par exemple, le spectre en conditions canalisées est supérieur à la moitié du spectre aléatoire. Sur le spectre de droite, le spectre canalisé est même quasiment identique au spectre aléatoire. Ces spectres élevés en conditions de canalisation indiquent que les cristaux vierges contiennent déjà des défauts, qui augmentent l'énergie rétrodiffusée.

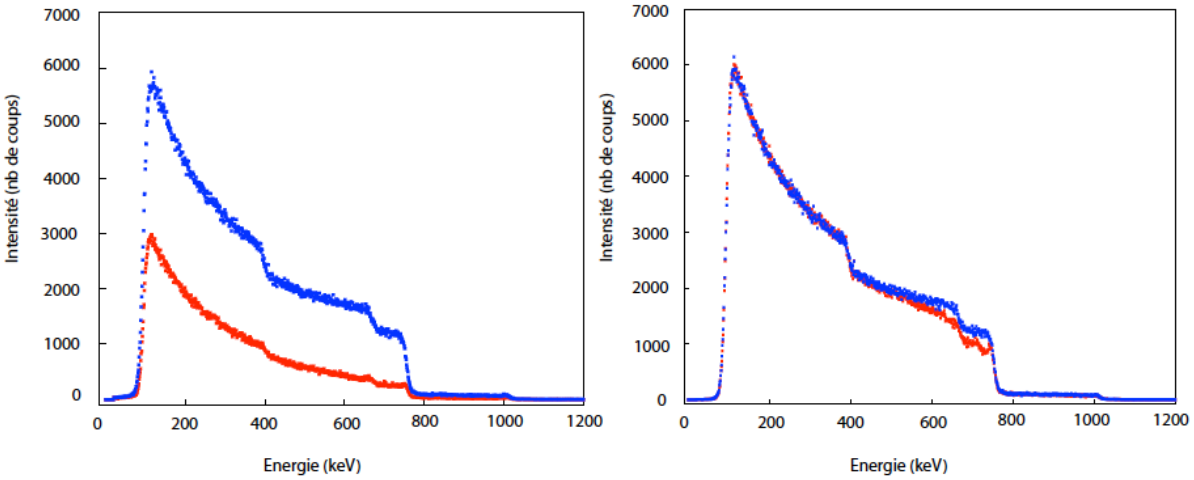


Figure VI-13: Spectres des cristaux vierges défectueux

Les spectres en mode canalisé (rouge) sont à plus de la moitié des spectres en mode aléatoire (bleu), indiquant que les cristaux contiennent des défauts qui empêchent la canalisation.

Ces défauts dans certains cristaux vierges étaient inattendus. En effet, nous avons préparé toutes les sections polies de la même façon, et il est donc curieux que certaines sections soient parfaites et d'autres endommagées. D'autre part, nous avions bien vérifié l'absence de défauts initialement : la qualité du polissage était bonne (les sections reflétaient la lumière comme un miroir), et nous avions chauffé les sections pour éliminer les défauts. Néanmoins, la canalisation n'a pas réussi, probablement parce que la surface sciée n'était pas suffisamment plane ou contenait quelques défauts. Cette présence de défauts dans les cristaux vierges empêche la suite des expérimentations, car nous ne pourrions pas distinguer les défauts induits par l'implantation de ceux induits par la préparation des échantillons.

La solution que nous envisageons est donc de recommencer l'expérience sur un grand nombre de cristaux en espérant que statistiquement, plusieurs cristaux vierges parfaits existent. L'autre possibilité est de cerner un cristal parfait, et d'effectuer des manipulations en série.

4. Conclusion générale

Cette étude des cristaux d'apatite a porté sur l'observation MET et les expériences de RBS/C sur des cristaux ayant subi une même étape de préparation et d'implantation, à plusieurs fluences croissantes. Les résultats de spectroscopie RBS/C montrent que l'implantation à une dose de 10^{15} ions/cm^2 provoque des déplacements atomiques importants : jusqu'à 90% d'atomes déplacés à 190 nm de profondeur. La surface est endommagée à 30% par l'implantation. La caractérisation des défauts par RBS/C montre que les atomes de phosphore et calcium sont déplacés, et forment des pics dans le spectre après irradiation.

En microscopie électronique, nous avons mis en évidence que, quelle que soit la fluence d'implantation, l'apatite reste bien cristallisée – ce qui est visible dans les images en champ clair, les images à haute résolution, et les clichés de diffraction SAED (Selected area diffraction). En cela, on peut comparer l'apatite à la monazite, qui ne s'amorphise pas. On peut également invoquer le recuit alpha, qui fait que l'apatite cicatrise sous l'effet des particules alpha.

Néanmoins, un problème expérimental de taille doit être résolu avant toute conclusion. En effet, à la fois au MET et en RBS/C nous avons mis en évidence que l'état des cristaux témoins avant implantation n'est pas toujours parfait. Une zone de défauts d'environ 100 nm est visible au MET sur l'échantillon témoin. En RBS/C, la canalisation n'a fonctionné que sur l'échantillon He1. Sur tous les autres cristaux, le spectre canalisé était à des intensités trop élevées, indiquant que les sections étaient endommagées par des défauts, dislocations, ou distorsions ou que la surface n'était pas plane.

La cause de ces défauts dans les sections témoins pourrait être liée à la préparation des échantillons, ou inhérentes aux cristaux. Concernant la RBS/C, toutes les sections ont été préparées de la même façon mais certaines sont parfaites et d'autres sont endommagées. Il est

probable que ce soit inhérent au cristal, et il est difficile de prévoir ou de contrôler l'absence de défauts. Concernant le MET, d'autres sections FIB témoins vont être préparées en changeant le protocole ou l'expérimentateur. Il reste donc encore des expériences à effectuer avant de pouvoir interpréter les données des sections irradiées et de pouvoir comparer les fluences.

5. Références

Begg B.D., Hess N.J., Weber W.J., Conradson S.D., Schweiger M.J., Ewing R.C., 2000. XAS and XRD study of annealed 238Pu- and 239 Pu-substituted zircons (Zr0.92Pu0.08SiO4). Journal of Nuclear Materials 278 (2-3) : 212-224.

Black L.P., Fitzgerald J.D., Harley S.L., 1984. Pb isotopic composition, color, and microstructure of monazites from a polymetamorphic rock in Antartica. Contribution to Mineralogy and Petrology 85: 141-148.

Deschanels X., Seydoux-Guillaume A.M., Magnin V., Mesbah A., Tribet M., Moloney M.P., Serruys Y., Peuget S., 2014. Swelling induced by alpha decay in monazite and zirconolite ceramics: a XRD and TEM comparative study. Journal of Nuclear Materials 448 (1-3): 184-194.

Geisler T., Pidgeon R.T., Kurtz R., Van Bronswijk W., Schleicher H., 2003. Experimental hydrothermal alteration of partially metamict zircon. American Mineralogist1945-3027.

Geisler T., Schaltegger U., Tomaschek F., 2007. Re-equilibration of zircon in aquesous fluids and melts. Elements 3(1).

Gerin C., Gautheron C., Olivieiro E., Bachelet C., Djimbi D.M., Seydoux-Guillaume A.M., Tassan-Got L., Sarda P., Roques J., Garrido F., 2017. Influence of vacancy damage on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scales. Geochimica et Cosmochimica Acta 197 : 87-103.

Li W, Shen Y., Zhou Y., Nan S., Chen C.H., Ewing R.C., 2017. In situ TEM observation of alpha-particle induced annealing of radiation damage in Durango Apatite. Nature Scientific Report 7: 14108.

Lian J., Dong Z., Wang L., White T., Ewing R.C., 2010. Ion irradiation-induced amorphization in vanadate-phosphate apatites. Microsc. Microanal. 16. Microscopy Society of America, 2010.

Meldrum A., Boatner L.A., Weber W.J., Ewing R.C., 1998. Radiation damage in zircon and monazite. Geochimica et Cosmochimica Acta 62 (14) : 2509-2520.

Ouchani S., Dran J.C., Chaumont J., 1997. Evidence of ionization annealing upon helium-ion irradiation of pre-damaged fluoroapatite. Nuclear Instruments and methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms 132(3) : 447-451.

Ouchani S., Dran J.C., Chaumont J., 1998. Exfoliation and diffusion following helium ion implantation in fluorapatite : implications for radiochronology and radioactive waste disposal. Applied Geochemistry 13 (6) : 707-714.

Seydoux-Guillaume A.M., Goncalvez P., Wirth P., Montel J.M., Heinrich W., 2002. Experimental resetting of the U-Th-Pb systems in monazite. Chemical Geology 191 (1-3) : 165-181.

Seydoux-Guillaume A.M., Paquette J.L., Wiedenbeck M., Deutsch A., 2003. Transmission electron microscope study of polyphasé and discordant monazites : site-specific spécimen préparation using the focused ion beam technique. Geology 31 (11) : 973-976.

Seydoux-Guillaume A.M., Wirth R., Deutsch A., Schärer U., 2004. Microstructure of 24-1928 Ma concordant monazites ; implications for geochronology and nuclear waste deposits. Geochimica et cosmochimica Acta 68 (11) : 2517-2527.

Seydoux-Guillaume A.M., 2011. Les effets de l'irradiation dans les minéraux et leurs conséquences en géochronologie. HDR, Univ. Paul Sabatier, Toulouse III, 130 pp.

Soulet S., Carpéna J., Chaumont J., Kaitasov O., Ruault M.O., Krupa J.C., 2001a. Simulation of the α-annealing effect in apatitic structures by He-ion irradiation : influence of the silicate/phosphate ratio and of the OH-/F- substitution. Nuclear Instruments and methods in Physics Research Section B : Beam interactions with Mzterials and atoms 184 (3) : 383-390.

Soulet S., Chaumont J., Krupa J.C., Carpéna J., Ruault M.O., 2001b. Determination of the defect creation mechanism in fluoroapatite. Journal of nuclear Materials 289 (1-2) : 194-198.

Soulet S., Carpéna J., Chaumont J., Krupa J.C., Ruault M.O., 2001c. Determination of the defect creation mechanism in the mono-silicated fluoroapaite. Disorder modeling under repository conditions. Journal of Nuclear Materials 299 (3) : 227-234.

Trachenko K.O., Dove M.T., Salje E.K.H., 2001. Atomistic modelling of radiation damage in zircon. Journal of Physics : condensed Matter 13 (9).

Trachenko K., Pruneda J.M., Artacho E., Dove M.T., 2005. How the nature of the chemical bond governs résistance to amorphization by radiation damage. Physical Reveiw B71 (18-1), 184104.

Weber W.J., Ewing R.C., Catlow C.R.A., de la Rubia T.D., Hobbs L.W., Kinoshita C., Matzke Hj., Motta A.T., Nastasi M., Salje E.K.H., Vance E.R., Zinkle S.J., 1998. Radiation effects in crystalline ceramics for the immobilization of high-level nuclear waste and plutonium. Journal of Material Research 13 (6).

PARTIE IV: APPLICATION GEOLOGIQUE A LA MARGE ALGERIENNE

CHAPITRE 7: EVOLUTION DE LA MARGE DE LA PETITE KABYLIE (ALGERIE)- APPORTS DE LA THERMOCHRONOLOGIE BASSE TEMPERATURE 319

1. INTRODUCTION : CHOIX DU SITE D'ETUDE 319

1. LA PETITE KABYLIE 322

2. CAP BOUGAROUN 328

3. A TORTONIAN ONSET OF THE ALGERIAN MARGIN UNDERTHRUSTING: FIRST EVIDENCE FROM LOW TEMPERATURE THERMOCHRONOLOGY 335

4. CONCLUSION GENERALE 356

5. BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 357

Chapitre 7: Evolution de la marge de la Petite Kabylie (Algérie)- Apports de la thermochronologie basse température

1. Introduction : choix du site d'étude

La chaîne des Maghrébides culmine à plus de 1000 m d'altitude (jusqu'à 4000 m au Maroc) en Afrique du Nord (figure VII-1). En effet, l'inversion de la marge africaine a donné lieu à la surrection des reliefs de l'Atlas et du Tell/Rif au Maghreb, ainsi qu'à la déformation du craton ouest africain. Le Maghreb est donc une zone qui a enregistré les différentes étapes de la géodynamique méditerranéenne.

L'Algérie a intéressé les géologues, notamment pour ses potentielles ressources pétrolières et minières (ex : Allais, 1957 ; Peterson, 1986 ; Boote et al., 1998 ; Bracene, 2002 ; Galeazzi, et al., 2010 ; Medaouri, 2014). Suite à l'occurence d'un séisme de magnitude 7 à El Asnam en 1980, la géodynamique du Nord de l'Algérie a renouvelé l'intérêt des tectoniciens et géophysiciens (King et Yielding, 1984 ; Kasser et al., 1987 ; Meghraoui et al., 1988). Puis le séisme de magnitude 6.7 de Boumerdès a contribué à d'autres études sismo-tectoniques (Deverchère et al., 2005 ; Babonneau et al., 2007 ; Yelles et al., 2009).

Plusieurs ensembles géologiques ont été étudiés en Algérie : le Hoggar dans la plateforme Saharienne (Bertrand et al., 1986 ; Dautria et Lesquer, 1989 ; Caby, 2003, Rougier 2012), l'Atlas Algérien (Outtani et al., 1995 ; Herkat, 1999 ; Herkat et Guiraud, 2006), les Maghrébides (Marmi et Guiraud, 2006), ou les Kabylies (Cohen, 1980 ; Saadallah et Caby, 1996 ; Peucat et al., 1996). Les régions offshore ont par ailleurs également été une zone d'intérêt en liaison avec la sismique pétrolière (thèse de Medouari, 2014 et de Arab, 2016; Arab et al., 2016).

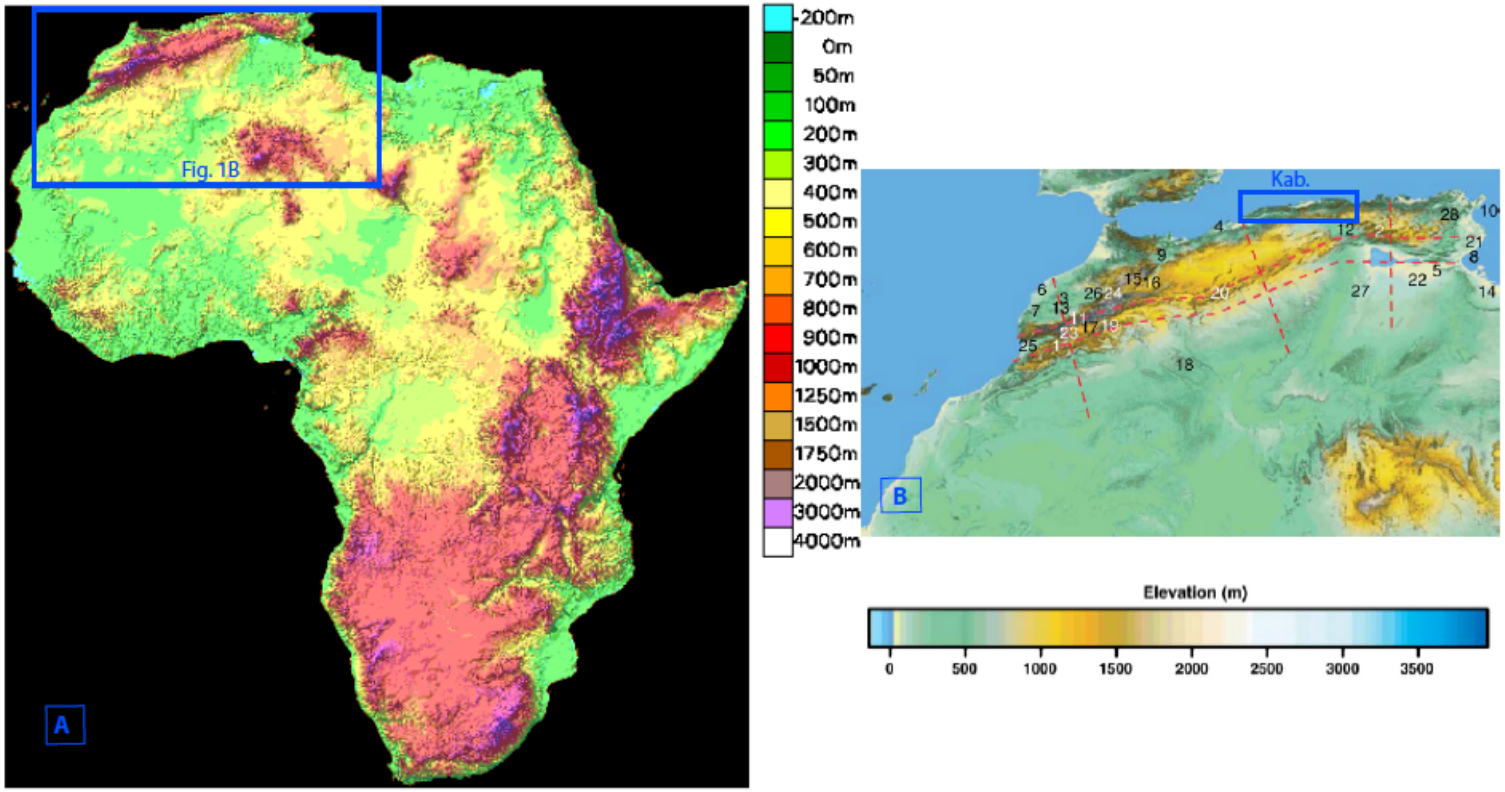


Figure VII-1: Carte topographique de l'Afrique (d'après Wallace G. Mills Hist. 322 et Michard et al., 2008)

La topographie de l'Afrique est marquée par des reliefs soutenus culminant à plus de 1000 m d'altitude (la chaîne des Maghrébides, le craton sud africain, le Hoggar en Algérie, et le rift éthiopien). Ces reliefs contrastent avec d'autres zones pénéplanées à basse altitude (<300m), comme le craton Ouest Africain et le craton du Congo.

La marge Algérienne a été sélectionnée pour notre étude car elle est en cours d'inversion tectonique. L'extension des bassins méditerranéens a laissé place à l'actuelle compression de l'Algérie sur le continent. L'évolution géodynamique de la Méditerranée est marquée par une rupture du slab, qui a lieu il y a 17 Ma sous l'Algérie. D'après les travaux de Davies et Blackenburg (1995) et de Blackenburg et Davies (1995), la rupture du slab est accompagnée d'une exhumation et de mouvements verticaux importants. Nous nous attendons donc à ce que la marge Africaine ait subi une évolution liée à ces mouvements. Le but de notre étude est donc de montrer une évolution des mouvements verticaux de la marge : depuis une ancienne subsidence des bassins jusqu'à l'actuelle remontée tectonique des chaînes.

Comme on l'a montré précédemment, la thermochronologie basse température permet de détecter de tels mouvements verticaux car la surrection liée à une compression tectonique peut être accompagnée d'un refroidissement et la subsidence liée à l'extension peut être suivie d'un réchauffement. Néanmoins, très peu d'études thermochronologiques ont été effectuées en Algérie, spécialement dans les Kabylies. Le but de ce chapitre est de pallier ce manque en acquérant des données traces de fission et (U-Th-Sm)/He sur apatite sur la marge Algérienne, dans les petites Kabylies. Ainsi, nous pourrons déterminer la chronologie de la surrection et de l'érosion de la marge algérienne, reliées à son inversion tectonique, et nous proposerons une évolution du relief des Kabylies.

1. La Petite Kabylie

Notre étude se concentre sur la Petite Kabylie, qui borde le Tell Algérien. L'évolution paléotectonique des Kabylies est documentée par Michard et al. (2006). Ces auteurs indiquent que trois modèles sont évoqués pour relater de l'évolution de la Kabylie. La chaîne des Bétiques et des Maghrébides est interprétée soit comme une zone de collision, soit comme un orogène relié à une unique subduction (plongeant vers le Nord depuis le Crétacé, de Gibraltar aux Appenins), soit comme un orogène relié à deux subductions (une des Alpes aux Bétiques plongeant vers le Sud-Est de la fin du Crétacé à l'Eocène ; et l'autre des Appenins aux Maghrébides plongeant vers le nord-ouest à partir de l'Oligocène).

Selon le modèle choisi, l'interprétation paléogéographique de la Petite Kabylie est différente. Dans le modèle mono-subduction, la Petite Kabylie appartient à la paléomarge Ibérique. Dans le modèle bi-subduction, représenté sur la figure VIII-1, les Kabylies font partie d'un bloc de croûte continentale intraocéanique, l'AlKaPeCa, incluant l'Alboran, les Kabylies, le Péloritain, et la Calabre. Ce microcontinent aurait initialement été rattaché au bloc Corso-Sarde et aux Bétiques, puis aurait migré et se serait accolé à la plaque Africaine sur la marge maghrébine (Bouillin, 1977, 1979 ; Guerrera et al., 1993 ; Michard et al., 2002). Lors de la migration, entouré des océans téthysiens et Africains, l'AlKaPeCa se serait fragmenté.

La collision entre les fragments de l'AlKaPeCa et le continent (Espagne, Afrique du Nord, marges adriatiques) aurait eu lieu d'abord entre l'Espagne et le Maroc (Michard et al., 2002), puis en Afrique du Nord il y a 15-19 Ma (Tricart et al., 1994 ; Vergès et Sabat, 1999 ;

Michard et al., 2002 ; Arab et al., 2016). Les Kabylies se seraient ainsi retrouvées accolées à la marge Algérienne, limitrophe du Tell (avant 17 Ma).

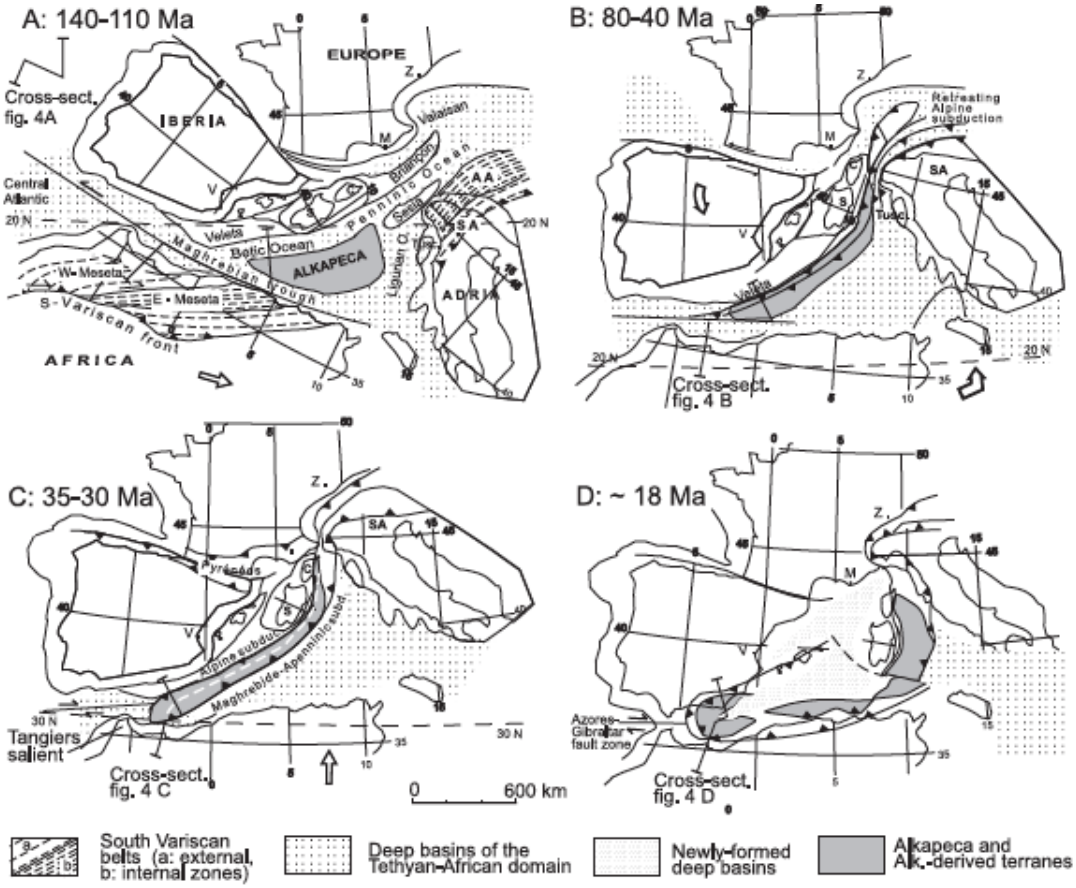


Figure VII-2 : Un modèle d'évolution de l'AlKaPeCa (Michard et al., 2002)

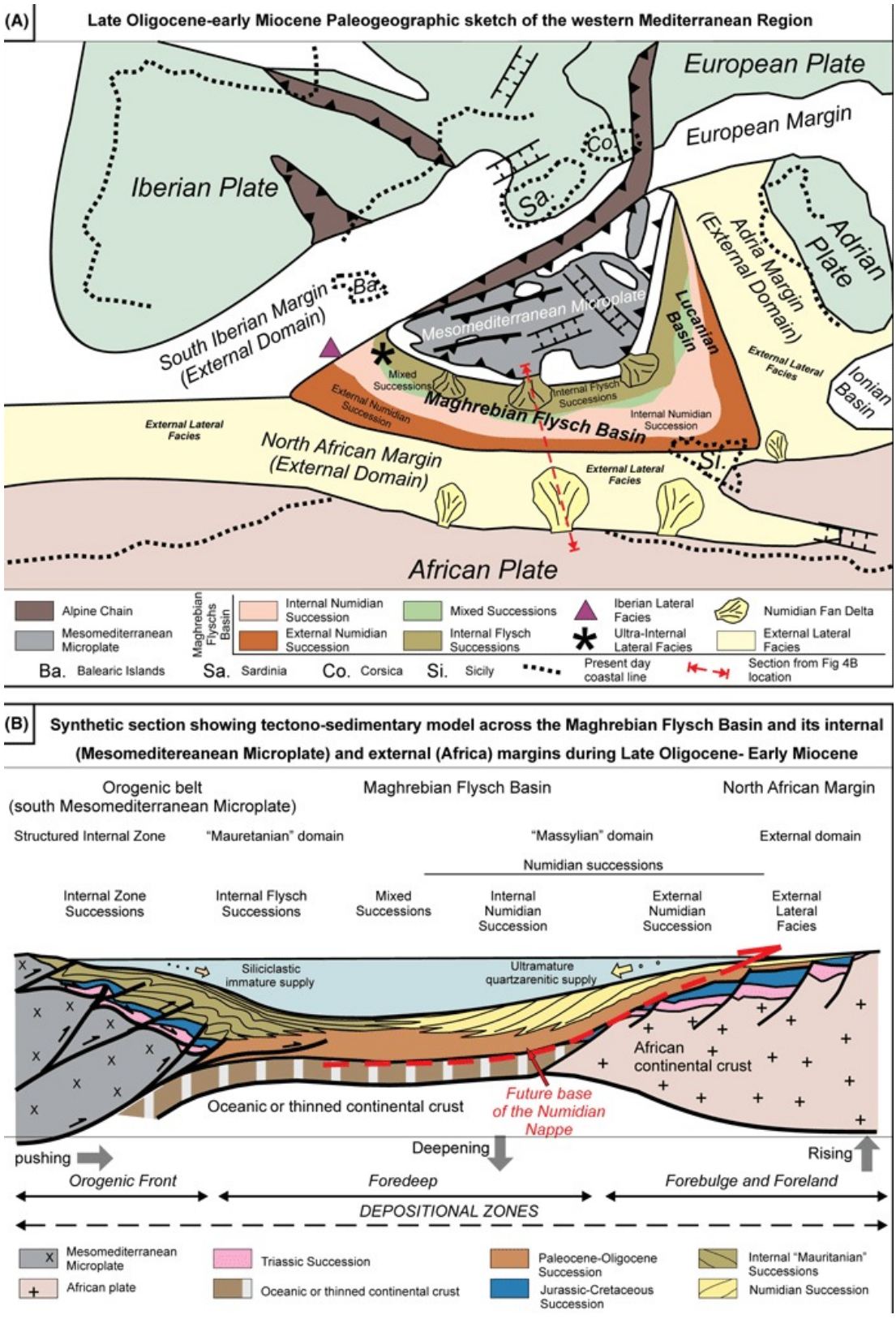


Figure VII-3 : Modèle tectono-stratigraphique du bassin des Flyschs Maghrébins (Guerrera et al., 2012)

L'évolution tectono-sédimentaire de l'Afrique du Nord a été décrite en détail par les travaux de Guerrera et al. (1993, 2005, 2012). Les Kabylies sont surmontées d'une succession de nappes de flyschs ayant sédimenté dans le bassin des Flyschs Maghrébins, qui s'est ouvert au Jurassique et au Crétacé après la rupture de la Pangée (Wildi, 1983 ; Bouillin, 1986). Après le Crétacé, ce bassin s'est séparé en deux domaines : le domaine Mauritanien et le domaine Massylien. La formation Numidienne, est constituée de dépôts allochtones très épais, issus d'un milieu marin profond de l'Oligocène au Miocène (d'âge Burdigalien en Afrique du Nord).

Selon Guerrera et al. (2012), le bassin des Flyschs Maghrébins représente un unique bassin, rempli par deux sources sur deux marges bien distinctes – le « bloc mésoméditerranéen » (i.e. l'AlkaPeCa) et la croûte continentale Africaine. La Figure VII-3 présente l'évolution paléogéographique de ce bassin.

Ces flyschs surmontent deux domaines de socle, magmatiques et métamorphiques. Le socle Kabyle comprend des phyllites Paléozoïques en faciès schistes verts surmontant des amphibolites (Benaouali et al., 2006 ; Abbassene, 2016). Il affleure dans la région de Jijel à l'Ouest et d'Annaba à l'Est sous forme des massifs de Béni Afeur, du Cap Bougaroun, et de l'Edough (voir carte figure VII-4).

La Kabylie de Collo est formée d'une série d'unités allochtones (Abbassene et al., 2016). Au Nord, l'unité de Bougaroun (encadrée dans la carte figure VII-4) est représentée par un massif de péridotites associées à des granulites (Roubault, 1934 ; Bouillin, 1977, 1979 ; Vila, 1980 ; Abbassene, 2016). Elles sont intrudées par des granites miocènes syn-orogéniques – dont le granite du cap Bougaroun qui nous intéresse ici. La couverture de ce socle est formée de la chaîne calcaire (datant du Permo-Trias à l'Eocène), reposant en contact anormal sur les flyschs. Ce complexe est formé d'une série de sédiments détritiques, d'une

épaisse plateforme carbonatée marneuse, et une fine couche pélagique (Benaouali et al., 2006).

Bouillin (1977) et Naak (1992) ont découvert des filons sédimentaires dans la dorsale calcaire algérienne, témoignant d'une tectonique distensive. Ceci est illustré également par la présence de failles normales, de veines, et de structures en échelon (e.g. Vitale et al., 2014 dans le Rif). Ainsi, la dorsale serait une ancienne marge passive liée au rifting théthysien (Cattaneo et al., 1987; Hatimi et al., 1991 ; Aite Mohamed et Gélard, 1997). Néanmoins, la chaîne calcaire est déformée, et son architecture montre une tectonique polyphasée (Vitale et al., 2014, 2015 dans le Rif). La compression est enregistrée par des stylolithes, ou de nouvelles failles inverses (Laubscher, 1976). Elle est datée au début du Miocène (période du Burdigalien au Langhien). La deuxième unité surmontant le socle est celle des flyschs maghrébins. Comme indiqué précédemment, ce sont des dépôts de mer profonde formés à partir du Crétacé, reflétant l'accrétion et la disparition de l'Océan Théthysien Maghrébin (figure VII-2).

A la fin de l'Oligocène (Abbassene et al., 2016), le socle de la Petite Kabylie émergé a été recouvert en discordance par des dépôts détritiques : l'Oligo-Miocène Kabyle (OMK, Bouillin et Raoult, 1971, Bouillin et al., 1973, en orange soutenu figure VII-4). Ces dépôts comprennent un conglomérat de base Oligocène à Aquitanien (Gelard et al., 1973), des grès micacés Burdigaliens (Géry et al., 1981), puis un olistostrome (Abbassene, 2016). Ce dernier est formé d'une matrice tendre argileuse, marneuse, ou pélitique, dans laquelle sont dispersés des débris de flysch Crétacés (Bouillin, 1973 ; Abbassene, 2016). Il s 'est formé lors de glissements sous-marins Aquitanien et Burdigalien des nappes de flyschs.

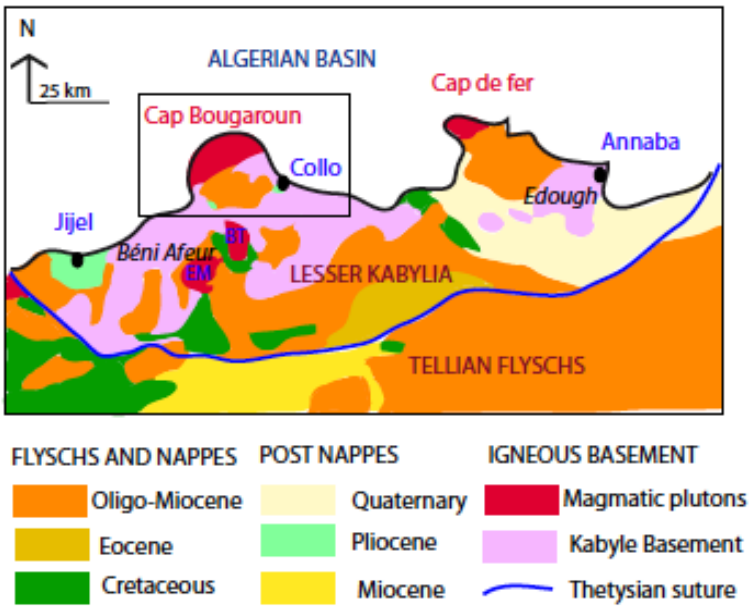


Figure VII-4 : Carte géologique de la Petite Kabylie

et localisation du pluton de cap Bougaroun (d'après Abbassene et al., 2016).

Le socle Kabyle (en rose) affleure sous forme des massifs de Béni Afeur (près de Jijel), de Cap Bougaroun, et de l'Edough (près d'Annaba, à l'Est). Des intrusions magmatiques affleurent : le Cap Bougaroun et le Cap de fer, ainsi que Béni Touffout (BT) et El Milia (EM). L'oligo-miocène kabyle, les flysch crétacés à éocènes, et les flysch numidiens miocènes surmontent le socle (en vert et orange). Des Dépôts post-nappes sont restreints mais présents (ex : région de Jijel).

L'OMK est contemporain de la partie supérieure allochtone constituée des Flyschs Numidiens. Ces derniers sont surmontés de sédiments miocènes, comme dans la région de Jijel et d'El Ouloudj (proche de Collo), dus au charriage des nappes Sud-telliennes (Abbassene, 2016). Ces dépôts sont actuellement déformés, étant affecté par un rétro-chevauchement de grande ampleur dans les Kabylies (Benaouali et al., 2006) qui a eu lieu au Langhien-Serravalien (Vitale et al., 2015). Finalement, les nappes exhumées et les molasses de l'OMK sont surmontées de sédiments marins du Langhien-Serravalien, comme à Tizi-Ouzou (Benaouali et al., 2006).

C'est également au Miocène qu'à lieu le magmatisme ayant donné naissance aux différentes intrusions de granite de la Petite Kabylie (en rouge sur la carte figure VII-4) : le Cap Bougaroun il y a 17 Ma (Bellon, 1976 ; Abbassene et al., 2016), le Cap de Fer et sa région magmatique il y a 17-15 Ma (Laouar et al., 2005 ; Marignac et al., 2016) et le massif de Béni Touffout (Ouabadi, 1994 ; Fourcade et al., 2001). Ce magmatisme Miocène est observé sur plus de 1200 km le long d'un linéament magmatique allant du Maroc à la Tunisie (Ouabadi et al., 1992 ; Chazot et al., 2017). Plus à l'Est, dans l'Edough, des leucogranites et des péridotites à composante asthénosphérique ont été exhumés au sein du socle il y a 18 Ma (Bruguier et al., 2009). Le magmatisme et la déformation de la marge au néogène sont donc très actifs et donnent la géométrie actuelle de la Petite Kabylie.

2. Cap Bougaroun

Le granite du Cap Bougaroun est le plus grand pluton de Petite Kabylie et même des Maghrébides (200 km^2 selon Bouillin, 1979, 1983). Il est intrudé dans : (i) le socle de Bougaroun (en rose figure VII-4), (ii) les flyschs maghrébins (en vert figure VII-4), et (iii) l'oligo-miocène Kabyle surmonté des Flyschs numidiens allochtones (en orangé figure VII-4). Les roches ignées incluent : (i) le granite de Cap Bougaroun (figure VII-4), étudié ici (section 4), à large grains, (ii) des intrusions mafiques (gabbros, dolérites, en bleu figure VII-4) et ultramafiques (péridotites, en noir figure VII-4) mineures bordant le massif au Nord et à l'Est, et (iii) des microgranites felsiques à l'Est (en rouge figure VII-4).

Grâce à des collaborations avec Aziouz Ouabadi, Nachida Abdallah et Fatiha Abbassene, nous avons pu récupérer quatre échantillons rocheux du granite du Cap Bougaroun, et quatre autres échantillons broyés contenant des apatites. L'emplacement des échantillons est localisé sur la figure VII-5 par des étoiles. Selon Abbassene et al. (2016), les échantillons CB32 et CB27 sont respectivement une granodiorite et un granite. Sur les quatre

échantillons rocheux, nous avons effectué des lames minces à partir desquelles les roches ont pu être classées selon la nomenclature de Streckeisen (1974).

Deux faciès lithologiques sont distinguables (figure VII-6). Trois échantillons sont des granodiorties à gros cristaux (3-5 mm), contenant 65 à 90% de feldspaths plagioclases par rapport aux feldspaths potassiques. L'échantillon CB54 est un granite rose à cristaux fins, classé en tant que syénogranite car il contient 65 à 90% de feldspaths potassiques par rapport aux feldspaths plagioclases.

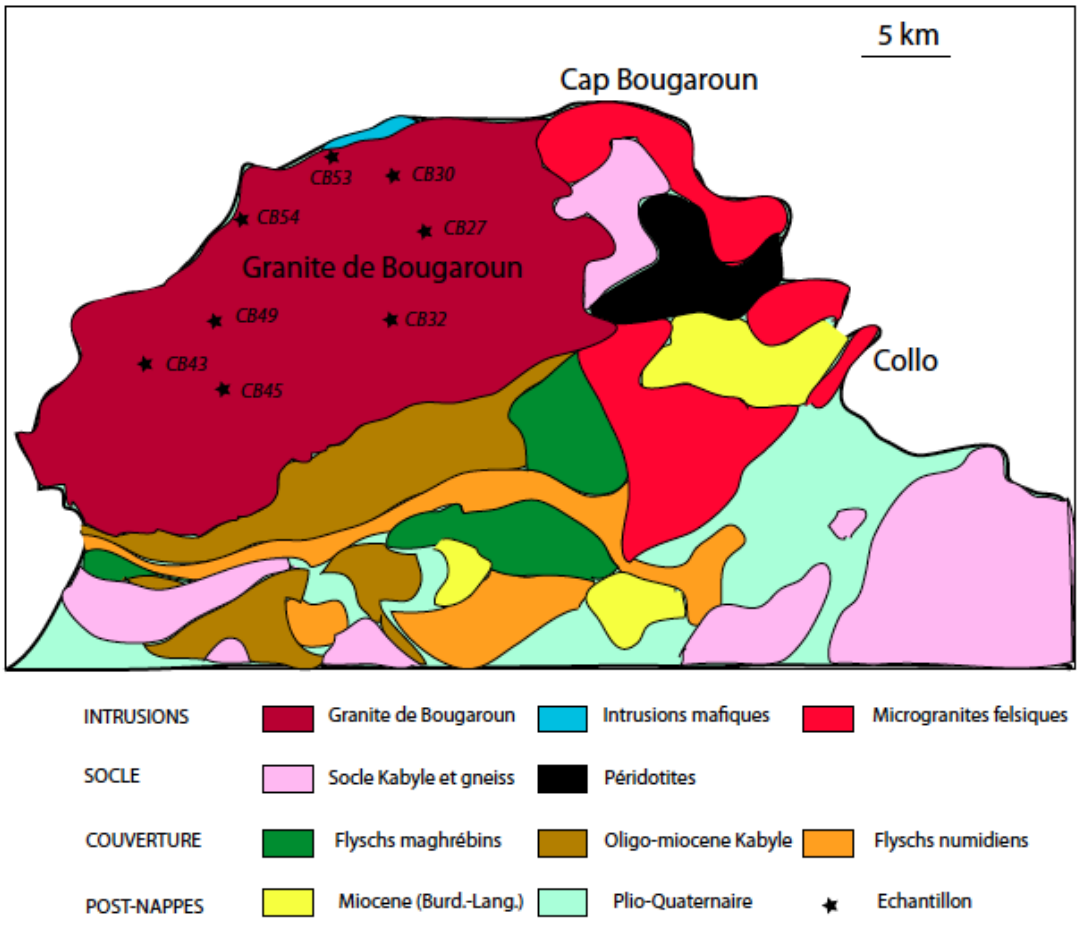


Figure VII-5 : Carte géologique du massif de Cap Bougaroun

(d'après Abbassene et al., 2016).

Le granite de Bougaroun et d'autres intrusions miocènes recoupent le socle et sa couverture déformée (flysch maghrébins, OMK, Flyschs numidiens). Il est donc post-collisionnel. Les sédiments postérieurs à la déformation sont des sédiments du Burdigalien au Langhien, et plio-quaternaire.

Pétrographiquement, la texture des granodiorties est grenue, porphyroïde. Les cristaux automorphes de feldspaths contiennent des inclusions xénomorphes de quartz. Les cristaux subautomorphes de biotite incluent des minéraux accessoires (ilménites, apatites, zircons). De la cordiérite a été observée dans les granodiorites, mais est complètement altérée et remplacée par des paillettes de pinnite et de muscovite. Cette dernière est rare (<3%), et est issue de la déstabilisation de la biotite et de la cordiérite (Ouabadi, 1994).

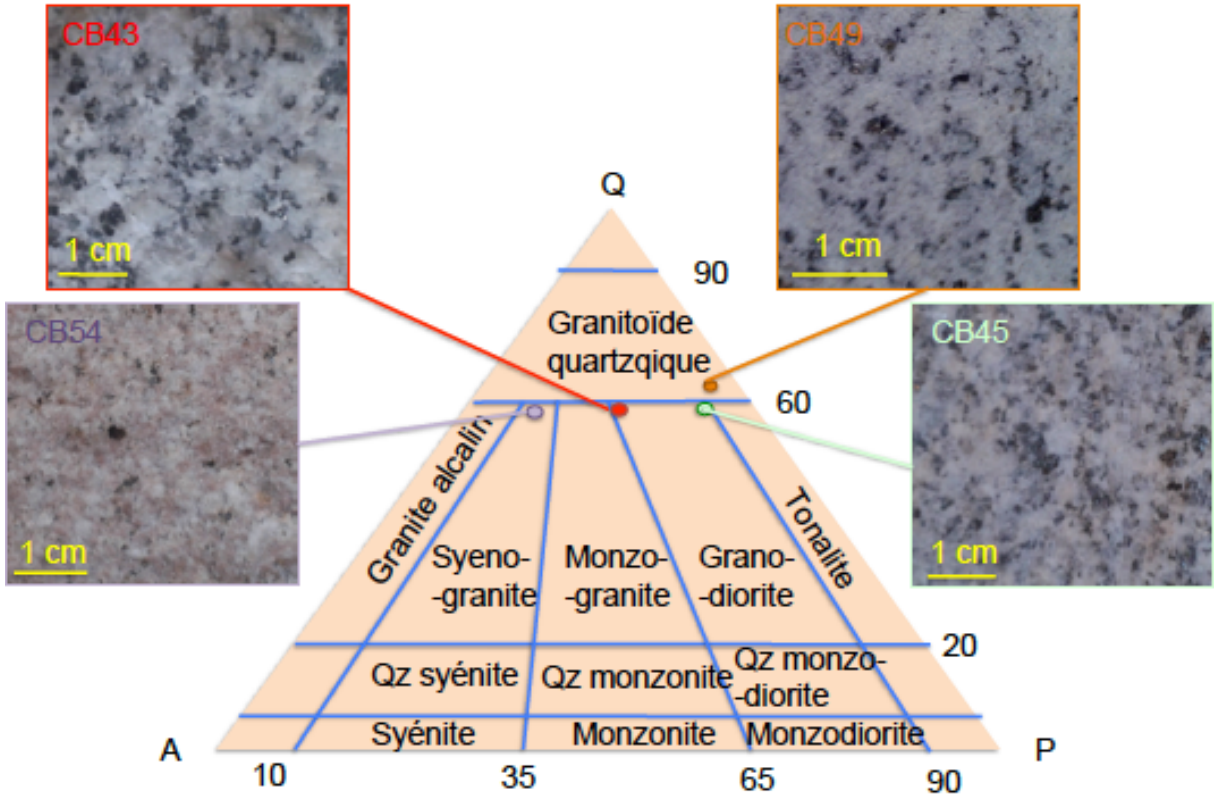


Figure VII-6: Classification de Streckeisen des granites de Cap Bougaroun (d'après Streckeisen, 1974)

La classification des échantillons du Cap Bougaroun a été effectuée grâce aux reconstitutions photographiques des lames minces, en quantifiant l'aire représentée par chaque minéral grâce au logiciel Image J (voir chapitre 2).Q,P, A= proportion de Quartz, plagioclases, et feldspaths alcalins. Dans les échantillons collectés, l'on distingue deux lithologies : certaines roches se rapprochent de la granodiorite (échantillons CB43, CB49, CB45) tandis que d'autres sont des syénogranites (CB54).

Ouabadi (1994) a effectué une étude minéralogique et pétrographique du massif de Bougaroun. Il en a déduit la séquence de cristallisation suivante, illustrée figure VIII-5 :

- phase précoce de cristallisation des ilménites, puis zircons et apatites, et enfin des biotites ;
- phase principale conduisant à la croissance des minéraux automorphes de biotite, plagioclase, puis feldspath potassique, quartz, et cordiérite ;
- phase tardive d'altération conduisant à la pinnitisation des cordiérites, la séricitisation des feldspaths, la chloritisation partielle des biotites, et leur altération en muscovite.

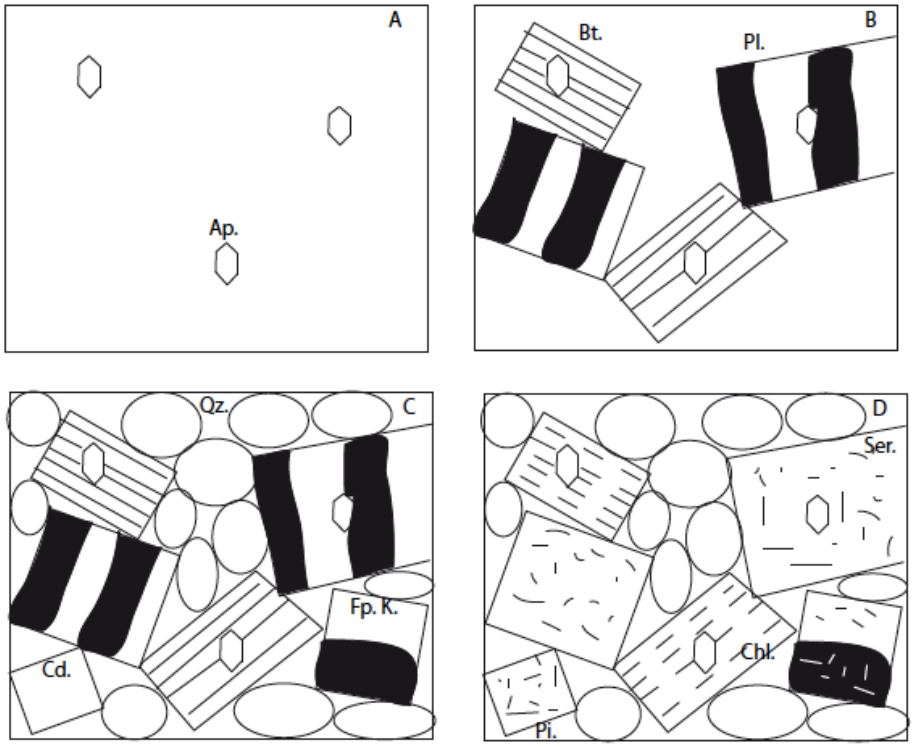


Figure VII-7: Séquence de cristallisation.

A : Phase précoce de cristallisation des minéraux accessoires (ilménite, apatite, zircons). Ap.=apatite. B : Phase principale de cristallisation des biotites (Bt.) et des plagioclases (Pl.) automorphes. C : Cristallisation de la cordiérite (Cd.), des feldspaths potassiques (Fp. K.), puis des quartz (Qz.) D : Phase tardive d'altération : pinnitisation (Pi.) de la cordiérite, séricitisation (Ser.) des feldspaths, altération des biotites en muscovite et chlorite (Chl.).

Le granite du Cap Bougaroun déforme les sédiments de l'OMK, et est entouré de trois auréoles de métamorphisme (Bouillin, 1977, 1983 ; Ouabadi, 1994) : une zone à cordiérite/andalousite/biotite, une zone à cordiérite/biotite, et une zone à cordiérite seule. La pression de la première auréole est estimée à <0.3 GPa (Ouabadi, 1994 à Béni Touffout ; Festa et al., 2013). Ouabadi (1994) suggère donc que le magma a été mis en place superficiellement.

Comme indiqué précédemment, au sein du massif, les granites incluent également de la cordiérite. Néanmoins, contrairement au massif de Béni Touffout, la cordiérite du granite de Cap Bougaroun est automorphe (prismatique) d'origine magmatique (Ouabadi, 1994). Comme illustré figure VII-7, cette cordiérite est altérée en pinnite et en muscovite tardivement.

Etant donné que le granite de Cap Bougaroun intrude l'OMK, que les flyschs sont déformés ainsi que le socle métamorphisé, le magmatisme est post-collisionnel (Maury et al., 2000 ; Coulon et al., 2002 ; Chazot et al., 2017). La datation des granitoïdes suggère un âge de 17 Ma (Abbassene et al., 2016). Le granite du Cap Bougaroun est donc l'intrusion la plus ancienne de la chaîne des Maghrébides (Maury et al., 2000), comparé aux intrusions de Tunisie (14-8 Ma) et du Maroc (12-5 Ma).

Les granites du Cap Bougaroun ont une forte ressemblance géochimique avec les magmas calco-alcalins peralumineux des zones de subduction. La chimie du granite du Cap Bougaroun indique une importante composante crustale. Certains gabbros entourant le massif ont eux une empreinte mantellique, et sont caractéristiques d'un magma formé en subduction. Actuellement, et depuis la fin du Miocène (voir figure VII-2), la subduction sous l'Algérie et le Maghreb n'est plus active. En effet, comme le montre la sismique (Fichtner et Villasenor, 2015), le slab Africain s'est détaché et est présentement coupé en deux segments à 250-300 km sous la côte Algérienne.

Comme suggéré par Davies et Blackenburg (1995) et Blackenburg et Davies (1995), la rupture du slab engendre une remontée mantellique et asthénosphérique qui crée du magmatisme dans la plaque chevauchante. Ainsi, Maury et al. (2000), Coulon et al. (2002), et Abbassene (2016) suggèrent que le magmatisme des Maghrébides et du Cap Bougaroun est relié au détachement du slab il y a 17 Ma. La remontée asthénosphérique engendre la métasomatisation et quelques fois la fusion du manteau Kabyle métasomatisé et produit des magmas calco-alcalins et basaltiques (Maury et al., 2000). Ce flux aurait facilité l'assimilation crustale. La rupture du slab aurait eu lieu en premier en Algérie, donnant lieu à l'intrusion du Cap Bougaroun, puis la déchirure se serait propagée vers la Tunisie à l'est et vers le Maroc à l'ouest (Maury et al., 2000).

3. A Tortonian onset of the Algerian margin underthrusting: first evidence from low temperature thermochronology

Auteurs:

Alice Recanati[1]*, Yves Missenard[1], Cécile Gautheron[1], Jocelyn Barbarand[1], Rémi Leprêtre[2], Fatiha Abbassene[3], Nachida Abdallah[3], Aziouz Ouabadi[3], Mohamed Derder[4], Claire Boukari[1], Rosella Pinna-Jamme[1], Frédéric Haurine[1]

(1) GEOPS, Univ Paris Sud, CNRS, Université Paris-Saclay, Rue du Belvédère, Bât. 504, Orsay, F-91405, France

(2) Université Cergy Pontoise, Département Géosciences et Environnement, Maison Internationale de la Recherche, 1 rue Descartes, 95000 Neuville-sur-Oise, France

(3) LGGIP/FSTGAT, Univ. des sciences et de la technologie Houari Bourmedienne, BP 32, El Alia Bab Ezzouar, Algiers, Algeria.

(4) CRAAG, BP 63, Bouzaréah, 16340, Algers, Algeria.

* corresponding author

alice.recanati@u-psud.fr

In preparation for: Terra Nova

Keywords: Algerian Margin, Apatite, Thermochronology (U-Th-Sm)/He

Résumé :

La marge Nord Algérienne est constituée de plusieurs chaînes de montagnes – l'Atlas, le Tell, et les Kabylides – resultant de la convergence tradi-Crétacée et Cénozoïque entre les plaques Afrique et Eurasie. La compression de l'Atlas s'est déroulée en deux phases, une à l'Eocène et la seconde pendant la période Plio-Quaternaire. Les nappes du Tell ont été mises en place sur la plaque Afrique pendant le Miocène. Cependant, l'évolution en termes de mouvements verticaux de la marge algérienne reste mal connue, en particulier en raison en l'absence de données thermochronométriques. Pour apporter des contraintes sur la denudation associée à la création de relief dans cette region, nous avons daté le granite de Bougaroun, en Petite Kabylie (Algérie) par la thermochronométrie basse temperature traces de fission (AFT) et (U-Th-Sm)/He sur apatite. Les âges AFT sont compris entre 7±1 et 10±1 Ma, alors que les âges AHe moyens vont de 8±2 à 10±1 Ma. L'inversion des données AFT et AHe montre une phase rapide d'exhumation au Tortonien, suivie d'une période de quiescence Plio-Quaternaire. Nous interprétons ce résultat comme un premier témoin d'une phase d'inversion des Kabylides, complétant le calendrier de la compression du Nord de l'Algérie.

Abstract:

The North Algerian Margin is constituted of several mountain ranges – the Atlas, Tell, and Kabylides- resulting from the Late Cretaceous and Cenozoïc convergence between Africa and Eurasia plates. The compression of the Atlas occurred in two phases, one at the Eocene and the second during the Plio-Quaternary period. The Tell nappes were docked on the African plate during the Miocene. However, the evolution of the relief of the Kabylides is poorly understood yet, due to the lack of information about this region. In order to provide information about denudation associated with relief creation in this region, we perfomed a low temperature thermochronometric apatite fission tracks (AFT) and (U-Th-Sm)/He (AHe)

study in the Bougaroun granite within the "Lesser Kabylia" (Algeria). Central AFT dates range between 7±1 and 10±1 Ma, whereas mean AHe dates lie between 8±2 Ma and 10±1Ma. Thermal inversion of the AFT and AHe dataset evidences a rapid exhumation step during the Tortonian times, followed by Plio-Quaternary quiescence. We interpret this result as an early onset of inversion of the Kabylides, challenging the compression chronology in Northern Algeria.

Introduction

Western Mediterranean geodynamics has been studied for more than 20 years and is now relatively well constrained (Gueguen et al., 1998, Carminati et al., 1998, 2012; Spakman et al., 2004; Jolivet, 2008). The N-S convergence between Africa and Eurasia began in Late Cretaceous and shaped the Mediterranean area, a major subduction zone. The opening of the offshore back-arc basins (e.g. Alboran, Algerian, Provençal, and Ligurian basins) took place in the Late Oligocene-Miocene periods (Gueguen et al., 1998). The subduction history reveals to be complex, involving roll-back, and finally large-scale slab tearing. The Tethyan slab retreated during the Oligocene, and then migrated southward, so as it underwent lateral tearing westward and eastward.

The breaking of the subducting slab enables the asthenosphere to rise and heat/melt the overidding lithosphere, as inferred by Davies and Blackenburg (1995). A >1000 km long succession of magmatic rocks lies in Northern Africa, which geochemistry and petrology expresses the slab breakoff (Maury et al., 2000; Coulon et al., 2002; Chazot et al., 2017). In Northern Algeria (Figure VIII-8B), more especially in the Lesser Kabylia (Petite Kabylie), Beni Touffout, El Milia, and Bougaroun emplaced during slab breakoff, which occurs ~17 Ma ago (Ouabadi, 1994; Fourcade et al., 2001; Abbassene et al., 2016).

The margin inversion occurred, at least since the Pliocene-Quaternary period (Leprêtre et al., 2013; Arab et al., 2016). However, whereas the origin and evolution of the Algerian

margin is one of the unanswered question in Western Mediterranean geodynamics (Leprêtre et al., 2013), very few studies exist about uplift and denudation history in Northern Africa (except Azdimousa et al., 2013 and Romagny et al., 2014 in the Moroccan Rif; Azdimousa et al., 1998 and Barbero et al., 2011 in the Moroccan Meseta; and Arab, 2016 in Djurdjura in Algeria). Additionally, no post-Langhian sediment outcrops in the Lesser Kabylia (Arab 2016, and references therein). Therefore, the vertical movements of the Northern Algerian margin are poorly constrained.

In the present work, we propose to investigate the chronology of exhumation in the Bougaroun-Collo massif (Lesser Kabylia, Figure VIII-8B), using apatite fission track (AFT) and (U-Th-Sm)/He (AHe) thermochronology and associated thermal modeling using QTQt modeling (Gallagher, 2012). Those methods allow to determine the thermal history of rocks, and to quantify rock exhumation in the 40-120°C range (Gallagher et al., 1998; Gautheron et al., 2009; Djimbi et al., 2015) To our knowledge, no such combination of AHe and AFT dataset were acquired in the Algerian Margin, while it would improve significantly the knowledge of the geodynamical evolution of the region. The present data therefore allows discussing the Northern Algerian margin inversion, and determining for the first time the chronology of the exhumation of the Lesser Kabylia.

Geological setting

The Mediterranean basin is delimited by a system of mountain ranges built during the Alpine orogeny due to the convergence of Africa-Arabia plates toward Eurasia. Among them, the Maghrebide belt extends over >2000 km between the Gibraltar Arc and Sicily (Durand-Delga, 1980). It includes the Betico-Rifan cordillera, the Algerian-Tunisian Tell (Wildi, 1983), and the Calabro-Sicilian arc (Figure VIII-8). The Tell-Rif is composed of three major units: an intern domain constituted of elements from the Alboran plate, a flysch domain, and an external domain composed of elements from the African continent (Wildi, 1983). The Tell

is parallel to the coast, and bounds Algeria to the North (Medaouri et al., 2014). This range comprises from South to North: (i) the foreland, constituted by the Algerian Hauts Plateaux to the west and the Atlas belt to the east, (ii) the Tellian units issued from the former Southern Tethyan margin, (iii) the flychs nappes, and (iv) the Kabylian basement (Greater and Lesser Kabylia).

The chronology of deformation events within North Africa began in the Late Cretaceous by the initiation of Africa/Eurasia convergence (Santonian; Rosenbaum et al., 2002). It was responsible for a first intraplate shortening event in the Atlas range during Eocene, the so-called atlasic phase (Laffite, 1939; Frizon de Lamotte et al., 2000). The opening of the « Golfe du Lion » and Algero-Provençal basins started during early Oligocene, at the back of the Corse/Sardaigne/Baléares volcanic Arc (Jolivet, 2008). The Tell Nappes were emplaced during the Middle and the Late Miocene (Wildi, 1983; Benaouali et al., 2006).

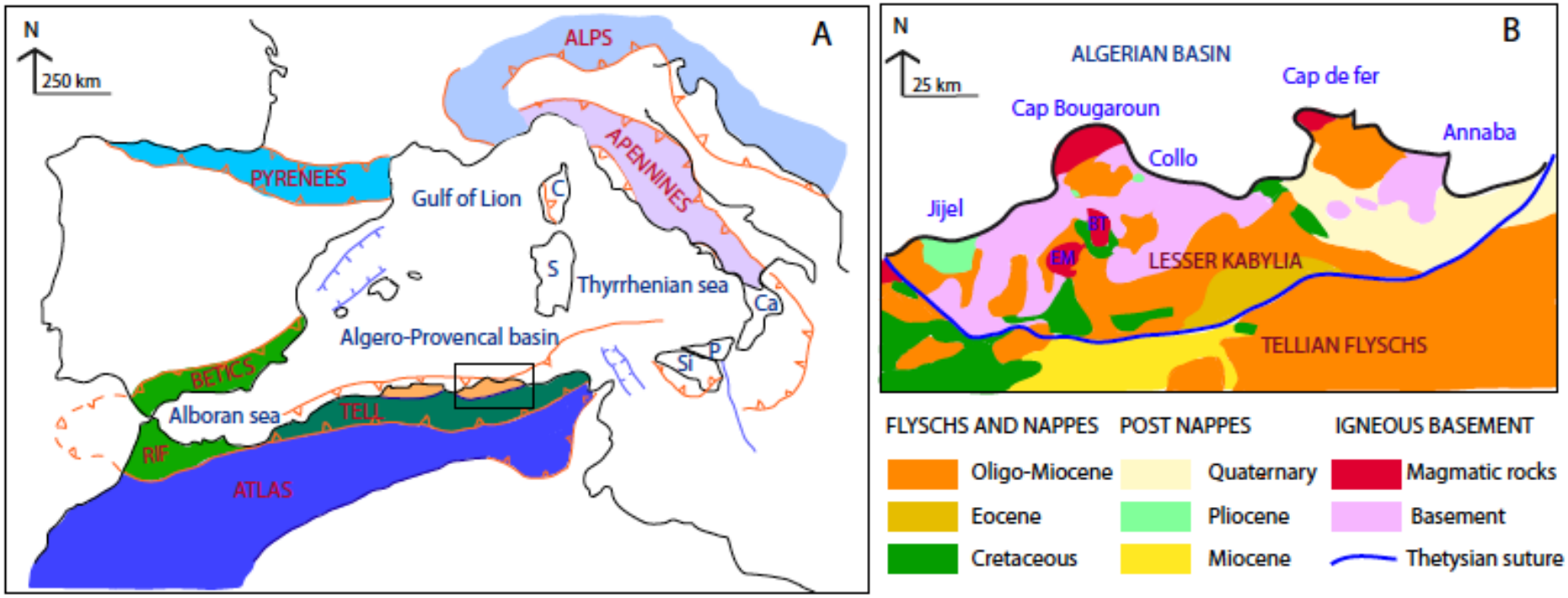


FIGURE VIII-8: Geological setting of the Cap Bougaroun intrusion.

(A) Regional map of Western Mediterranean ranges, and location of Petite Kabylie. Modified from Arab et al. (2016).

(B) Geological map of Petite Kabylie, and location of the Cap Bougaroun pluton. Modified from Medaouri (2014). EM: El Milia. BT: Beni Touffout

A Plio-Quaternary compression regime in the Tell/Atlas, coeval with a decrease in the African plate speed, was then responsible for a last deformation phase of the Atlas system (Frizon et al., 2008).

The different parts of the AlKaPeCa (Alboran Kabylie Pelloritan Calabria, Bouillin et al., 1986), are composed of continental crust, that moved for more than 10 Ma over 2000-3000 km with the subduction front, to finally accrete to the former South-Tethys Margin during the Burdigalian (Guerrera et al., 1993; Abbassene et al., 2016). The Lesser Kabylia may have been affected by compression at least since the Plio-Quaternary period, given the inversion of the Algerian margin at that time (Deverchère et al, 2005; Strzerzynski et al., 2010; Leprêtre et al., 2013; Medaouri et al., 2014; Arab et al., 2016).

The Lesser Kabylia is mainly constituted of a magmatic and metamorphic basement along with Paleozoic metasediments. The Kabylie is unconformably overlain by the detrital "Oligo-Miocene Kabyle" (Figure VIII-8), which is Late Oligocene to Burdigalian (Géry et al., 1981). Following Arab et al. (2016), Langhian to Tortonian formations rest on top of the Oligo-Miocene Kabyle offshore. These deposits are syn-rift and correspond to the formation of the first back-arc basins. Along the southern boundary of Greater Kabylia (Arab et al., 2016), these post-collisional formations are composed of Langhian breccia, Serravalian grey marls, and Tortonian shales with gypsum and oysters at the base, evolving toward continental sandstones at the top of the series. However, only Langhian sediments remain onshore in Collo (Arab et al., 2016).

The two largest magmatic massifs of Algeria occupy the extreme northern part of the Lesser Kabylia: Cap Bougaroun and Chetaïbi-Cap de Fer (Figure VIII-8). The Miocene Bougaroun massif is located in the region of Collo (extensively studied by Bouillin, 1977), and extends over >200 km^2. While the rest of the North Algerian coast is dominated by intense andesitic volcanism, the geochemistry of the Lesser Kabylia magmatic plutons is

similar to several other series within the Maghrebide range (South-East Spain, Petite Kabylie, Tunisia, Tuscany). Following Ouabadi et al. (1992; 1994), the Bougaroun pluton is composed of granodiorites and monzogranites S-type rocks, associated with continental collision processes. U-Pb and K-Ar datations (whole rock and separated minerals) suggest a cooling age of 17±0.5 Ma (Abbassene et al., 2016), close to the dating of the neighbouring El Milia microgranite (16.5±0.8 Ma, Bellon, 1976, Bellon et al., 1977). The Bougaroun pluton now outcrops at 0-800 m above sea level.

Low temperature thermochronology and thermal modelling

Four samples (CB53, 27, 32 and 49), located at elevations ranging from sea level to the top of the Bougaroun Massif (i.e 900 m a.s.l.) (Table SI1 in the supplementary data), were analyzed by AFT and AHe methods (see supplementary methods for analytical details). AFT results are presented in Table SI3 and Figure SI2 (supporting information). Central AFT age range from 7±1 Ma to 10±1 Ma, and mean Dpar is 1.2±0.1 to 1.6±0.2. AHe data are presented in Table SI2 (supporting information). Single-grain AHe dates vary between 5±0 Ma to 12±1 Ma and mean AHe date ranges from 8±1 Ma (CB53) to 10±1 Ma (CB49). Thus, AFT and AHe ages are younger than rock emplacement age of 17 Ma (Abbassene et al., 2016).

We ran numerical simulations using the QTQt software (Gallagher, 2012) to extract a thermal in order to quantify more precisely the exhumation rate. Indeed, QTQt enables to inverse the dataset, defining a suite of thermal histories that reproduce the thermochronometric dates. The whole dataset (AHe and AFT) was inverted for each sample, using the annealing model of Kecham et al. (2007) and the Gautheron et al. (2009) radiation damage model. The results (thermal history and simulated AHe dates) are provided in Figure VIII-9 for sample CB53 and in Figure SI2 for the other samples (Supplementary information). Two constraints on the temperature/time history were used: (i) the pluton is at present surface temperature of 20±10°C, and (ii) the pluton has formed at high temperature ~17 Ma ago

(Abbassene et al., 2016) and stayed at ≈200±25°C for <10Ma. Other information about the modeling procedure can be found in the supplementary informations.

Discussion

Cooling history

The absence of correlation between AHe dates and eU, Rs, and altitude (Figure SI1 in Supp. Data) evidences a short stay in the helium partial retention zone. Pluton cooling was thus rapid, and can result from: (i) magmatic decrease in rock temperature at depth, or (ii) decrease of sedimentary cover thickness by erosion, i.e rock exhumation.

The AFT and AHe dates reflect the age of cooling of the rock below 60-120°C and 40-80°C respectively. Therefore, our data indicate that the pluton has cooled below these temperatures during the upper Miocene (Tortonian-Messinian). The inverse simulation of the dataset confirms this, and enable to precise and quantify the exhumation date and rate for each sample.

Two constraints were used for the inverse simulation: (i) from the U-Pb age we can deduce that the pluton was hot (>800°C) 17 Ma ago ; (ii) from the whole rock K-Ar age we infer that the pluton has cooled below 400-200°C 15 Ma ago. The modeled thermal history predicts a rapid cooling episode between 9 Ma and 8 Ma (Figure VIII-9B) for each sample. The Cap Bougaroun pluton thus was cooled rapidly (in 1 Ma), during Tortonian times. Following Ouabadi et al. (1992), this pluton was emplaced at shallow crustal levels (thermobarometric analyses of the Beni Touffout massif envision maximum pressures of 3 kbars, yielding depths less than 10 km), and now outcrops at surface levels. We thus interpret the cooling episode as a major exhumation or denudation event during the Tortonian times. The pluton then stayed near the sub-surface since the Pliocene (Figure VIII-9B).

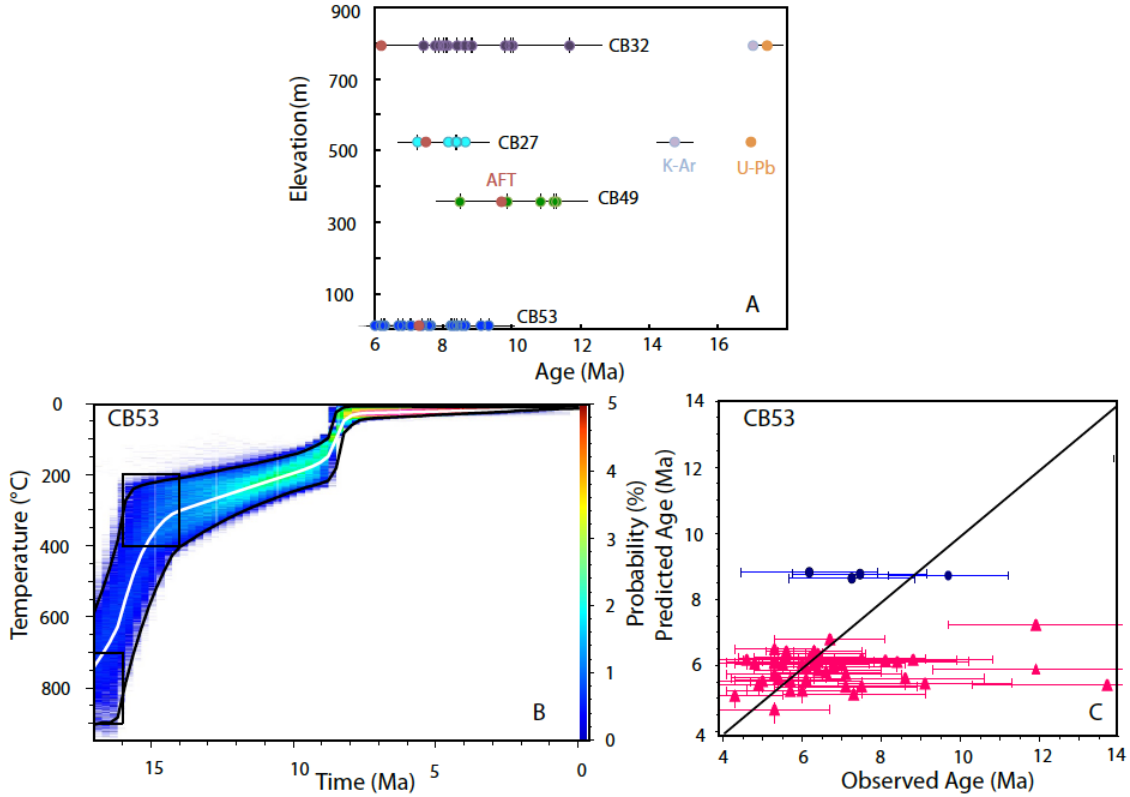


FIGURE VIII-9: Thermochronological results and thermal history modelling

(A) Age/elevation results. : U-Pb and whole rock K Ar dates are from Abbassene et al. (2016). AHe and AFT date: this study.

(B) Thermal history of CB53 issued from inverse simulation

(C) Predicted Ages against observations. Blue: AFT. Red: AHe.

Origin of the Tortonian exhumation phase: a consequence of slab breakoff?

Slab breakoff occurred in Petite Kabylie ~17 Ma ago (Abbassene et al., 2016), causing asthenospheric rise and magmatism leading to Cap Bougaroun granites emplacement. Using theoretical models, Bercovici et al. (2015) predicts that slab detachment is rapid (occurs within 1 Ma). Davies and Blackenburg (1995) propose a geological model explaining the combination of magmatism, exhumation of metamorphic rocks, and uplift by a previous slab breakoff. Therefore, they suggest in several mountain ranges that uplift is a consequence of slab breakoff.

Several authors modeled the duration and the displacement amplitude related to an putative isostatic uplift, by analogical or numerical simulations. Buiter et al. (2002) suggest that surface uplift would be extremely large (maximum 2-6 km), and would occur very quickly (< 100 000 years) after slab detachment. This short duration was also suggested by Chatelain et al. (1992), while Duretz et al. (2012) and Bercovici et al. (2015) propose a general uplift in a maximum timespan of ≈5 Ma. The uplift magnitude is generally high enough to be observed in the scenery, as in northern Central America (Rogers et al., 2002).

Given these works, we may expect an exhumation event in Kabylia, rapidly after 17 Ma. Such an event would be visible in the thermal history, marked by a sudden cooling event shortly after magma generation (17 Ma ago). As illustrated in Figure VIII-9B, the inverted thermal history of Petite Kabylie does not record any cooling phase from 17 to 10 Ma. The exhumation detected by our dataset begins ~8-9 Ma ago after slab tearing, during the Tortonian times. We thus believe that this phase is too late to be related to the Tethysian slab detachment.

Our thermochronometric dataset does not record the history prior to 10 Ma ago. Indeed, the pluton was too hot (>200°C) at this period. Thus we cannot study the vertical

movements prior to 10 Ma ago. This is why we do not detect any uplift related to the slab detachment. There may have been such vertical movements, but our methodology cannot detect it. Higher temperature thermochronometers might be useful to detect such uplift. For instance, Carminati et al. (1998) evoques U-Pb ages on monazite of 18 Ma, and Ar-Ar mica ages of 17-16 Ma, both obtained in the Edough Massif (Northern Algeria). From these ages and other arguments, the authors suggest that the slab détachement is immediately followed by an Early Langhien compressional phase throughout northern Africa, interrupted by a later relaxation phase. These ages thus mark a very fast exhumation phase, which was not detected by low-temperature thermochronometry.

A Tortonian onset of inversion?

Our reconstitution of the thermal history shows that a major exhumation phase occurred in Lesser Kabylia during the Tortonian, followed by a quiescence phase during the Plio-Quaternary at surface temperature (Figure VIII-9). In this section, we propose that the Tortonian denudation phase is associated with the onset of tectonic inversion and relief creation in the Kabylides.

The timing of the deformation of Northern Algeria was extensively studied (Wildi 1983 Arab et al. 2016, and references therein, Figure VIII-10). The Tell nappes emplaced during the Late Burdigalian – Early Langhian (Wildi, 1983, Abbassene et al., 2016). The Algerian margin is presently in a compression regime, as testified by the activity of the El Asnam and other fold and faults (King et al., 1984; Yielding et al., 1981; Meghraoui et al., 2004; Deverchère et al., 2005), regularly responsible for intense earthquakes in Algeria (e.g. El Asnam, 1980, Zemmouri, 2003, Boumerdès, 2003). The chronology of compression phases in this margin and in the Kabylides though is not fully constrained (Figure VIII-10). No specific compressive event is reported by Benaouali et al. (2006) in the Kabylides. On the other hand, Arab et al. (2016) propose that the Cap Bougaroun pluton was uplifted and

denuded recently (<5.5 Ma ago). Deverchère et al. (2005) and Strzerzynski et al. (2010) proposed an earlier stage of inversion: they recognized a compressive deformation of the Plio-Quaternary units using seismic data. Interestingly, they also suggest a continuity between the Tortonian and the Plio-Quaternary strain fields, which might indicate that the onset of compression is prior to the Pliocene.

Our dataset could date the onset of tectonic inversion of the Kabylies in the internal part of the Tell belt: the exhumation phase is Tortonian. It reveals that the deformation in Petite Kabylie has begun earlier than the usual Plio-Quaternary compression phase that is described in the Tell. Note that based on sedimentological facies, Arab et al. (2016) reports a regression corresponding to " a full emersion of the margin". Here, we suggest that this regression event is related to a uplift during the Tortonian. Arab (2016) mention that the pre-messinian deposits have been eroded in the favor of a tectonic compression beginning in the Late Tortonian in Kabylia and offshore (Aïté and Gélard, 1997 ; Mauffret, 2007), which were maximal during the Quaternary. Yet, the author also mentions that he lacks AFT or ZFT dates in order to state that the beginning of the tectonic inversion dates from the Tortonian. Our study yields a strong argument in favor of this assumption.

Note that sedimentological descriptions and thermochronological data also date the onset of inversion as Tortonian in several different Mediterranean locations. In the Betics, Weijermars et al. (1985), Braga et al. (2003), Do Couto et al. (2014), and Janowski et al. (2017) suggest that tectonic inversion occured 7-8 Ma ago. Tortonian sediments are thus deformed, and marked by progressive unconformities. Similarly, in the Cheliff basin (Algeria), a Lower Tortonian extension phase is followed by a strong compressive phase that deformed Late Tortonian and Messinian deposits (Meghraoui et al., 1986 ; Derder et al., 2011). The chronology is the same in Tunisia, where the tectonic inversion took place in Late Tortonian (Philip et al., 1986). In Northern Tunisia, this compressive episode is testified by

refolding of thrust sheets (Rouvier, 1977). Additionally, the evolution of sedimentary facies at Sidi Ali Ben Toumi (Algeria) strongly suggests an ermersion of the Algerian margin at Middle to Late Tortonian times (Carbonnel and Courme-Rault 1997 ; Arab et al., 2016). Therefore, our datation of the tectonic inversion is not new in Northern Africa, but is the first confirmation of this Tortonian phase made with low temperature thermochronometry.

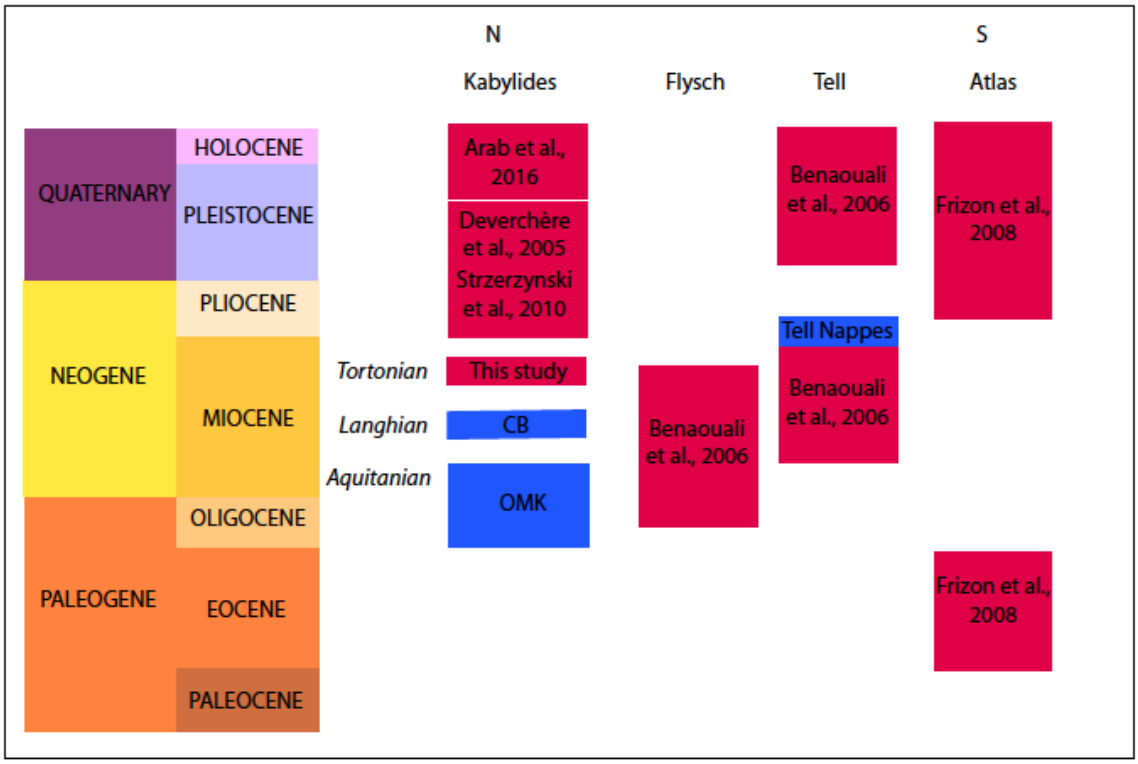


FIGURE VIII-10: Chronology of deformation steps in the Algerian Margin

Blue: Sedimentation and emplacement phases. Red: Compression phases. On the left is represented the time scale. As you can notice, in the Kabylides the regime changed from a blue extension phase responsible for the sedimentation of the OMK regime of compression (in red). This change is due to the tectonic inversion. It is dated either to the Pleistocene, or to the Pliocene (see references). Here, we suggest that a regime of compression occurred as soon as the Tortonian (in red) in the Kabylides. In the Flyschs and the Atlas, the compression stages were described by Benaouali et al. (2006) and Frizon et al. (2008).

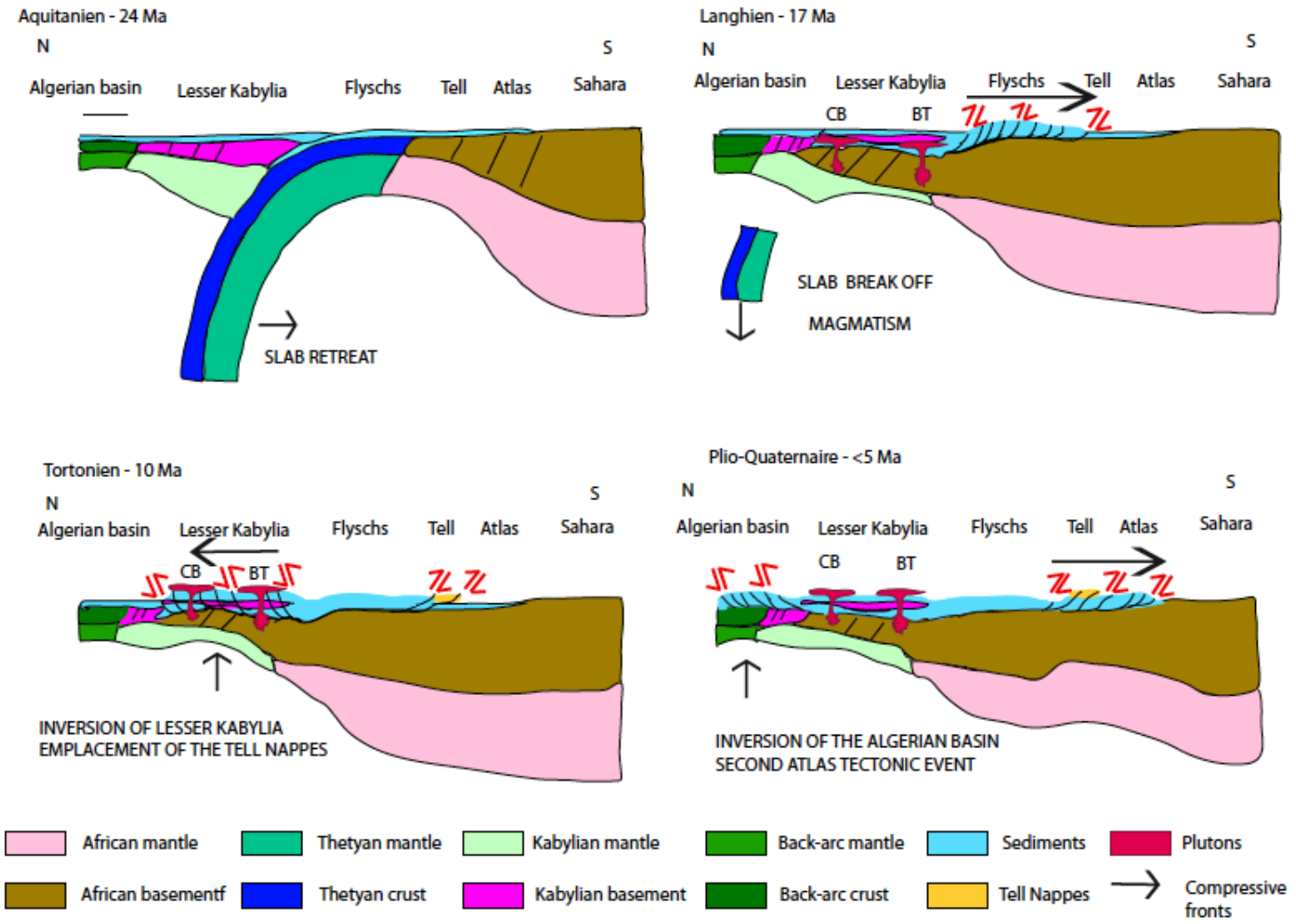


FIGURE VIII-11: Main steps of the Algerian margin Neogene evolution (Adapted from Abbassene et al., 2016)

Therefore, our datasets complexify the overall southward migration of the compressive front presented by Benaouali et al. (2006). Indeed, it shows that during the Tortonian, deformation localized to the North, responsible for the Lesser Kabylia uplift. Figure VIII-11 sketches the different steps of the Neogene evolution of the Algerian Margin, including the Lesser Kabylia. We suggest that the southward migrating compressive front affected the Flysch and the Tell domain during the Langhien, leading to emplacement of the Tell Nappes during the Tortonian.

Our study thus proposes that the onset of inversion in the internal part of the Tell Belt began during the Tortonian times, which is earlier than what is suggested by authors offshore. We can thus imagine that the compression began onshore in the Kabylies, and progressively migrated to the North offshore during the Plio-Quaternary (Figure VIII-11). We thus suggest that the initiation of the inversion of the Southern part of the Algerian margin began earlier in the Tortonian, and that deformation progressed toward the Algerian basin until the Plio-Quaternary period. Two compression front occurred (Figure VIII-11): (i) one soughward propagating the deformation from the Tell Nappes to the Atlas and leading to the second Atlas inversion phase and (ii) one another to the north leading to the onset of the Plio-Quaternary inversion of the Algerian Basin.

Acknowledgments

Olivier Brugier is thanked for providing the two powders CB32 and CB27. This work is part of the ANR-12-BS06-0005-01 project.

`

References

Abbassene F., Chazot G., Bellon H., Bruguier O., Ouabadi A., Maury R., Déverchére J., Bosch D., Monié P., 2016. A 17 Ma onset for the post-collisional K-rich calc-alkaline magmatism in the Maghrebides: evidence from Bougaroun (Northeastern Algeria) and geodynamic implications. Tectonophysics 674: 114-134.

Arab M., Rabineau M., Deverchere J., Bracene R., Belhai D., Roure F., Marok A., Bouyahiaoui B., Grangeon D., Andriessen P., Sage F., 2016. Tectonostratigraphic evolution of the eastern Algerian margin and basin from seismic data and onshore-offshore correlation. Marine and Petroleum Geology 77:1355-1375.

Azdimousa A., Bourgois J., Poupeau G., Montigny R., 1998. Thermal history of the Ketama massif (Morocco): constraints from K/Ar analyses and fission-track thermochronology. Comptes-Rendus de l'Académie des Sciences-Serie IIA-Earth and Planetary Sciences 326 (12): 847-853.

Azdimousa A., Bourgois J., Poupeau G., Vazquez M., Asebryi L., Labrin E., 2014. Fission-track thermochronology of the Beni Bousera peridotite massif (Internal Rif: Morocco) and the exhumation of ultramafic rocks in the Gibraltar arc. Arabian Journal of Geosciences 7 (5): 1993-2005.

Barbero L., Jabaloy A., Gomez-Ortiz D., Perez-Pena J.V., Rodriguez Peces M.J., Tejero R., Estupinian J., Azdimousa A., Vasquez M., Asebryi L., 2011. Evidence for surface uplift of the Atlas Mountains and the surrounding peripheral plateaux : combining apatite fission-track results and geomorphic indicators in the Western Moroccan Meseta (coastal Variscan Paleozoic basement). Tectonophysics 502 (1-2): 90-104.

Bellon H., 1976. Séries magmatiques néogènes et quaternaires du pourtour de la Méditerranée occidentale, compares dans leur cadre géochronométrique: implications géodynamiques. PhD, Université Paris-Sud.

Bellon H., Letouzey J., 1977. Volcanism related to plate tectonics in the Western and Eastern Mediterranean. International Symposium on the Structural History of the Mediterranean Basins.

Benaouali-Mebarek N., Frizon de Lamotte D., Roca E., Bracene R., Faure J.L., Sassi W., Roure F., 2006. Post-Cretaceous kinematics of the Atlas and Tell systems in central Algeria: Early foreland folding and subduciton-related deformation. C.R. Geoscience 338: 115-125.

Bercovici D., Schubert G., Ricard Y., 2015. Abrupt tectonics and rapid slab detachment with grain damage. PNAS, 112 (5): 1287-1291.

Buiter S.J.H., Govers R., Wortel M.J.R., 2002. Two-dimensional simulations of surface deformation caused by slab detachment. Tectonophysics 354: 195-210.

Bouillin J.P., 1977. Geologie alpine de la petite Kabylie dans les régions de Collo et d'El Milia (Algérie). Phd, Paris.

Bouillin J.P., 1979. La transversale de Collo et d'El Milia (Petite Kabylie) : une région clef pour l'interprétation de la tectonique alpine et de la chaine littorale d'Algérie. Société Géologique de France.

Bouillin J.P., 1986. Le « bassin maghrébin » ; une ancienne limite entre l'Europe et l'Afrique à l'Ouest des Alpes. Bulletin de la Société Géologique de France II (4).

Braga J.C., Martin J.M., Quesada C., 2003. Patterns and average rates of late-Neogene recent uplift in the Betic Cordillera, SE Spain. Geomorphology 50 (1-3): 3-26.

Carminati E., Wortel M.J.R., Spakman W., Sabadini R., 1998. The role of slab detachment processes in the opening of the western-central Mediterranean basins: some geological and geophysical evidence. Earth and Planetary Science Letters 160: 651-665.

Carminati E., Lustrino M., Doglioni C., 2012. Geodynamic evolution of the central and western Mediterranean: Tectonic vs. igneous petrology constraints. Tectonophysics.

Cattaneo G., 1987. Les formations du Jurassique supérieur et du Crétacé inférieur de l'avant-pays rifain oriental (Maroc). .PhD Université de Bourgogne.

Chazot G., Abbassene F., Maury R.C., Deverchere J., Bellon H., Ouabadi A., Bosch D., 2017. An overview on the origin of post-collisional Miocene magmatism in the Kabylies (Northern Algeria): evidence for crustal stacking, delamination and slab detachment. Journal of African Earth Sciences 125: 27-41.

Coulon C., Megartsi M., Fourcade S., Maury R.C., Bellon H., Louni-Hacini A., Cotton, Coutelle A., Hermitte D., 2002. Post-collisional transition from calc-alkaline to alkaline volcanism during the Neofene in Oranie (Algeria): magmatic expression of a slab breakoff. Lithos 62: 87-110.

Davies J.H., von Blanckenburg F., 1995. Slab breakoff: a model of lithosphere detachment and its test in the magmatism and deformation of collisional orogens. Earth and Planetary Science Letters 129: 85-102.

Deverchère J, Yelles K., Domzig A., Mercier de Lepinay B., Bouillin J.P., Gaullier V., Bracène R., Calais E., Savoye B., Kherroubi A., Le Roy P., Pauc H., Dan G., 2005. Active thrust faulting offshore Boumerdès, Algeria, and its relation to the 2003 Mw 6.9 earthquake. Geophysical Research Letters 32 (4).

Djimbi D.M.., Gautheron C., Roques J., Tassan-Got L., Gerin C., Simoni E., 2015. Impact of apatite chemical composition on (U-Th)/He thermochronometry: an atomistic point of view. Geochimica et Cosmochimica Acta 167: 162-176.

Durand-Delga M., 1980. Le cadre structural de la Méditerrannée Occidentale. Géologie des chaînes alpines issues de la Théthys: 67-85.

Duretz T., Schmalholz S.M., Gerya T.V., 2012. Dynamics of slab detachment. Geochemistry, Geophysics, Geosystems 13.

Fourcade S., Capdevila R., Ouabadi A., Martineau F., 2001. The origin and geodynamic significance of the Alpine cordierite-bearing granitoids of northern Algeria. A combined petrological, mineralogical, geochemical and isotopic (O, H, Sr, Nd) study. Lithos 57: 187-216.

Frizon de Lamotte D., Saint Bezar B., Bracene R., Mercier E., 2000. The two main steps of the Atlas building and geodynamics of the Western Mediterranean. Tectonics 19 (4): 740-761.

Frizon de Lamotte D., Zizi M., Missenard Y., Hafid M., El Azzouzi M., Maury R.C., Charrière A., Taki Z., Benammi M., Michard A., 2008. The Atlas System. In *Continental Evolution: The Geology of Morocco*, A.Michard et al., 2008.

Gautheron C., Tassan-Got L., Barbarand J., Pagel M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. Chemical Geology 266: 166-279.

Gallagher K., Brown R., Johnson C., 1998. Fission-track analysis and its application to geological problems. Annual Review of Earth and Planetary Sciences 26: 519-572.

Gallagher K., 2012. Transdimensional inverse thermal history modeling for quantitative thermochronology. Journal of Geophysical Research 117.

Géry B., Feinberg H., Lorentz C., Magné J., 1981. Definition of a type-series of the Ante-Nappe Kabyle Oligo-Miocene in the Djebel Aissa Mimoun (Grande Kabylie, Algeria). C.R. Acad. Sci. Paris.

Gueguen, E., Doglioni C., Fernandez M., 1998. On the post-25 Ma geodynamic evolution of the western Mediterranean. Tectonophysics 298: 259-269.

Guerrera F., Martin Algarra A., Perrone V., 1993. Late Oligocene-Miocene syn-/-late orogenic successions in Western and Central Mediterranean chains from the Betic cordillera to the southern appenines. Terra Nova 5 (6): 524-544.

Guerrera F., Martin-Martin M., Perrone V., Tramontana M., 2005. Tectono-sedimentary evolution of the southern branch of the Western Tethys (Maghrebian Flysch basin and Lucanian Ocean) : consequences for the Western Mediterranean geodynamics. Terra Nova 17 : 358-367.

Guerrera F., Martin-Algarra A., Martin-Martin M., 2012. Tectono-sedimentary evolution of the numidian formation and lateral facies (southern branch of the western Tethys): constraints for central-western Mediterranean geodynamics. Terra Nova 24 : 34-41.

Janowski M., Loget N., Gautheron C., Barbarand J., Belhasen N., Van den Driessche J., Babault J., Meyer B., 2017. Neogene exhumation and relief evolution in the Eastern Betics (SE Spain): insights from the Sierra de Gador. Terra Nova 29 (2): 91-97.

Jolivet L., Brun J.P., Meyer B., Prouteau G., 2008. Géodynamique Méditerranéenne. Eds Vuibert.

Ketcham R.A., Carter A., Donelick R.A., Barbarand J., Hurford A.J., 2007. Improved modeling of fission-track annealing in apatite. American Mineralogist 912:799-810.

King G., Yielding G., 1984. The evolution of a thrust fault system: processes of rupture initiation, propagation, and termination in the 1980 El Asnam (Algeria) earthquake. Geophysical Journal International 77 (3): 915-933.

Laffite R., 1939. Les plissements post-nummulitiques dans l'Atlas saharien. Bull.Soc. Géol. France (5): 135-159.

Leprêtre A., Klingelhoefer F., Graindorge D., Schnurle P., Beslier M.O., Yelles K., Deverchère J., Bracene R., 2013. Multiphased tectonic evolution of the Central Algerian margin from combined wide-angle and reglection seismic data off Tipaza, Algeria. Journal of Geophysical Research 118 (8): 3899-3916.

Maury R.C., Fourcade S., Coulon C., El Azzouzi M., Bellon H., Coutelle A., Ouabadi A., Semroud B., Megartsi M., Cotton J., Belanteur O., Louni-Hacini A., Piqué A., Capdevilla R., Hernandez J., Réhault J.P., 2000. Post-collisional neogene magmatism of the Mediterranean Maghreb margin: a consequence of slab breakoff. C.R. Academie des Sciences de Paris/ Earth and Planetary Sciences 331: 159-173.

Medaouri M., 2014. Origine de la segmentation de la marge algérienne et implications sur l'évolution géodynamique et les ressources pétrolières. PhD, Univ. de Bretagne.

Medaouri M., Deverchère J., Graindorge D., Bracene R., Badji R., Ouabadi A., Yelles K., Bendjab F., 2014. The transition from Alboran to Algerian basins (Western Mediterranean) : chronostratigraphy, deep crustal structure and tectonic evolution at the rear of a narrow slab rollback system. Journal of Geodynamics 77 : 186-205.

Meghraoui M., Maouche S., Chemaa B., Cakir Z., Aoudia A., Harbi A., Alasset P.J., Ayadi A., Bouhadad Y., Benhamouda F., 2004. Coastal uplift and thrust faulting associated with the Mw =6.8 Zemmouri (Algeria) earthquake of 21 May 2003. Geophysical Research Letters 31 (19).

Michard A., Chalouan A. Feinberg H., Goffé B, Montigny R., 2002. How does the alpine belt end between Spain and Morocco ? Bulletin de la société géologique de France 173 (1): 3-15.

Michard A., Negro F., Saddiqi O., Bouybaouene M.L., Chalouan A., Montigny R., Goffé B, 2006. Pressure-temperature-time constraints on the Maghrebide mountain building: evidence from the Rif-Betic transect (Morocco, Spain), Algerian correlations, and geodynamic implications. Comptes Rendus Geoscience 338 (1-2): 92-114.

Naak M., Peybernès B., 1992. Décrochevauchements syn-sédimentaires précoces et resédimentation de blocs jurassiques dans l'Eocène moyen hémipélagique de la dorsale kabyle du Djurdjura (Grande Kabylie, Algérie). Comptes Rendus de l'Académie des Sciences 314 (8): 815-819.

Ouabadi A., Capdevila R., Fourcade S., Semroud B., 1992. Le granite à biotite et cordiérite du Cap Bougaroun (Algérie), un analogue alpin des granites de type « S » de la ceinture de Lachlan (Australie). C.R. Acad. Sci. Paris, t. 314, Série II, p. 1187-1194.

Ouabadi A., 1994. Pétrologie, Géochimie, origine des granitoïdes péralumineux à cordierite (Cap Bougaroun, Beni Touffout, et Filfila), Algérie Nord Orientale. PhD. Université de Rennes1.

Rogers R.D., Karason H., Van der Hilst R.D., 2002. Epeirogenic uplift above a detached slab in northern central America. Geology 30 (11): 1031-1034.

Romagny A., Munch P., Cornée J.J., Corsini M., Azdimousa A., Melinte-Dobrinescu M.C., Drinia H., Bonno M., Arnaud N., Moni P., Quillévéré F., Ben Moussa A., 2014. Late Miocene to Present-day exhumation and uplift of the Internal zone of the Rif chain: insights from low temperature thermochronometry and basin analysis. Journal of Geodynamics 77: 39-55.

Roubault M., 1934. La Kabylie de Collo. Etude géologique (thèse de doctorat). Bull. Serv. Cart. Géol. Alg. Univ. Paris (272p).

Spakman W., Wortel M.J.R., 2004. A tomographic view on the Western Mediterranean Geodynamics. In *The TRANSMED Atlas, The Mediterranean region from crust to mantle.* Eds: Cavazza W., Roure F., Spakman W., Stampfli G.M., Ziegler P. p: 31-52.

Strzerzynski P., Deverchère J., Cattaneo A., Domzig A., Yelles K., Mercier de Lépinay B., Babonneau N., Boudiaf A., 2010. Tectonic inheritance and Pliocene-Pleistocene inversion of the Algerian margin around Algiers : insights from multibeam and seismic reflection data. Tectonics 29 (2).

Tricart P., Torelli L., Argani A., Rekhiss F., Zitellini N., 1994. Extensional collapse related to compressional uplift in the Alpine chain off northern Tunisia (Central Mediterranean). Tectonophysics 238 (1-4) : 317-329.

Vergès J., Sabat F., 1999. Constraints on the neogene Mediterranean kinematic evolution along a 1000 km transect from Iberia to Africa. Geological Society, London, Special Publications 156 : 63-80.

Vila J.M., 1980. La chaîne alpine d'Algérie orientale et des confins Tunisiens. PhD Univ. Paris VI, 665 pp.

Vitale S., Zaghloul M.N., Tramparulo F.A., Ouaragli B.E., 2014. Deformation characterization of a régional thrust zone in the northern Rif (Chefchaouen, Morocco). Journal of Geodynamics 77 : 22-38.

Wildi W., 1983. La chaîne tello-Rifaine (Algérie, Maroc, Tunisie): structure, stratigraphie, et evolution du Trias au Miocène. Rev. Géol. Dynam. Géog. Phys. Paris 24: 201-297.

Yielding G., Jackson J.A., King G.C.P., Sinvhal H., Vita-Finzi C., Wood R.M., 1981. Relations between surface deformation, fault geometry, seismicity, and rupture characteristics during the El Asnam earthquake of 10 october 1980. Earth and Planetary Science Letters 56: 287-304.

4. Conclusion générale

L'Algérie fait partie intégrante du Maghreb, intégrant du sud au nord l'Atlas, le Tell, et la marge de l'AlKaPeCa, puis le bassin Algérien offshore. L'évolution de l'Algérie est reliée à la dynamique Méditerranéenne, particulièrement l'évolution de la subduction. D'une part, le bassin Algérien s'est construit offshore en back-arc à la fin du Tortonien, après l'ouverture des autres bassins Méditerranéens comme la mer d'Alboran ou le bassin liguro-provençal. D'autre part, à terre, la dynamique est liée à l'évolution du slab, avec un détachement il y a 17 Ma (Abbassene et al., 2017). Cette rupture a provoqué du magmatisme (Maury et al., 2000), et la génération de larges plutons comme ceux intrudant la Petite Kabylie (par exemple le pluton de Bougaroun).

L'histoire géologique de l'Algérie (décrite au chapitre 7) est marquée par une réactivation de la marge par un épisode de compression récente (Deverchère et al., 2005 ; Babonneau et al., 2007 ; Leprêtre et al., 2013), qualifié par certains auteurs d'inversion tectonique (Strzerzynski et al., 2010 ; Arab et al., 2016). Néanmoins, la date de l'initiation de cette compression est discutée : Arab et al. (2016) l'attribuent au Quaternaire, les autres auteurs débutent l'inversion au Pliocène (Deverchère et al., 2005 ; Yelles et al., 2009 ; Strzerzynski et al., 2010 ; Leprêtre et al., 2013).

Notre étude thermochronologique a permis de dater plus précisément l'initiation de l'exhumation de la marge Algérienne sur le continent, au niveau de la Petite Kabylie de Collo. Les âges AHe et AFT obtenus indiquent que la dénudation a eu lieu au Tortonien. Nous interprétons ces âges comme la date du début de la compression de la marge Kabylienne.

Ainsi, nous suggérons que l'inversion de la Kabylie a lieu plus tôt que celle du bassin Algérien, et proposons un mécanisme tectonique en écailles progressant du sud au nord.

5. Bibliographie du chapitre

Abbassene F., Chazot G., Bellon H., Bruguier O., Ouabadi A., Maury R.C., Deverchère J., Bosch D., Monié P., 2016. A 17 Ma onset for the post-collisional K-rich calc-alkaline magmatism in the Maghrebides: evidence from Bougaroun (Northeastern Algeria) and geodynamic implications. Tectonophysics 674 : 114-134.

Aite Mohamed O., Gelard J.P., 1997. Distension néogène post-collisionnelle sur le transect de Grande Kabylie (Algérie). Bulletin de la Société Géologique de France 168 (4) : 423-436.

Allais M., 1957. Method of appraising economic prospects of mining exploration over large territories : algerian Sahara case study. Management Science 285-347.

Arab M., Rabineau M., Deverchère J., Bracene R., Belhai D., Roure F., Marok A., Bouyahiaoui B., Granjeon D., Andriessen P., Sage F., 2016. Tectonostratigraphic evolution of the Eastern Algerian margin and basin from seismic data and onshore-offshore corrélation. Marine and Petroleum Geology 77 : 1355-1375.

Babonneau N., Cattaneo A., Harster M., Deverchère J., Yelles K., Savoye B., Domzig A., 2007. Morphology and structure of the Algiers Deep sea fan and possible sedimentary record of the 2003 Boumerdès earthquake (Maradja Project). AGU Fall Meating.

Bellon H., 1976. Séries magmatiques néogènes et quaternaires du pourtour Méditerranéen Occidental, comparées dans leur cadre géochronométrique, implications géodynamiques. PhD Univ. Paris Sud, Orsay, 367 pp.

Benaouali-Merabek N., Frizon de Lamotte D., Roca E., Bracene R., Faure J.L., Sassi W., Roure F., 2006. Post-Cretaceous kinematics of the Atlas and Tell systems in central Algeria: Early foreland folding and subduction-related deformation. C.R. Geoscience 338 : 115-125.

Bertrand J.M., Michard A., Boullier A.M., Dautel D., 1986. Structure and U/Pb geochronology of central Hoggar (Algeria) : a reappraisal of its Pan-African evolution. Tectonics 5 (7) : 955-972.

Boote D.R.D., Clarke Lowes D.D., Traut M.W., 1998. Palaeozoic petroleum systems of North Africa. Geological Society London, Special Publications 132 : 7-68.

Bouillin J.P., Raoult J.F., 1971. Présence sur le socle Kabyle du Constantinois d'un oligostrome lié au charriage des flyschs allochtones ; le Numidien peut-il être un néo-autochtone ? Bull. Soc. Geol. Fr. 7 : 386- 362.

Bouillin J.P., Durand-Delga M., Gélard J.P., Leikine M., Raoult J.F., Raymond D., Tefiani M., Vila J.M.,1973. Les olistostromes d'âge miocène inférieur liés aux flyschs allochtones kabyles de l'orogène alpin d'Algérie. Bull. Soc. Geol. Fr. 15 : 340-344.

Bouillin J.P., 1977. Géologie alpine de la Petite Kabylie dans les régions de Collo et d'El Milia (Algérie). PhD Univ. Paris, 511 pp.

Bouillin J.P., 1979. La transversale de Collo et El Milia (Petite Kabylie) : une région clef pour l'interprétation de la tectonique alpine de la chaîne littorale d'Algérie. Mém. Soc. Géol. Fr. 135 : 1-84.

Bouillin J.P., 1983. Exemples de déformations locales liées à la mise en place de granitoïdes alpins dans les conditions distensives : l'île d'Elbe (Italie) et le Cap Bougaroun (Algérie). Rev. Géol. Dynam. Géog. Phys. Paris 24 : 101-116.

Bouillin J.P., 1986. Le « bassin maghrébin » ; une ancienne limite entre l'Europe et l'Afrique à l'Ouest des Alpes. Bulletin de la Société Géologique de France II (4).

Bracene R., 2002. Géodynamique du Nord de l'Algérie : impact sur l'exploration pétrolière. PhD Univ. Cergy-Pontoise, 110 pp.

Bracene R., Frizon de Lamotte D., 2002. The origin of intraplate déformation in the Atlas system of Western and Central Algeria : from Jurassic rifting to Cenozoic-Quaternary inversion. Tectonophysics 357 : 207-226.

Bruguier O., Hammor D., Bosch D., Caby R., 2009. Miocene incorporation of peridotite into the Hercynian basement of the Maghrebides (Edough massif, NE Algeria) : implications for the geodynamic evolution of the Western Mediterranean. Chemical Geology 261 : 172-184.

Caby R., 2003. Terrane assembly and geodynamics evolution of central-western Hoggar : a synthesis. Journal of African Earth Sciences 37(3-4) : 133-159.

Cattaneo G., 1987. Les formations du Jurassique Supérieur et du Crétacé inférieur de l'avant-pays Rifain oriental (Maroc). PhD, Univ. Bourgogne, Dijon, 300 pp.

Cattaneo G., Gélard J.P., 1989. Le fonctionnement de la marge africaine de la Téthys maghrébine au Jurassique Supérieur-Crétacé basal : son enregistrement dans les systèmes sédimentaires de l'Avant-pays Rifain oriental. C.R. Acad. Sci. Paris 309 (2) : 109-114.

Chazot G., Abbassene F., Maury R.C., Deverchère J., Bellon H., Ouabadi A., Bosch D., 2017. An overview on the origin of post-collisional Miocene magmatism in the Kabylies (northern Algeria) : evidence for crustal stacking, delamination, and slab detachment. Journal of African Earth Sciences 125 : 27-41.

Coulon C., Megartsi M., Fourcade S., Maury R.C., Bellon H., Louni-Hacini A., Cotten J., Coutelle A., Hermitte D., 2002. Post-collisional transition from calc-alkaline volcanism during the Neogene in Oranie (Algeria) : magmatic expression of a slab breakoff. Lithos 62 : 87-110.

Coward M.P., 1994. Inversion tectonics. In : Continental deformation, Pergamon, Oxford.

Dautria J.M., Lesquer A., 1989. An example of the Relationship between rift and dome : recent geodynamic evolution of the Hoggar swell and of its nearby regions (Central Sahara, Southern Algeria and Eastern Niger). Tectonophysics 163 (1-2) : 45-61.

Davies J.H.., von Blanckenburg F., 1995. Slab breakoff : a model of lithosphere detachment and its test in the magmatism and deformation of collisional orogens. Earth and Planetary Science Letters 129 : 85-102.

Deverchère J., Yelles K., Domzig A., Mercier de Lépinay B., Bouillin J.P., Gaullier V., Bracene R., Calais E., Savoye B., Kherroubi A. , Le Roy P., Paul H., Dan-Unterseh G., 2005. Active thrust faulting offshore Boumerdès, Algeria, and its relations to the 2003 Mw 6.9 earthquake. Geophysical Research Letters 32 (4), 5 pp.

Didon J., Duran Delga M., Kornprobst J., 1973. Homologies géologiques entre les deux rives du détroit de Gibraltar. Bull. Soc. Géol. Fr. 15 : 77-105.

Domzig A., Yelles K., Le Roy C., Deverchère J., Bouillin J.P., Bracene R., Mercier de Lepinay B., Le Roy P., Calais E., Kherroubi A., Gaullier V., Savoye B., Pauc H., 2006. Searching for the Africa-Eurasia Miocene boundary offshore Western Algeria (MARADJA'03 cruise). C.R. Geosciences 338 (1-2) : 80-91.

Festa V., Caggianelli A., Langone A., Prosser G., 2013. Time-space relationships among structural and metamorphic aureoles related to granite emplacement : a case study from the Serre Massif (Southern Italy). Geol. Mag. 150 : 441-450.

Fichtner A., Villasenor A., 2015. Crust and upper mantle of the Western Mediterranean- constraints from full-waveform inversion. Earth and Planetary Science Letters 428 : 52-62.

Fourcade S., Capdevila R., Ouabadi A., Martineau F., 2001. The origin and geodynamic significance of the Alpine cordierite-bearing granitoids of Northern Algeria. A combined petrological, mineralogical, geochemical, and isotopic (O, H, Sr, Nd) study. Lithos 57 : 186-216.

Galeazzi S., Point O., Haddadi N., Mather J., Druesne D., 2010. Regional geology and petroleum systems of the Illizi-Berkine area of the Algerian Sharan Platform : an overview. Marine and Petroleum Geology 27 (1) : 143-178.

Gelard J.P., 1969. Le flysch à base schisto-gréseuse de la bordure méridionale et orientale du massif de Chellata : le flysch maurétanien (Grande Kabylie, Algérie). Bull. Soc. Geol. Fr. XI (7) : 676-688.

Gelard J.P., Lorenz C., Magné J., 1973. L'âge de la transgression (Oligocène terminal-Aquitanien basal) sur le socle de Grande Kabylie (Algérie). C.R. Somm. Soc. Géol. Fr. :7-9.

Gelard J.P., 1979. Géologie du Nord-Est de la Grande Kabylie : un segment des zones internes de l'orogène littoral maghrébin. Institut des Sciences de la Terre.

Géry B., Feinberg H., Lorenz C., Magné J., 1981. Définition d'une série-type de l'Oligo-Miocène Kabyle » anténappes dans le Djebel Aïssa Mimoun (Grande Kabylie, Algérie). C.R. Acad. Sci. Paris 292 : 1529-1532.

Guerrera F., 1981-1982. Successions turbiditiques dans les Flyschs Maurétaniens et Numidien du Rif (Maroc). Rev. Geog. Phys. Géol. Dyn. 23 : 85-96.

Guerrera F., Martin-Algarra A., Perrone V., 1993. Late Oligocene-Miocene syn/late orogenic successions in Western and Central Mediterranean chains from the Betic cordillera to the Southern Appenines. Terra Nova 5 : 525-544.

Guerrera F., Martin-Martin M., Perrone V., Tramontana M., 2005. Tectono-sedimentary evolution of the southern branch of the Western Tethys (Maghrebian Flysch basin and Lucanian Ocean): consequences for the Western Mediterranean geodynamics. Terra Nova 17 : 358-367.

Guerrera F., Martin-Algarra A., Martin-Martin M., 2012. Tectono-sedimentary evolution of the numidian formation and lateral facies (southern branch of the western Tethys): constraints for central-western Mediterranean geodynamics. Terra Nova 24 : 34-41.

Hatimi N., Duée G., Hervouet Y., 1991. La dorsale calcaire du Haouz : ancienne marge continentale passive téthysienne (Rif, Maroc). Bull. Soc. Geol. Fr. 162 (1) : 79-90.

Kasser M., Ruegg J.C., Lepine J.C., 1987. Deformations associated with the El Asnam earthquake of October 10, 1980 (Algeria). Journal of Geodynamics 7(3-4) : 215-219.

King G., Yielding G., 1984. The evolution of a thrust fault system : processes of rupture initiation, propagation, and termination in the 1980 El Asnam (Algeria) earthquake. Geophysical Journal International 77(3) : 915-933.

Laouar R., Boyce A.J., Arafa M., Ouabadi A., Fallik A.E., 2005. Petrological, geochemical, and stable isotope constraints on the genesis of the Miocene igneous rocks of Chetaibi and Cap de Fer (NE Algeria). J. Afr. Earth Sci. 41 : 445-465.

Laubscher H.P., 1976. Geometrical adjustments during rotation of a Jura fold limb. Tectonophysics 36 (4): 347-365.

Leprêtre A., Klingelhoefer F., Graindorge D., Schnurle P., Beslier M.O., Yelles K., Deverchère J., Bracène R., 2013. Multiphased tectonic evolution of the Central Algerian margin from combined wide-angle and reflection seismic data off Tipaza, Algeria. Journal of Geophysical Research 118 (8): 3899-3916.

Maury R.C., Fourcade S., Coulon C., El Azzouzi M., Bellon H., Coutelle A., Ouabadi A., Semroud B., Megartsi M., Cotten J., Belanteur O., Louni-Hacini A., Piqué A., Capdevila R., Hernandez J., Réhault J.P., 2000. Post-collisional néogène magmatism of the Mediterranean Maghreb margin : a conséquence of slab breakoff. C.R. Acad. Sci. Paris 331 : 159-173.

Marignac C., Aïssa D.E., Cheilletz A., Gasquet D., 2016. Edough-Cap de Fer polymetallic district, Northeast Algeria: II. Metallogenic evolution of a late Miocene Metamorphic core complex in the Alpine Maghrebide belt. Mineral Deposits of North Africa: 167-199.

Medaouri M., 2014. Origine de la segmentation de la marge algérienne et implication sur l'évolution géodynamique et les ressources pétrolières. PhD Univ. Brest.

Meghraoui M., 1988. Géologie des zones sismiques du Nord de l'Algérie : paléosismologie, tectonique active, et synthèse sismotectonique. PhD Univ. Paris Sud, Orsay.

Michard A., Chalouan A. Feinberg H., Goffé B, Montigny R., 2002. How does the alpine belt end between Spain and Morocco ? Bulletin de la société géologique de France 173 (1): 3-15.

Michard A., Negro F., Saddiqi O., Bouybaouene M.L., Chalouan A., Montigny R., Goffé B, 2006. Pressure-temperature-time constraints on the Maghrebide mountain building: evidence from the Rif-Betic transect (Morocco, Spain), Algerian correlations, and geodynamic implications. Comptes Rendus Geoscience 338 (1-2): 92-114.

Naak M., Peybennes B., Fondecave-Wallez M.J., 1992. Décrochevauchements synsédimentaires précoces et resédimentation de blocs jurassiques dans l'Eocène moyen hémipélagique de la Dorsale Kabyle du Djurdjura (Grande Kabylie, Algérie). C.R.A.S. Paris 314 (II) : 815-819.

Ouabadi A., Capdevila R. Fourcade S., Semroud B., 1992. Le granite à biotite et cordiérite du Cap Bougaroun (Algérie) : un analogue alpin des granites de type S de la ceinture de Lachlan (Australie) ? C.R. Acad. Sci. Paris 314 : 1187-1194.

Ouabadi A., 1994. Pétrologie, Géochimie, et origine des granitoïdes peralumineux a cordierite (Cap Bougaroun, Beni Touffout, et Filfila), Algérie Nord Orientale. PhD Univ. Rennes, 336 pp.

Peterson J.A., 1986. Geology and petroleum resources of north-central and NE Africa. Conference paper.

Raoult J.F., 1969. External unit of Kabyle Dorsal preceding Penthievre flysch in Northern Constantine Algeria.

Raoult J.F., 1974. Géologie du centre de la chaîne Numidique (Nord du Constantinois, Algérie). Mém. Soc. Géol. Fr. 121 : 1-62.

Roubault M., 1934. La Kabylie de Collo. Etude géologique. PhD Univ. Paris. Bull. Serv. Carte Géol., 272 pp.

Streckeisen A., 1974. Classification and nomenclature of plutonic rocks recommendations of the IUGS subcommission on the systematics of igneous rocks. Geologische Rundschau 63(2): 773-786.

Strzerzynski P., Deverchère J., Cattaneo A., Domzig A., Yelles K., Mercier de Lepinay B., Babonneau N., Boudiaf A ., 2010. Tectonic inheritance and Pliocene-Pleistocene inversion of the Algerian margina round Algiers : Insights from multibeam and seismic reflection data. Tectonics 29 (2) .

Tricart P., Torelli L., Argnani A., Rekhiss F., Zitellini F., 1994. Extensional collapse related to compressional uplift in the Alpine chain off Northern Tunisia (central Mediterranean). Tectonophysics 238 : 317-329.

Vergès J., Sabbat F., 1999. Constraints on the Neogene Mediterranean kinematic evolution along a 1000 km transect from Iberia to Africa. In : Durand B., et al., eds. The Mediterranean basins : Tertiary Extension within the Alpine orogens. Vienna Geol. Soc. Spec. Publ. 156 : 63-80.

Vila J.M., 1980. La chaîne alpine d'Algérie orientale et des confins Tunisiens. PhD Univ. Paris VI, 665 pp.

Vitale S., Zaghloul M.N., Tramparulo F.A., El Ouaragli B., Ciarcia S., 2014. From Jurassic extension to Miocene shortening : an example of polyphasic deformation in the External Dorsale Calcaire unit (Chefchaouen, Morocco). Tectonophysics, 14 pp.

Vitale S., Zaghloul M.N., El Ouaragli B., Tramparulo F.A., Ciarcia S., 2015. Polyphase deformation of the Dorsale Calcaire Complex and the Maghrebian Flysch Basin Units in the Jebha area (Central Rif, Morocco) : New insights into the Miocene tectonic evolution of the Central Rif belt. Journal of Geodynamics 90 : 15-41.

Wildi W., 1983. La chaîne tello-Rifaine (Algérie, Maroc, Tunisie): structure, stratigraphie et evolution du Trias au Miocène. Revue de Géographie physique et de géologie dynamique 24 (3): 201-297.

Yelles A., Domzig A., Deverchère J., Bracene R., Mercier de Lépinay B., Strzerzynski P., Bertrand G., Boudiaf A., Winter T., Kherroubi A., Le Roy P., Djellit H., 2009. Plio-quaternary reactivation of the Neogene margin off NW Algiers, Algeria : The Khayr al Din Bank. Tectonophysics 475 (1) : 98- 116.

Ziegler P.A., Cloetingh S., Diederik Van Wees J., 1995. Dynamics of intra-plate compressional deformation : the Alpine foreland and other examples. Tectonophysics 252 (1-4) : 7-59.

Conclusion et annexes

CONCLUSION **363**
1. LES MODELES ACTUELS DE DIFFUSION DE L'HE DANS L'APATITE **363**
2. APPORT AU MODELE DE GERIN ET AL. (2017) **364**
3. LA DISPERSION DES AGES (U-TH-SM)/HE SUR APATITE **366**
4. COMBINAISON DES DONNEES AFT ET AHE **367**
5. APPORT DE NOUVELLES APPROCHES INTERDISCIPLINAIRES **368**
6. LA GEOLOGIE DU MASSIF ARMORICAIN **371**
7. LA GEOLOGIE DE LA PETITE KABYLIE (ALGERIE) **372**
8. PERSPECTIVES **373**
9. BIBLIOGRAPHIE DE LA CONCLUSION **374**

ANNEXES **377**
1. INTRODUCTION : ACTIVITES AU COURS DE LA THESE **377**
2. CONFERENCES **378**
HELIUM TRAPPING IN APATITE DAMAGE: INSIGHTS FROM OVERLY DISPERSED (U-TH-SM)/HE DATES. **398**
3. CONGRES DES DOCTORANTS **401**
CONTROLS ON HELIUM RETENTION IN APATITES FROM THE TREGOR (ARMORICAN MASSIF, FRANCE) **401**
NEOGENE INVERSION OF LESSER KABYLIA DATED BY (U-TH-SM)/HE THERMOCHRONOMETRY **406**
4. INFORMATIONS SUPPLEMENTAIRES AUX ARTICLES **411**
4.1 ARTICLE PRESENTE AU CHAPITRE 3 : 411
4.2 ARTICLE PRÉSENTÉ AU CHAPITRE 4 : 430
4.3 ARTICLE PRÉSENTÉ AU CHAPITRE 8 : 438
5. BIBLIOGRAPHIE DES ANNEXES **450**

Conclusion

Ce manuscrit de thèse a porté sur la thermochronométrie (U-Th-Sm)/He sur apatite. Une partie méthodologique a permis de tester les modèles actuels et récents, et d'étudier la dispersion des âges thermochronométriques AHe dans des cas où l'histoire thermique est relativement bien contrainte. Chaque technique a permis d'améliorer la connaissance géologique régionale, spécialement dans le Massif Armoricain et la Marge Algérienne. Dans cette conclusion, nous synthétisons les principaux résultats obtenus, puis nous ouvrons sur des perspectives de recherche future.

1. Les modèles actuels de diffusion de l'He dans l'apatite

Les deux modèles les plus couramment utilisés en thermochronométrie AHe sont le modèle de Flowers et al. (2009) et celui de Gautheron et al. (2009). Une partie de ma thèse a permis de tester ces modèles sur plusieurs jeux de données dans des contextes variés tels que le Massif Armoricain et les Alpes et la marge algérienne. Dans le Massif Armoricain et les Alpes, de nombreuses contraintes existent sur l'histoire géologique et thermique. Nous avons donc réalisé des simulations directes des données (U-Th-Sm)/He sur apatite prédites par les modèles. Dans le cas du Massif Armoricain, la relation âge AHe/eU prédite était significativement différente entre les deux modèles ; tandis que cette différence n'était pas notable dans le cas des Alpes suisses où l'histoire thermique est plus simple.

Dans les deux cas, mais de façon plus marquée dans le Massif Armoricain, les prédictions sont inférieures aux âges observés. Ainsi, la rétention en hélium dans l'apatite est sous-estimée par ces deux modèles. Cette faible rétention signifie que : (i) les paramètres diffusifs tels que l'énergie d'activation ou la température de fermeture sont sous-estimés. Ces

paramètres dépendent de la quantité de dommages dans l'apatite. Ainsi, les dommages sont soit plus rétentifs pour l'He que ce qui est envisagé par les modèles actuels, soit ils cicatrisent à des températures plus élevées que ce qui était supposé, ou encore les dommages peuvent être retenus plus tôt dans l'histoire thermique (avec des cas particuliers).

Ce travail de thèse indique qu'il faut améliorer le modèle de diffusion de l'He en se basant sur les modèles actuels. Avec les paramètres fixés dans ces modèles actuels (énergie d'activation, température de fermeture), les données ne sont pas reproduites correctement. Ainsi, il faudrait augmenter l'énergie d'activation ou changer l'évolution de la température de fermeture avec les défauts. Les modèles actuels tels quels ne sont pas satisfaisants car ils sous-estiment les âges hélium. Cela est moins visible dans les contextes d'exhumation rapide et de dénudation intense, comme dans les Alpes (ou en Algérie).

2. Apport au modèle de Gerin et al. (2017)

Le modèle de Gerin et al. (2017) a des similitudes physiques avec les deux modèles précédents : l'équation (1) de Gerin et al. (2017) ressemble à l'équation (1) de Flowers et al. (2009) et à l'équation (1) de Gautheron et al. (2009). Toutes ces équations indiquent que le coefficient de diffusion de l'He dans l'apatite endommagée est inférieur au coefficient de diffusion dans le réseau parfait. La rétentivité de l'apatite augmente exponentiellement avec l'énergie de stockage d'hélium dans les dommages Etrap (selon Flowers et al., 2009), Eb (selon Gautheron et al., 2009), ou $\Delta Ea = Ea+Eb$ (selon Gerin et al., 2017).

Néanmoins, ce qui différencie les différents modèles est :

(i) la température de fermeture de l'hélium dans l'apatite non endommagée, et

(ii) la relation entre la dose d'alpha accumulée par l'apatite et la quantité de dommages créée.

Le modèle de Flowers et al. (2009) considère une température de fermeture de 50-60°C dans l'apatite non endommagée, par extrapolation des données mesurées à faible quantité d'hélium. Le modèle de Gerin et al. (2017) tient compte de récents calculs quantiques prévoyant une température de fermeture de 30-40°C dans le réseau parfait (Djimbi et al., 2015). Le modèle de Flowers et al. (2009) a déterminé une relation empirique entre la dose d'alpha et la quantité de dommage, à partir de données expérimentales et d'échantillons naturels : il s'agit d'une loi polynômiale d'ordre trois, qui reproduit le mieux les données à la fois à faible et à haute dose. Le modèle de Gautheron et al. (2009) considère que pour suivre la physique, la création de dommages doit être linéairement reliée à la dose d'alpha émise.

Le modèle de Gerin et al. (2017) suit également une loi d'endommagement linéaire. Mais pour pouvoir reproduire les données, il suggère que l'énergie de stockage dans les dommages, ΔEa, varie. Ainsi, pour les fortes densités de dommages, les paramètres de diffusion sont différents du cas des faibles dommages. Cette thèse a permis de tester ce nouveau modèle sur plusieurs jeux de données thermochronologiques. Nous confirmons que le fait de faire varier l'énergie ΔEa d'un grain à l'autre permet de reproduire l'ensemble des données. Sans cette variation, les âges jeunes sont sur-estimés et les âges les plus vieux sont sous-estimés. Ainsi, notre méthodologie permet de déterminer pour chaque cristal la valeur de ΔEa qui permet de prédire l'âge correctement. Nous avons étudié la variation de cette énergie avec la dose d'alpha et le eU. Dans le Massif Armoricain, l'énergie augmente avec la dose ; mais ce n'est que peu visible dans les Alpes.

Ce nouveau modèle permet donc de reproduire l'ensemble des données avec un modèle linéaire et qui reproduit les calculs quantiques. Cette thèse a montré néanmoins que la gamme d'énergie nécessaire pour reproduire les données est élevée : environ 55-60 kJ/mol à Sion, 70 kJ/mol à Visp, et 45-90 kJ/mol à Ploumanac'h. Cela est plus élevé que les 30 kJ/mol

habituellement prédits (Shuster et al., 2006 ; Gerin et al., 2017). Ainsi, pour utiliser le modèle de Gerin et al. (2017), nous proposons de modifier l'énergie de stockage :

(i) dans les modélisations directes, je suggère de varier l'énergie du stockage jusqu'à ce que les données mesurées soient reproduites par le modèle.

(ii) dans les modélisations inverses, il serait utile soit de supposer une valeur de l'énergie de stockage d'environ 60 kJ/mol ; soit de faire augmenter l'énergie de stockage avec le eU dans les massifs pénéplanés anciens.

3. La dispersion des âges (U-Th-Sm)/He sur apatite

La dispersion des âges (U-Th-Sm)/He sur apatite est un des verrous méthodologiques importants, qui limitent l'interprétation des âges AHe. Certains auteurs suppriment la dispersion soit en écartant des données, soit en les supprimant. D'autres conservent la dispersion, ce qui donne des âges moyens parfois biaisés par un ou deux points trop âgés. Ce travail de thèse s'est attelé à comprendre l'origine de cette dispersion.

Dans tous les contextes, nous avons observé une large dispersion des données (U-Th-Sm)/He sur apatite. Cette dispersion était la plus importante dans le pluton de Ploumanac'h (Massif Armoricain, ~200 Ma), mais était également élevée en proportion dans les Alpes et en Algérie. La bibliographie indique deux origines possibles de la dispersion : (i) la variabilité de l'endommagement des apatites, qui contrôle la rétentivité en hélium, et (ii) la dispersion des compositions chimiques des apatites, qui seraient liées à celle des âges AHe. Ce travail de thèse a permis d'étudier ces liens davantage, d'une part en recherchant des corrélations entre l'âge hélium et les paramètres physiques et chimiques décrivant les apatites ; d'autre part en utilisant des méthodes de traitement informatique des données afin d'explorer l'influence de chacun des paramètres sur la prédiction des âges.

Dans le cas du Trégor, le paramètre eU et la dose de particules alpha accumulée semblent être reliés positivement à l'âge hélium. Nous avons interprété cette relation comme un témoin du rôle prépondérant des dommages dans le contrôle de la rétention d'hélium dans les apatites. Plus la dose de particules alpha augmente, plus la quantité de dommages augmente, et plus ils ont tendance à coalescer, grossir, et devenir rétentifs – en dessous d'un seuil. Après ce seuil, les dommages pourraient percoler, et la rétentivité diminue. L'histoire thermique joue beaucoup dans cette relation : dans le cas des Alpes et de l'Algérie, où l'exhumation est plus rapide, aucune relation entre l'âge AHe et le paramètre eU n'a été trouvée.

Pour une même gamme de eU et une même lithologie, il persiste une large dispersion des données. Aucune corrélation n'a été détectée entre l'âge et la composition chimique, pour toute une gamme d'éléments chimiques. Ceci va à l'encontre des hypothèses de Gautheron et al. (2013) sur la relation entre la chimie et la rétentivité. Néanmoins, le chlore n'a pas été mesuré à la microsonde pendant la thèse. L'utilisation des algorithmes de prédiction a permis de montrer que les âges AHe dans le Trégor sont influencés par les concentrations en radionucléides pères, mais pas par les éléments mineurs et traces.

4. Combinaison des données AFT et AHe

L'utilité de la thermochronométrie AFT pour déterminer l'histoire thermique a déjà été démontrée après plus de trente années d'études et de calibration de ce thermochronomètre. Le but de la thèse n'était donc pas d'améliorer cette méthode, mais de l'utiliser pour progresser dans notre compréhension de la rétention de l'hélium dans les apatites. Dans le cas du Massif Armoricain, nous avons utilisé les âges traces de fission sur apatite et les longueurs pour modéliser l'histoire thermique. Pour les Alpes, l'histoire thermique choisie pour chaque

échantillon provenait à la fois des données traces de fission et de la thermochronométrie AHe et $^{4}He/^{3}He$ sur apatite.

Dans le cas du Trégor, les âges AHe sont bien plus vieux et variables que les âges AFT. Dans les Alpes et en Algérie, ce n'est pas le cas : les âges AFT sont supérieurs ou égaux aux âges (U-Th-Sm)/He. La modélisation des données a montré que cette contradiction entre les deux thermochronomètres était liée à l'histoire thermique polyphasée, qui n'existe ni dans les Alpes ni en Algérie. Le séjour long dans la zone de rétention partielle en hélium s'accompagne en effet d'un vieillissement et d'une dispersion des âges AHe.

Nous avons suggéré de suivre la procédure suivante : (i) modéliser l'histoire thermique à partir des données traces de fission ; et (ii) utiliser la combinaison entre la dispersion des âges hélium et l'âge trace de fission pour retracer les périodes d'enfouissement. Cette seconde méthodologie a permis de démontrer et quantifier dans le cas de Ploumanac'h (Massif Armoricain) l'existence d'une phase de réchauffement au Crétacé, qui n'était pas détectable à partir des données traces de fission seules.

5. Apport de nouvelles approches interdisciplinaires

Deux nouvelles approches ont été testées dans cette thèse. En premier lieu, nous avons initié une collaboration avec le laboratoire d'informatique de Paris Nord dans le volet d'exploration de données. Le chapitre sur le Massif Armoricain a généré un relativement grand nombre de données sur les apatites, comprenant des âges et des compositions chimiques. Il était donc intéressant de pouvoir utiliser des méthodes adaptées à l'interprétation des quantités importantes de données, telles que les techniques statistiques, et les algorithmes d'apprentissage.

Cette partie a montré que les algorithmes de prédiction peuvent aider dans l'interprétation de la dispersion du signal thermochronométrique. Ils confirment que les radionucléides pères (U, Th, Sm), résumés par le paramètre eU, sont les quantités les plus importantes pour expliquer la dispersion des rétentions en hélium. Plus il y a d'éléments pères, plus l'hélium est produit et retenu dans les cristaux. D'autre part, la forêt aléatoire a montré que les les compositions chimiques des grains ne sont pas responsables de la dispersion des capacités de rétention. Elles n'ont apparemment rien à voir avec les concentrations d'hélium. Néanmoins, elles pourraient jouer légèrement sur l'âge et non sur les concentrations d'hélium dans l'apatite. Ainsi, les algorithmes d'apprentissage permettent de façon beaucoup plus robuste que les diagrammes 2D réalisés dans Recanati et al. (2017) d'exclure le rôle de la chimie sur la rétention d'hélium.

Le rôle prépondérant des radionucléides pères dans le signal thermochronométrique, comme la relation prépondérante des âges AHe avec eU, montre que la production de particules alpha dans le réseau engendre la rétention d'hélium. Cela est lié à la production de défauts dans les cristaux lors de l'émission des particules alpha. Afin d'explorer ce champ, nous avons testé une seconde approche pour tenter de comprendre les processus physiques. Le volet de minéralogie expérimentale a combiné la minéralogie et la physique afin de caractériser et d'observer les défauts créés par l'irradiation.

Les techniques de MET ont montré que les apatites restent cristallines malgré l'irradiation, même à forte dose, et que les éventuels défauts consistent en des distorsions du réseau cristallin. Au contraire, la spectroscopie RBS/C a montré que l'implantation à 10^{15} He^{+}/cm^{2} déplace jusqu'à 90% des atomes de phosphore à 200 nm de profondeur, révélant des dommages conséquents. Cette différence entre les techniques de MET, et les techniques de RBS/C est très intéressante et pourrait dans l'avenir conduire à la rédaction d'un article. Néanmoins, un problème majeur doit être réglé : (i) au MET, une zone endommagée était

visible même sur l'échantillon témoin ce qui limite les interprétations ; (ii) en RBS/C la canalisation n'a fonctionné que sur un cristal, montrant probablement que des défauts existent dans les cristaux témoins également, ce qui a empêché de réaliser une comparaison entre les doses.

Ces deux volets ont constitué un travail intéressant et interdisciplinaire. Nous avons travaillé entre plusieurs laboratoires de spécialités différentes. Cela a nécessité de pouvoir expliquer les buts de la thermochronologie aux collègues physiciens ou informaticiens, et de devoir comprendre les techniques de spectroscopie/microscopie et d'apprentissage informatique. Ainsi, ces parties ont été intéressantes scientifiquement par les interactions fructueuses entre les disciplines. L'interprétation des résultats a également requis de croiser les informations entre les différentes techniques.

Ces approches ont donc montré l'efficacité des techniques multidisciplinaires pour interpréter la dispersion et pour observer et caractériser les défauts cristallins. L'étude de faisabilité est donc satisfaisante pour quelques cristaux, et les expériences devraient être continuées. Néanmoins, quelques problèmes expérimentaux ont entravé les expériences de MET et de RBS/C : l'échantillon témoin contient probablement des défauts, qu'il convient d'éliminer avant d'interpréter davantage les résultats. Ainsi, il faut poursuivre les efforts expérimentaux pour pouvoir déterminer l'influence de l'implantation et de la fluence sur les défauts. A terme, on pourra également étudier l'influence de la chimie de l'apatite sur les défauts. Les efforts en informatique pourraient également être portés sur l'étude de la fonction qui relie les âges et la composition chimique, mais d'autres algorithmes devraient être utilisés à cet effet.

6. La géologie du Massif Armoricain

L'étude thermochronométrique du massif de Ploumanac'h a permis : (i) de reconstituer l'histoire thermique du massif grâce aux données traces de fission, et (ii) de discuter de l'histoire géologique du Massif et des phases d'enfouissement, grâce aux deux thermochronomètres. Deux scénarios étaient initialement envisageables concernant l'histoire de l'érosion du massif armoricain : soit le massif a été érodé au Trias et est resté à la surface depuis lors telle une île, soit il a été de nouveau enfoui sous les sédiments jurassiques et/ou crétacés. La thèse a exclu le premier scenario, car l'inversion des données traces de fission prédit un réchauffement depuis une température de 60°C au Trias jusqu'à environ 125°C au Jurassique, que l'on peut relier à la transgression marine qui a affecté le bassin de Paris et la Manche. Des dépôts d'environ 1 à 2.5 km ont donc surmonté le pluton de Ploumanac'h au Jurassique.

D'autre part, nous avons utilisé la dispersion des données (U-Th-Sm)/He sur apatite conjointement avec les âges AFT pour contraindre l'histoire au Crétacé. Nos simulations confirment une phase de réchauffement au Crétacé, avant l'exhumation au Maastrichtien. Nous avons contraint la température de ce réchauffement à environ 60±10°C. Ainsi, il est probable qu'au Crétacé le massif de Ploumanac'h était recouvert de sédiments. Cela est compatible avec la présence de dépôts Cénomaniens et de craie Albien sur les bordures du Massif Armoricain, et avec l'hypothèse de Guillocheau et al. (2003) et Bessin et al. (2014) selon lesquels le Massif Armoricain a été recouvert de sédiments au Crétacé. Néanmoins, ces auteurs pensent à une faible épaisseur de dépôts Crétacés, tandis que notre température de 60°C est compatible avec une puissance d'environ 1 km de dépôts en supposant un gradient thermique de 30 à 50°C/km.

Ainsi nos données thermochronométriques apportent des précisions sur la présence et l'ampleur des transgressions marines ayant affecté le massif et sur l'histoire de son érosion.

En plus de confirmer le scenario développé par Guillocheau et al. (2003), nous quantifions les phases d'enfouissement, ce qui est un intérêt majeur de la méthode. Le Massif Armoricain, comme le bassin de Paris, a probablement été immergé sous les mers jurassiques et crétacées, et des dépôts marins d'environ 1 à 3 km au Jurassique et <1 km au Crétacé ont probablement été érodés depuis lors. Les granites sont donc les témoins de l'histoire sédimentaire dont il ne reste que peu de traces.

7. La géologie de la Petite Kabylie (Algérie)

La géologie de l'Algérie est marquée par les chaînes Alpines du Nord de l'Algérie (Tell, Kabylies). La création de ces reliefs s'est faite par la déformation de la marge Algérienne et la surrection associée. La chronologie Méditerranéenne suggère l'ouverture Mésozoïque des bassins téthysiens puis l'inversion de l'Atlas dans une première phase à partir l'Eocène ; suivi de l'extension des bassins de la mer Méditerranée à l'Oligo-Miocène – dont le bassin Algérien il y a 16-8 Ma.

Selon Deverchère et al. (2005), la déformation de la marge algérienne a débuté au Plio-Quaternaire où l'activité des failles a provoqué la compression néogène au large. Strzerzynski et al. (2010) soutiennent la présence d'une inversion tectonique de la marge au Plio-Pleistocene à proximité d'Alger. L'évolution tectonique de la marge algérienne au Néogène est donc intéressante à étudier de par sa rareté. Elle a donné lieu à plusieurs études montrant une activité compressive au Plio-Quaternaire (interprétée comme une réactivation de la marge par Leprêtre et al. 2013 ; et comme une inversion tectonique du domaine offshore par Strzerzynski et al., 2010).

La thermochronométrie AFT et AHe sur les échantillons du Cap Bougaroun a permis d'affiner cette chronologie au Néogène et d'apporter des données onshore. Ce pluton a été formé à la suite de la rupture du slab sous l'Algérie il y a 17 Ma (Abbassene et al., 2016). La

simulation numérique des données (U-Th-Sm)/He et traces de fission sur apatite indique une phase d'exhumation et d'érosion majeure au Tortonien. Ainsi, nous suggérons que l'inversion des Petites Kabylies a eu lieu au Tortonien, à la suite de la collision de l'AlKaPeCa et de la plaque Africaine. Ce résultat est intéressant, car l'âge de l'inversion est antérieur à celui qui est généralement admis au large de la marge algérienne.

Ainsi, les granites de la marge algérienne ont enregistré l'histoire de la compression des Petites Kabylies. Nous avons proposé un schéma géodynamique de l'évolution de l'inversion, avec tout d'abord la première phase de compression de l'Atlas à l'Eocène, suivie de celle des Flyschs au Chattien, celle du Tell et des Kabylies au Tortonien, puis la deuxième phase d'inversion de l'Atlas au Pliocène. Nous suggérons que la déformation s'est propagée depuis l'onshore au Tortonien jusqu'au bassin algérien offshore au Pliocène.

8. Perspectives

Cette thèse a été l'occasion d'étudier la méthodologie (U-Th-Sm)/He sur apatite, d'y apporter des pistes d'amélioration, et de la mettre en œuvre sur des cas géologiques. Nous avons proposé des innovations à la fois méthodologiques et géologiques. Néanmoins, il reste encore beaucoup de progrès à faire dans les modèles thermochronométriques. La principale conclusion est le rôle primordial de la production des particules alpha et des défauts dans la rétention d'hélium. Cela ouvre plusieurs perspectives de recherche. D'abord, nous avons montré dans le Trégor que, sur les quelques cristaux les plus endommagés, la rétention d'hélium diminue avec la dose. Dans l'avenir, il faut systématiquement rechercher l'évolution de la rétentivité des apatites avec eU, pour les apatites les plus endommagées. Pour cela, il faut cibler les sites anciens ou riches en uranium comme le massif Armoricain afin d'avoir une chance de trouver des apatites à fort eU. D'autre part, nous avons mis en relation l'évolution âge/dose avec une évolution de la topologie des défauts en fonction de leur

concentration. Les défauts grossissent puis coalescent à forte dose. Nous prévoyons de continuer les recherches dans cette direction : il nous faut maintenant établir un modèle physique de diffusion qui tiendrait compte de l'interconnexion des défauts à hautes doses ; comme c'est fait pour le zircon (Ketcham et al., 2013).

Concernant les modèles de diffusion, nous avons testé le modèle de Gerin et al. (2017) à la fois dans le Massif Armoricain et dans les Alpes. L'énergie de stockage, ΔEa, nécessaire pour expliquer les données est supérieure aux valeurs habituellement reportées. Donc si l'on souhaite utiliser ce modèle pour inverser des données, il faut trouver un moyen de quantifier cette énergie pour chaque grain. Cela revient à effectuer des expériences pour comprendre jusqu'à quelle température est retenu l'hélium dans les cristaux d'apatite. D'après les données des Alpes Suisses, il est probable que l'hélium soit retenu à plus forte température (ex : 150°C) que les 120°C prévus en théorie.

D'un point de vue géologique, il serait intéressant de refaire l'étude du Trégor dans d'autres plutons du Massif Armoricain, afin de voir si les résultats sont généralisables ou locaux. D'autre part, si, comme nous le supposons ici, les Petites Kabylies ont été comprimées avant le bassin algérien, il serait intéressant de réaliser un transect thermochronologique allant du Tell au bassin algérien afin de détecter l'évolution chronologique du phénomène de compression et sa double propagation vers le nord et vers le sud.

9. Bibliographie de la conclusion

Abbassene F., Chazot G., Bellon H., Bruguier O., Ouabadi A., Maury R.C., Deverchère J., Bosch D., Monié P., 2016. A 17 Ma onset for the post-collisional K-rich calc-alkaline magmatism in the Maghrebides: evidence from Bougaroun (Northeastern Algeria) and geodynamic implications. Tectonophysics 674 : 114-134.

Bessin P., Guillocheau F., Robin C., Schrötter J.M., Bauer H., 2014. Planation surfaces of the Armorican Basin (Western France): Denudation chronology of a Mesozoic land surface twice

exhumed in response to relative crustal movements between Iberia and Eurasia. Geomorphology 233:75-91.

Deverchère J., Yelles K., Domzig A., Mercier de Lépinay B., Bouillin J.P., Gaullier V., Bracene R., Calais E., Savoye B., Kherroubi A. , Le Roy P., Paul H., Dan-Unterseh G., 2005. Active thrust faulting offshore Boumerdès, Algeria, and its relations to the 2003 Mw 6.9 earthquake. Geophysical Research Letters 32 (4), 5 pp.

Flowers R.M., Ketcham R.A., Shuster D.L., Farley K.A., 2009. Apatite (U-Th)/He thermochronometry using a radiation damage accumulation and annealing model. Geochimica et Cosmochimica Acta 73 : 2347-2365.

Gautheron C., Tassan-Got L., Barbarand J. , Pagel M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. Chemical Geology 266 : 166-179.

Gerin C., Gautheron C., Oliviero E., Bachelet C., Djimbi D.M., Seydoux-Guillaume A.M., Tassan Got L., Sarda P., Roques J., Garrido F., 2017. Influence of damage on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scale. Geochimica et Cosmochimica Acta 197 : 87-103.

Guillocheau, F., Brault, N., Thomas, E., Barbarand, J., Bonnet, S., Bourquin, S., Esteoule-Choux, J., Guennoc, P., Menier, D., Neraudeau, D., Proust, J.N., Wyns, R., 2003. Histoire geologique du Massif Armoricain depuis 140 Ma (Cretace-Actuel). Bulletin d'information des geologues du Bassin de Paris 40: 13-28.

Ketcham R.A., Guenthner W.R., Reiners P.W., 2013. Geometric analysis of radiation damage in zircon, and its implications for helium diffusion. Am. Mineral. 98 : 350-360.

Leprêtre A., Klingelhoefer F., Graindorge D., Schnurle P., Beslier M.O., Yelles K., Deverchère J., Bracène R., 2013. Multiphased tectonic evolution of the Central Algerian margin from combined wide-angle and reflection seismic data off Tipaza, Algeria. Journal of Geophysical Research 118 (8): 3899-3916.

Recanati A., Gautheron C., Barbarand J., Missenard Y., Pinna-Jamme R., Tassan-Got L., Carter A., Douville E., Bordier L., Pagel M., Gallagher K., 2017. Helium trapping in apatite damage: insights from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoid lithologies. Chemical Geology, 470, 116-131.

Shuster D.L., Flowers R., Farley K.A., 2006. The influence of natural radiation damage on helium diffusion kinetics in apatite. Earth and Planetary Science Letters 249 : 148-161.

Strzerzynski P., Deverchère J., Cattaneo A., Domzig A., Yelles K., Mercier de Lepinay B., Babonneau N., Boudiaf A ., 2010. Tectonic inheritance and Pliocene-Pleistocene inversion of the Algerian margina round Algiers : Insights from multibeam and seismic reflection data. Tectonics 29 (2) .

ANNEXES

1. Introduction : activités au cours de la thèse

En dehors du travail présenté dans les chapitres précédents, j'ai effectué un certain nombre d'acrivités complémentaires au cours des trois années de thèse. D'une part, j'ai participé à plusieurs conférences, où j'ai présenté des posters ainsi que des exposés oraux de mes travaux. D'autre part, la thèse comprend des formations multiples et variées. Enfin, en plus du travail de recherche la thèse comprend un travail de médiation scientifique au cours d'événements ponctuels tels que la fête de la Science. Enfin, en tant que doctorante-enseignante, j'ai effectué 200 heures d'enseignement. La thèse m'a permis de me former à l'enseignement par la pratique de travaux dirigés de tectonique et de pétrologie sédimentaire. J'ai également encadré un stage de terrain dans le Cotentin sur les roches magmatique et métamorphiques.

Dans ce dernier chapitre, je présente les diapositives, abstracts, et posters des congrès que j'ai effectués ; ainsi que les annexes des articles présentés dans les chapitres précédents. Concernant les conférences, j'ai participé à plusieurs meetings en France et à l'étranger, dont voici la liste :

- Journées ANR, 8-10 septembre 2015, Dignes les Bains, France. Exposé oral.
- American Geoscience Union, 14-18 décembre 2015, San Francisco, USA, Poster.
- Journées ANR, 15 juin 2016, Orsay, France. Exposé oral.
- ThermoNET, 3-6 juillet 2016, Barcelonnette France, Poster.
- Réunion des Sciences de la Terre, 24-28 octobre 2016, Caen, France, Exposé oral
- Goldschmidt, 13-18 août 2017, Paris, France, Exposé oral

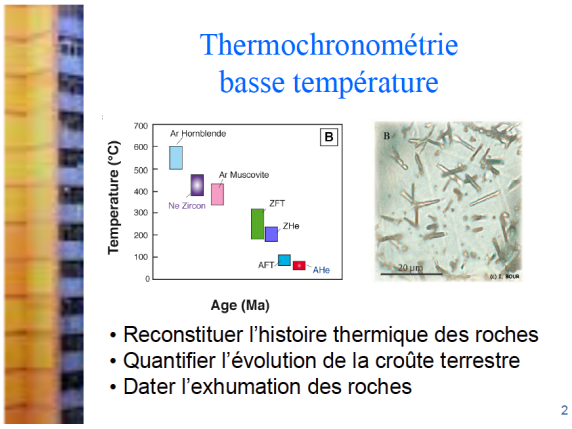
D'autre part, j'ai participé chaque année au congrès de l'Ecole Doctorale (journée des doctorants). La première année, j'ai présenté mon sujet de thèse en trois minutes. Puis, la

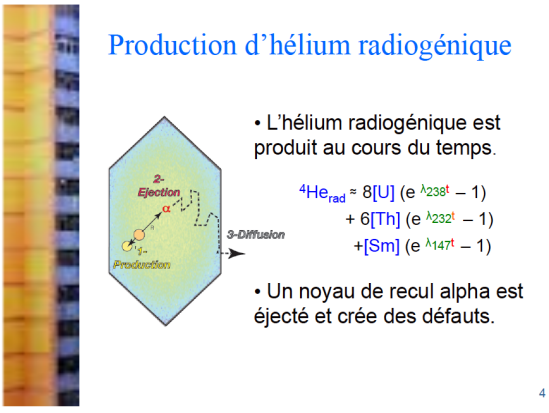
deuxième année j'ai exposé mes travaux sur le granite de Ploumanac'h lors d'un oral intitulé « Contrôle de la rétention d'hélium dans les apatites du Trégor (Massif Armoricain, France) ». Enfin, la troisième année j'ai exposé mes travaux sur le Cap Bougaroun lors d'un oral intitulé « Inversion néogène de la Peite Kabylie, datée par la thermochronométrie (U-Th-Sm)/He ».

Concernant les formations, j'ai choisi de poursuivre le parcours CLEF : communication, langage, enseignement, et formation afin d'améliorer mes techniques de communication orale et d'enseignement. J'ai focalisé l'enseignement et la médiation sur la tectonique et la pétrologie sédimentaire. Par la suite, je détaille les ateliers et cours promulgués.

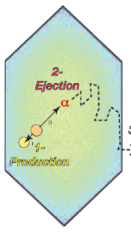
2. Conférences

Dans cette section, je présente les abstracts puis les diapositives présentées lors des différents congrès auquels j'ai participé. Ci-dessous les diapositives présentées aux journées ANR de 2015 à Dignes-Les-Bains.





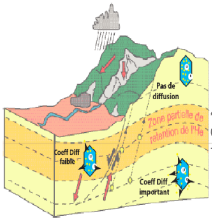
Diffusion d'hélium hors de l'apatite



- Perte d'hélium par diffusion :
  $D/a^2 = D_0/a^2 * e^{-E_a/RT}$
- Ea varie dans le temps
- Le taux de diffusion diminue avec la température

5

Diffusion d'hélium hors de l'apatite



- Au dessus de 120°C, l'hélium est perdu par diffusion.
- En dessous de 40°C, l'hélium est emmagasiné.
- Entre les deux, il y a perte partielle de l'hélium produit.

6

L'âge (U-Th-Sm)/He

- L'âge thermochronologique est un temps.
- C'est le temps nécessaire pour accumuler la concentration d'hélium mesurée dans le cristal.
- Il est calculé connaissant les concentrations en U,Th,Sm (et donc le taux de production d'hélium).

AHe = $^4He_{mesuré}$ / p

p= Taux de production d'He_{rad} par an

$^4He_{mesuré}$= $^4He_{produit}$ - $^4He_{perdu}$

7

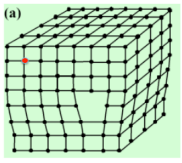
Autres facteurs affectant l'âge hélium

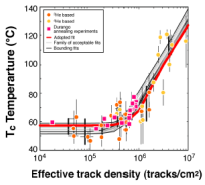
- La taille (Rs) et géométrie du cristal (cassures)
- Zonation U-Th-Sm
- La chimie influence la diffusivité de l'hélium
- La pétrologie (taille et nature des grains, implantation)
- Les défauts cristallins jouent un rôle dans l'accumulation de l'hélium

8

Défauts cristallins

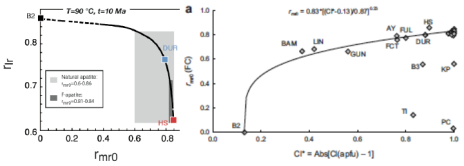
- La température cicatrise les défauts.
- La chimie influence la cinétique de cicatrisation (facteur rmr_0)
- Modèles (2009): Gautheron et al., Flowers et al.





9

Cinétique de cicatrisation



$$r_{/r} = \left(\frac{r_{mr} - r_{mr0}}{1 - r_{mr0}}\right)^K \qquad r_{mr0} = 0.83\left[\frac{(Cl^* - 0.13)}{0.87}\right]^{0.23}$$

Ketcham et al., 2007

- Une cinétique calibrée pour la cicatrisation des traces de fission

10

Calibration à l'échelle des temps géologiques

Dans les cratons anciens, il y a souvent discordances entre modèles et observations.

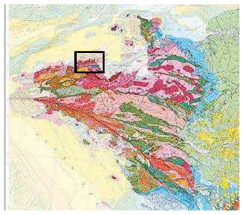
But de l'étude:

Sur un vieux pluton granitique (~300 Ma) ayant subi une seule histoire thermique, nous inventorions les **âges AFT et AHe**

- *Retrouve-t-on les résultats des modèles ?*
- *La chimie et la pétrologie ont-elles une influence sur les âges ?*
- *Pour une large gamme de eU, et de densité de défauts, comment varient les âges ?*

11

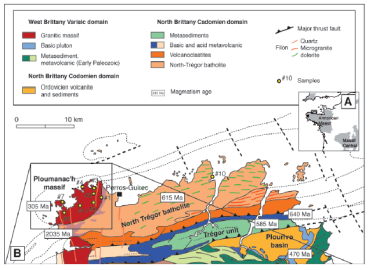
Le massif armoricain



- Chaine varisque, intrudée par des granites hercyniens.
- Pas de sédiments onshore actuellement
- Histoire de l'exhumation peu connue (d'où l'intérêt de la thermochronologie)

12

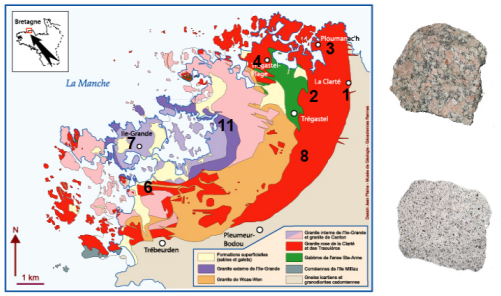
Le complexe de Ploumanac'h



- Mis en place à l'Hercynien (~300 Ma).
- Une même histoire thermique, refroidissement long.

13

Le complexe de Ploumanac'h



- Une large gamme de lithologie, de chimie des roches, taille de grains, et de eU (9 échantillons)

14

Méthodes

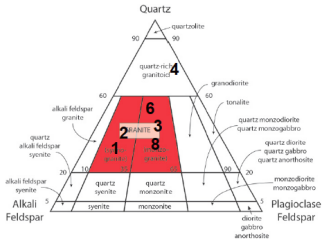
- Etude pétrologique et chimie globale (sur poudre)
- Datation AFT sur 3 éch. + chimie (laser, 60 mes.)
- Datation AHe (99 mes.) + chimie (ICP, 60 mes.)
- Analyses chimiques des apatites à la microsonde (500 mes.)

15

Résultats

16

Pétrologie des échantillons



- Externes: Syénogranites (P1, 2); monzogranites (P3,6,8)
- Internes: Leucogranite (P7) et granite à 2 micas (P11)
- Autres: Granodiorite (P10), Granitoïde à qz (P4)

17

Analyses globales

	U ppm	Th ppm	Sm ppm	eU	La ppm	Rb ppm	Ce ppm	SREE ppm
Plou#1	19	130	10	51	77	252	158	515
Plou#2	6	50	6	18	97	242	165	786
Plou#6	11	61	10	16	102	240	187	819
Plou#7	9	27	4	13	43	237	74	576
Plou#10	2	9	5	4	29	84	64	463
Plou#11	7	22	4	13	40	269	69	595

- Une large gamme de chimies et de eU
- Les incompatibles sont pauvres dans la granodiorite
- Ils sont plus riches dans les syenogranites

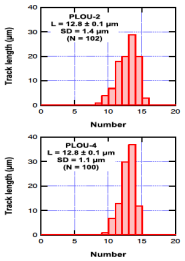
18

Chimie des apatites

	PLOU1	PLOU2	PLOU3	PLOU4	PLOU6	PLOU8	PLOU10	PLOU11
P2O5	40,59	40,90	41,17	40,52	40,41	42,51	41,45	41,42
CaO	54,16	54,09	54,13	53,31	54,11	54,90	54,59	54,06
F	3,75	3,63	3,68	3,81	3,59	3,66	**3,45**	3,90
Cl	0,02	0,02	0,02	0,01	0,01	0,02	**0,16**	0,01
SO3	0,02	0,01	0,02	0,04	0,02	0,01	0,01	0,01
SiO2	0,56	0,64	0,66	0,67	**1,17**	0,52	0,17	**0,01**
FeO	0,06	0,06	0,07	0,09	0,10	0,06	0,14	0,42
MgO	0,01	0,01	0,01	0,00	0,01	0,01	0,02	0,07
MnO	0,09	0,04	0,05	0,10	0,05	0,06	0,12	0,52
Na2O	0,04	0,03	0,03	0,13	0,01	0,02	0,06	0,12
Y2O3	0,39	0,18	0,23	0,93	0,16	0,18	0,09	0,25
La2O3	0,14	**0,29**	0,24	0,11	0,20	0,16	**0,12**	**0,04**
Ce2O3	0,45	**0,78**	0,69	0,41	0,53	0,48	**0,29**	**0,11**
Sm2O3	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,00	0,00
SrO	0,00	0,01	0,01	0,00	0,02	0,03	0,09	0,10
Pr2O3	0,08	0,10	0,11	0,07	0,07	0,07	0,03	0,02
Nd2O3	0,36	0,43	0,44	0,40	0,31	0,31	0,15	0,08
(OH)	0,00	0,00	0,00	0,04	0,70	0,00	0,00	0,00

19

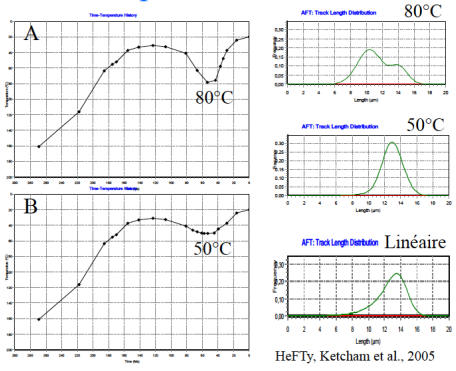
Traces de fission sur apatite



- Ages traces homogènes : de 140 à 160 ±10 Ma
- Distribution unimodale des longueurs de traces
- Pic autour de 12.8-13±1.1 µm

20

Interprétations des AFT



HeFTy, Ketcham et al., 2005

21

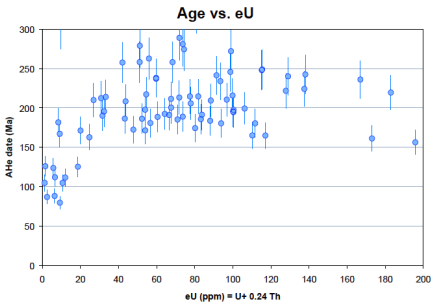
Interprétations des AFT

- Le refroidissement est lent
- Long passage dans la zone de rétention partielle
- Pas de réchauffement > à 60 °C
- Le système est sous-contraint

  ➢ Nécessité d'utiliser les données AHe et les contraintes géologiques

22

Ages hélium sur apatite (AHe)



23

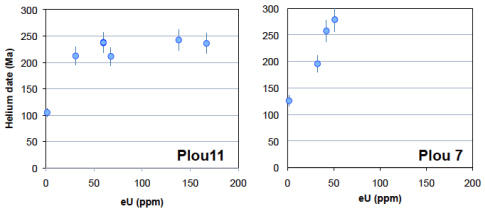
Relation âge/eU

- Des âges hélium variables: 80 à 300 Ma
- La relation est croissante
- Plus il y a de défauts (eU élevés), mieux on retient l'hélium (âges élevés)
- A fort eU (>80) ppm, la rétention semble diminuer

24

AHe

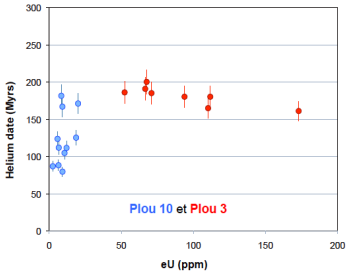
- Granites à grains fins de l'enveloppe interne: leucogranite et granite à deux micas.



25

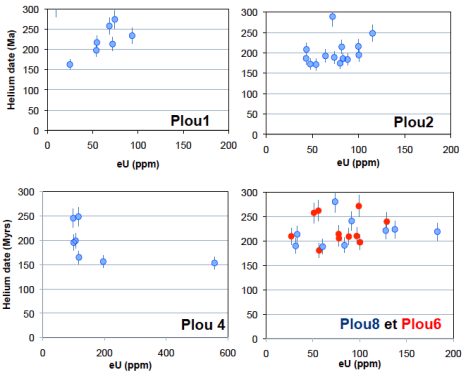
AHe

- Granodiorite du Trégor et monzogranite P3:

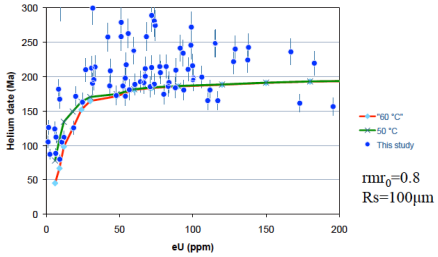


26

AHe



Facteurs influençant les âges



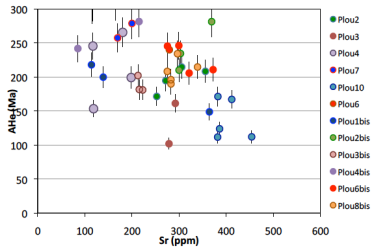
rmr_0=0.8
Rs=100µm

- Une même histoire thermique

➢ D'autres facteurs que le chemin (T,t) influencent les âges

28

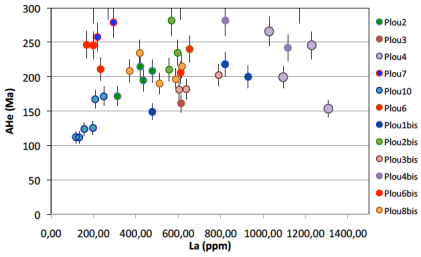
Relation âge hélium/chimie



- Les âges hélium sont plus faibles dans les apatites riches en Sr.

29

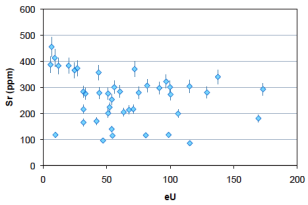
Relation âge hélium/chimie



- Corrélation avec le La ?

30

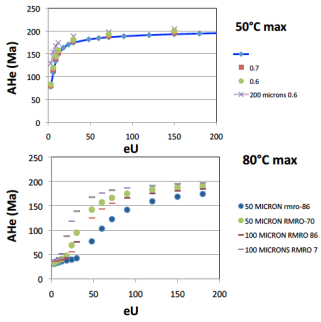
Mécanismes envisageables



- Le Sr inhibe donc la rétention d'hélium
- Le Sr pourrait favoriser la cicatrisation des défauts, et ainsi diminuer la rétention d'hélium.

31

Exemples de simulations



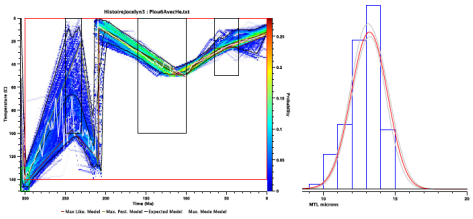
32

Contraintes géologiques

- Cristallisation il y a ≈ 300 Ma
- Dépôt au Trias et au Jurassique
- Phase de pénéplanation Crétacé inf. (<100 Ma).
- Dépôt crétacé sup (en mer)

33

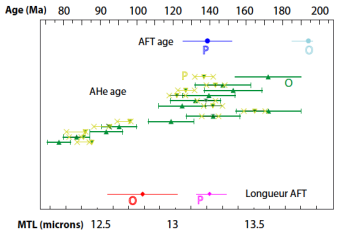
Exemples de simulations



- Le modèle le plus probable reproduit les données hélium, mais pas les âges AFT.

➢ Nécessité d'utiliser de nouveaux modèles

Exemples de simulations

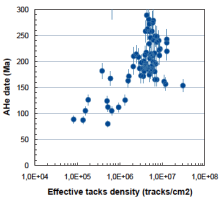


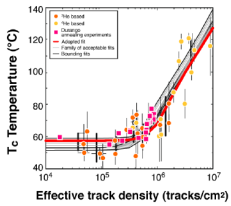
- Le modèle le plus probable reproduit les données hélium, mais pas les âges AFT.

➢ Nécessité d'utiliser de nouveaux modèles

35

Relation âge/défauts





36

Histoire thermique

- Exhumation (refroidissement) de 300 à 250 Ma
- Sédimentation (réchauffement) du Trias à la fin du Jurassique, jusqu'à 50°C.
- Dépôt puis érosion à la fin du Crétacé
- Exhumation cénozoique

37

Conclusions

- Nous confirmons l'hypothèse d'un stockage d'hélium dans les défauts cristallins.
- A long terme, dans ce vieux pluton, les âges hélium sont plus vieux que les âges traces.
- La pétrologie joue un rôle dans les âges. Les âges He les plus vieux sont dans les leucogranites.
- Certains éléments, comme le Sr, influent sur les âges hélium.

38

Perspectives

- D'autres analyses sur des chimies plus variées permettraient de conclure sur l'influence de la chimie sur les âges.
- Tester les nouveaux modèles de l'ANR: nouvelles lois de cicatrisation; nouveau modèle de diffusion.

39

Ci-dessous l'abstract et le poster présentés à la conférence de l'American Geoscience Union à San Francisco en décembre 2015.

(U-Th-Sm)/He thermochronological age distribution in a slowly cooled plutonic complex (Ploumanac'h intrusion, France): insights into helium diffusion processes.

Alice Recanati[1], Cécile Gautheron[1], Yves Missenard[1], Rosella Pinna[1], Jocelyn Barbarand[1], Laurent Tassan-Got[2]

1 Université Paris Sud, UMR GEOPS, 91405, Orsay, France

2 Université Paris Sud, IPN, in2p3, 91405 Orsay, France

(U-Th-Sm)/He thermochronology is widely used to determine the thermal histories of mountain ranges and sedimentary basins ([1]). Apatite crystals retain radiogenic helium at low temperatures, thus giving an insight into upper crustal evolution (e.g. exhumation, subsidence, erosion). Advanced models now reliably predict helium (He) production and diffusion rates in apatite crystals, integrated over time/temperature paths as a helium date ([2], [3]). Interpretation of a set of helium dates is not obvious though, especially when the cooling history is complex or long. Misunderstandings of dates may reveal that other parameters than time or temperature also influence helium contents in apatite.

The present study determines the variables that impact on He diffusion in apatite over long timescales. We report the (U-Th-Sm)/He date distribution within a slowly cooled intrusion, along with AFT data, as well as extensive petrological and chemical characterization. The Ploumanac'h site (Brittany, France) was chosen because it includes small (<km) scaled spatial variations in petrology and chemistry. The Hercynian Ploumanac'h complex is composed of four different lithologies that underwent the same thermal history. A first cooling event occurred 250 Myrs ago, followed by a long stay in the He partial retention zone, and a final Late Cretaceous exhumation.

Results evidence scattered (U-Th-Sm)/He dates, ranging from 80±8 to 289±29 Myrs, whereas AFT ages range from 120 to 160 ±10 Myrs. The old and scattered (U-Th-Sm)/He ages cannot be explained with current models. We investigate the influence of monograin chemistry, crystal defect, and sample petrology on (U-Th-Sm)/He dates. Data confirm that He can be stored at defect sites, but also support a decrease in He retentivity for high equivalent damage fraction (>6-910^6 tracks/cm^2).

[1] FILLON C., GAUTHERON C., VAN DER BEEK P., 2013. Oligo-Miocene burial and exhumation of the Southern Pyrenean foreland quantified by low temperature thermochronology. *Journal of the geological society* **170**, 66-77.

[2] GAUTHERON C., TASSAN-GOT L., BARBARAND J., PAGEL M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. *Chemical Geology* **266**, 166-179.

[3] FLOWERS R., KETCHAM R., SHUSTER D.L., FARLEY K., 2009. Apatite (U-Th)/He thermochronometry using a radiation damage accumulation and annealing model. *Geochimica et Cosmochimica acra* **73**, 2347-2365

(U-Th-Sm)/He thermochronological age distribution in a slowly-cooled plutonic complex (Ploumanac'h intrusion, France): insights into helium diffusion processes.

A. Recanati [1], C. Gautheron [1], J. Barbarand [1], L.Tassan-Got [2], Y. Missenard [1], R. Pinna-Jamme[1]

Paris Sud university, 1 Geosciences Paris-Sud laboratory (GEOPS), 2 Institut de Physique Nucléaire (IPN) . **Contact: alice.recanati@u-psud.fr**

Abstract

(U-Th-Sm)/He thermochronology is widely used to determine the thermal histories of mountain ranges and sedimentary basins. Apatites retain radiogenic helium at low temperature, thus giving an insight into upper crustal evolution. Interpretation of a set of helium dates is not obvious though, especially when the cooling history is complex or long.

The present study reports the distribution of (U-Th-Sm) /He dates within the North Tregor province (Brittany, France) along with extensive petrological and chemical characterization. All samples have undergone a similar thermal history. However, results evidence scattered (U-Th-Sm) dates, which cannot be explained with current damage and annealing models. Here is investigated the influence of individual grain chemistry, crystal defect, and sample petrology on (U-Th-Sm) /He dates. This approach finally enables to calibrate new annealing models at the geological timescale.

Aim of the study

* To determine the parameters that influence He retention in apatite over long timescales.
* To calibrate the AHe thermochronometer at the geological timescale.

I. Geological context: a peneplaned massif

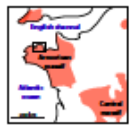


Fig.1: Regional map of Western France

Fig.2: Geological map of the Pink Granite coast (Brittany)

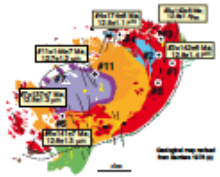


Fig.3: Geological map of the Ploumanach massif

II. AFT and geological constraints

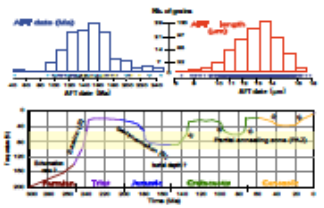


Fig.4: Fission track analysis and thermal history

III. AHe and AFT results: some discrepancy ?

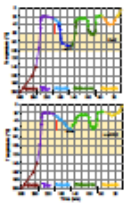


Fig.5: Modeled thermal histories

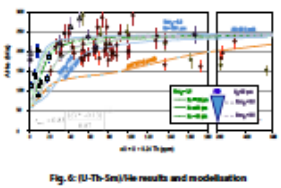


Fig. 6: (U-Th-Sm)/He results and modelisation

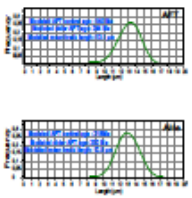


Fig.7: AFT modelisation

AHe interpretation

* AHe dates are generally higher than AFT dates (80-290 Ma).
* Current He diffusion models (Flowers et al. 2009, b; Gautheron et al. 2009, c) can not reproduce both AFT and AHe data : AFT data require higher burial temperature.
* AHe dates are at first order influenced by crystal damage : AHe increase with eU due to helium storage in defects.
* Current models do not account for the AHe scattering:
  - Anomalously high AHe dates reveal higher helium retention.
  - At high eU, apatite retention rate surprisingly decreases.

IV. Helium trapping within defects

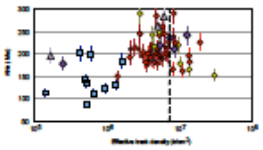


Fig.8: AHe dates and damage density

Damage production and AHe:

* Helium is trapped within damage created due to U decay.
* AHe increases with the produced damage density until 10^{17} tracks/cm^2 .
* The RDAAM model is not calibrated for the higher densities (> 10^{17} tracks/cm^2)

Damage annealing and AHe:

* Auto-annealing may induce a decrease in helium retention at high defect densities/eU
* Current models assume that alpha damage and fission track annealing kinetics are similar. This assumption is not verified in Ploumanac'h, otherwise AHe would equal AFT dates
* AFT are younger than AHe dates. AFT data thus imply deeper burial phase than AHe data, unless alpha damage anneal slower than AFT as detailed in Fox and Shuster 2014(d).

V. Impact of apatite geochemistry on AHe

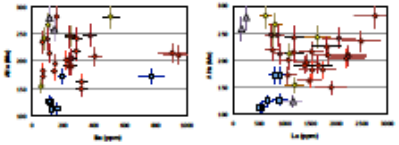
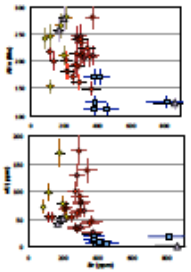


Fig.9: AHe dates and apatite geochemistry



Apatite geochemistry and AHe dates

* We investigated the role of individual grain composition on AHe dates.
* No correlation was found between AHe dates and crystal chemistry, except for Sr.
* For Sr, there is a weak correlation (r²=0.4). AHe decrease with Sr content. However, Sr content are also inversely correlated with eU which influences AHe. There is probably no causal relationship between AHe and Sr variations.

Apatite geochemistry and AFT dates

* No correlation between individual AFT date and geochemistry was found.
* Cl content is higher in the granodiorite from North Tregor (#10), which also has the highest Dpar, and includes the oldest AFT. As expected, Cl probably reduces AFT annealing rates (Green et al. 1985, a, and Gautheron et al. 2013, f).

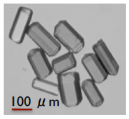
Conclusions and Perspectives

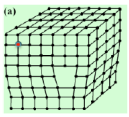
* The Ploumanac'h massif is ideal to study the source of natural dispersion in (U-Th-Sm)/He dates, because of its short-scale petrological /geochemical variety and its tectonic quietness.
* The massif was peneplaned by three major erosion phases since the Permo-Trias. The thermochronometers have been partially annealed due to a long stay of the PAZ/HePRZ, but were not reset.
* At first order, the thermal history and crystal damage control AHe dates. On the other hand, apatite chemistry is not correlated to AHe dates.
* Current models failed to reproduce both AFT and AHe dates. To reconcile both datasets, two improvements are required:
  - alpha damage have to anneal slower than AFT; thus He retention has to be high.
  - at high damage density, damage annealing rate has to rise with the defect density, similarly than in Ketcham et al. 2013 (j) for zircon.
* A new annealing model for alpha damage annealing model will resolve the first point (Gerin et al., in prep ; cf. poster Gautheron et al., AGU 2015). The new law will be calibrated using the present AHe and AFT datasets.

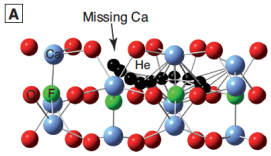
References:

Ci-dessous, les diapositives de l'exposé réalisé lors des journées ANR de juin 2016 intitulé : (U-Th-Sm)/He thermochronological study of the Pink Granite Coast (French Armorican Massif) : alpha damage and He rétention.

Why is Helium retained in apatite ?







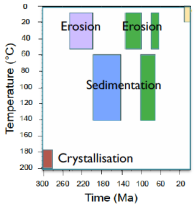
$Ca_{10}(PO_4)_3(F,Cl,OH)_2$

- Lattice defects
- Alpha recoil damage
- Vacancies

Purpose of the study

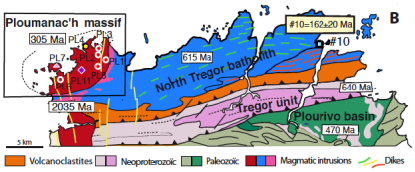
- **Which factors control AHe dates ?**
  - Crystal damage
  - Apatite chemistry
  - Thermal history
- **Can we accurately model AHe dates ?**
  - AFT data and thermal history
  - Current AHe models

The Armorican Massif



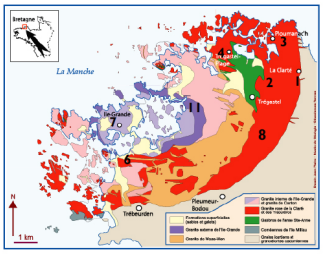
- Variscan chain, intruded by Hercynians granites.
- No sediment onshore
- Markers of three erosion and sedimentation phases

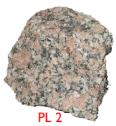
The Tregor Coast



- Icartien gneiss
- Variscan chain
- Hercynians granites

The Ploumanac'h complex

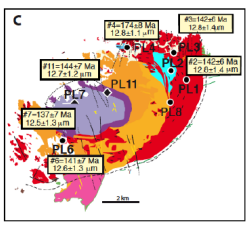


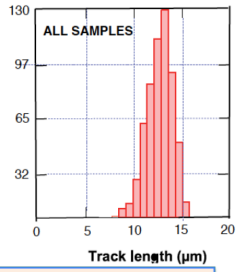


- Wide range of lithology, rock chemistry, grain size, eU content (9 samples)

5

AFT data

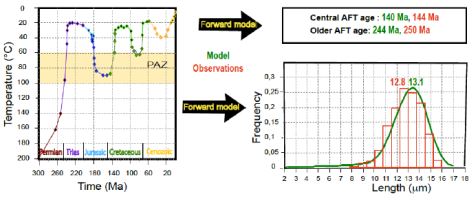




- Partial annealing of tracks due to burial phases
- Chemical control on AFT dates

6

AFT and thermal history



- Jurassic burial temperature: 90°C
- 2km-thick sediment cover

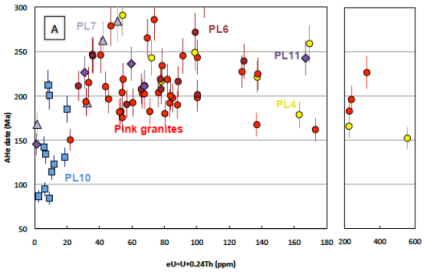
7

Methods

- Petrological and chemical characterization
- AHe datation (99 mes.) + chemistry (ICP, 60 mes.)
- Electron microprobe apatite analysis (500 mes.)
- AHe data modeling

8

AHe date distribution

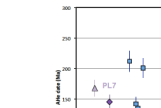


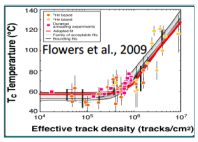
- First control on AHe dates: eU (alpha dama
- High eU decrease in He retention
- Second order scattering

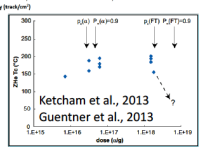
Factors controlling AHe dates

10

Alpha damage and He retention

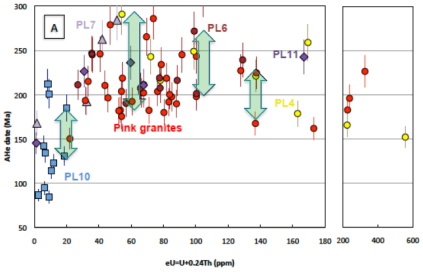






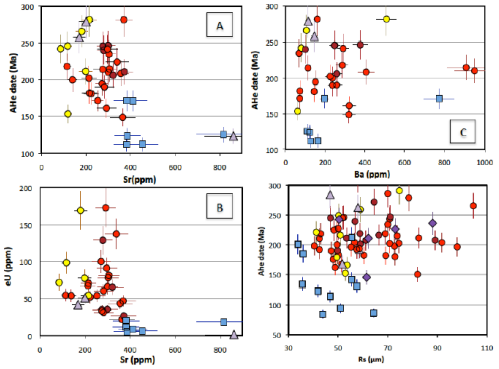
11

AHe date dispersion



12

Origin of He retention scattering ?

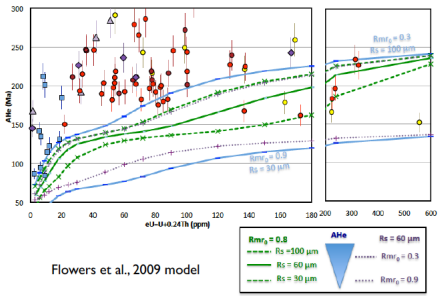


13

AFT and AHe data modeling

14

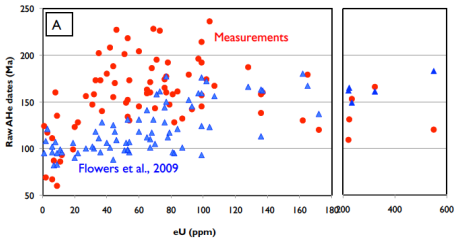
Origin of second-order scattering



Flowers et al., 2009 model

15

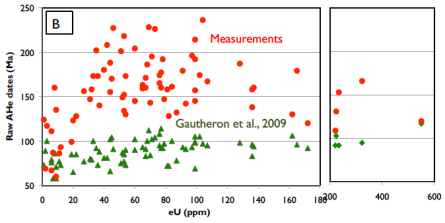
AFT and AHe discrepancy: need for a new He retention model



- Measurements
- Flowers et al., 2009 model

16

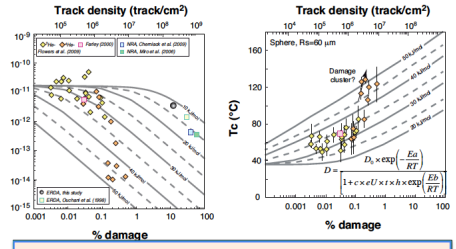
AFT and AHe discrepancy: need for a new He retention model



- Measurements
- Gautheron et al., 2009 model

17

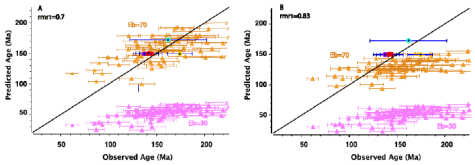
The Gerin et al. accumulation model



- Diffusion rate decreases with track density
- Trapping energy: Eb

18

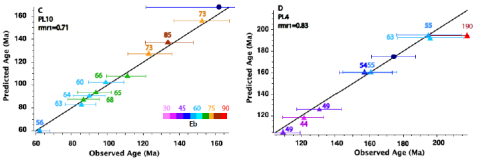
Long-term parametrization of Eb



- If Eb=30 KJ/mol, the model underestimates AHe dates
- To fit the AHe dates, Eb must be high (>70 KJ>mol)

19

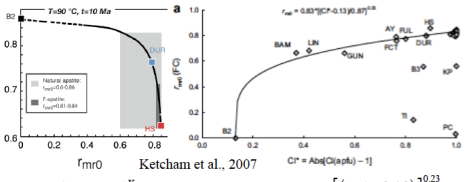
Long-term parametrization of Eb



- Variations of Eb between grains can explain the data
- Retention increases with Eb

20

Annealing kinetics

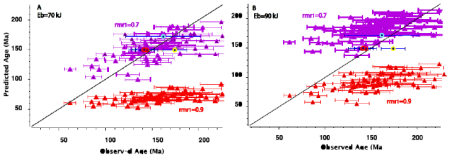


$$r_{1r} = \left(\frac{r_{mr} - r_{mr0}}{1 - r_{mr0}}\right)^{\kappa} \qquad r_{mr0} = 0.83\left[\frac{(Cl^* - 0.13)}{0.87}\right]^{0.23}$$

- Fission track annealing kinetics was calibrated
- Let's describe alpha damage annealing by rmro'

21

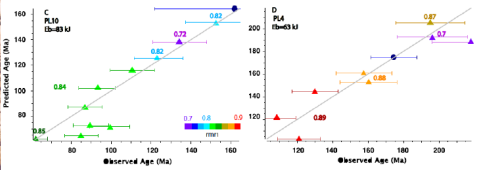
He retention and damage annealing



- Variations in annealing kinetics induces AHe dispersion
- To fit the AHe dates, damage must anneal slowly

22

He retention and damage annealing



• Small variations in annealing kinetics explain the data
• He retention decreases with rmro'

23

Conclusion

- **Alpha damage** is the main control on AHe dates.
- **He retention** is anomalously high compared to what is predicted by current models.
- This can be explained by **new diffusion parameters**: high storage capacity and/ or slow annealing rate.

24

Conclusions

- Here, we defined the **trapping energies and annealing kinetics** required to fit the data using Gerin et al.
- **Apatite size and chemistry** apparently do not control AHe dates; except for Sr where there is a weak correlation.

25

Perspectives

- Are the present observations valid in other geological contexts ? *Algeria, Alps.*
- How to quantify accurately the alpha damage kinetics rmro'? *Experimental part.*

26

Ci-dessous le poster présenté à l'école d'été ThermoNET à Barcelonnette en juillet 2016.

(U-Th-Sm)/He thermochronological date distribution in the North Tregor Coast (Armorican Massif, France): insights into helium diffusion processes.

A. Recanati [1], C. Gautheron [1], J. Barbarand [1], Y. Missenard [1], R. Pinna-Jamme [1], K. Gallagher [2], L.Tassan-Got [3]

Paris Sud university. 1 Geosciences Paris-Sud laboratory (GEOPS), 2 Geosciences Rennes, 3 Institut de Physique Nucléaire (IPN) . Contact: alice.recanati@u-psud.fr

Abstract

(U-Th-Sm)/He thermochronology is widely used to determine the thermal histories of mountain ranges and sedimentary basins. Apatites retain radiogenic helium at low temperature, thus giving an insight into upper crustal evolution. Interpretation of a set of helium dates is not obvious though, especially when the cooling history is complex or long.

The present study reports the distribution of (U-Th-Sm) /He dates within the North Tregor province (Armorican Massif, France) along with extensive petrological and chemical characterization. All samples have undergone a similar thermal history. However, results evidence scattered (U-Th-Sm) dates, which cannot be explained with current damage and annealing models. Here is investigated the influence of individual grain chemistry, crystal defect, and sample petrology on (U-Th-Sm) /He dates. This approach finally enables to calibrate new annealing models at the geological timescale.

Aim of the study

* To determine the parameters that influence He retention in apatite over long timescales.
* To calibrate the AHe thermochronometer at the geological timescale.

I. Geological context: a peneplaned massif

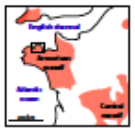


Fig.1: Regional map of Western France

Fig.2: Geological map of the Pink Granite coast (Brittany)

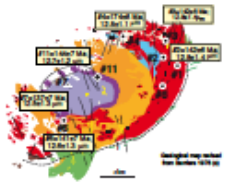


Fig.3: Geological map of the Ploumanach massif

II. AFT and geological constraints

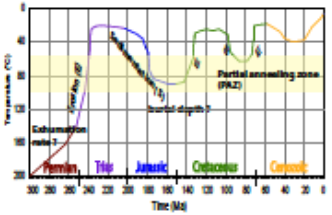


Fig.4: Fission track analysis and thermal history

III. AHe and AFT results: some discrepancy ?

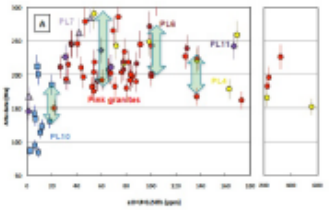


Fig.5: AHe dates and effective uranium concentration

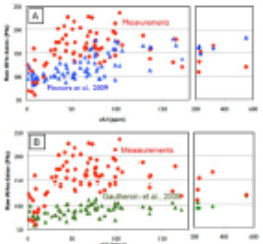


Fig.6: Forward simulations using the current models

AHe interpretation

* AHe dates are generally higher than AFT dates (80-290 Ma).
* Current He diffusion models (Flowers et al. 2009, b; Gautheron et al. 2009, c) can not reproduce both AFT and AHe data : AFT data require higher burial temperature.
* AHe dates are at first order influenced by crystal damage : AHe increase with eU due to helium storage in defects.
* Current models do not account for the AHe scattering:
  - Anomalously high AHe dates reveal higher helium retention.
  - At high eU, apatite retention rate surprisingly decreases.

IV. Helium trapping within defects

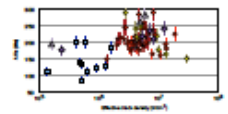


Fig.7: AHe dates and damage density

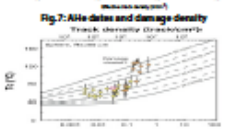


Fig.8: The Gerin et al. model (d)

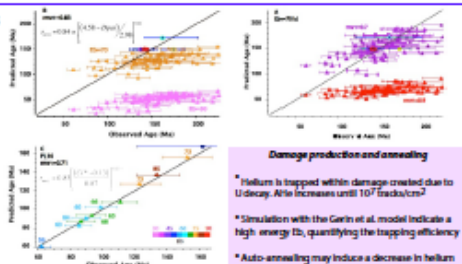


Fig.9: Forward simulations of Eb and rmr0

Damage production and annealing

* Helium is trapped within damage created due to U decay. AHe increases until 10^{17} tracks/cm^2
* Simulation with the Gerin et al. model indicate a high energy Eb, quantifying the trapping efficiency
* Auto-annealing may induce a decrease in helium retention at high defect densities/eU

V. Impact of apatite geochemistry on AHe

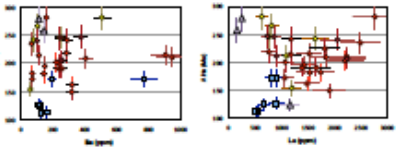
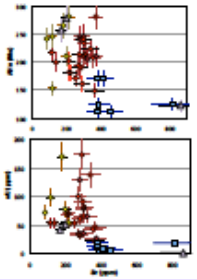


Fig.9: AHe dates and apatite geochemistry



Apatite geochemistry and AHe dates

* We investigated the role of individual grain composition on AHe dates.
* No correlation was found between AHe dates and crystal chemistry, except for Sr.
* For Sr, there is a weak correlation (r::0.4). AHe decrease with Sr content. However, Sr content are also inversely correlated with eU which influences AHe. There is probably no causal relationship between AHe and Sr variations.

Apatite geochemistry and AFT dates

* No correlation between individual AFT date and geochemistry was found.
* Cl content is higher in the granodiorite from North Tregor (#10), which also has the highest Dpar, and includes the oldest AFT. As expected, Cl probably reduces AFT annealing rates (Green et al. 1985, e, and Gautheron et al. 2013, f).

Conclusions and Perspectives

* The Ploumanach massif is ideal to study the source of natural dispersion in (U-Th-Sm)/He dates, because of its short-scale petrological /geochemical variety and its tectonic quietness.
* The massif was peneplaned by three major erosion phases since the Permo-Trias. The thermochronometers have been partially annealed due to a long stay of the PAZ/HePRZ, but were not reset.
* At first order, the thermal history and crystal damage control AHe dates. On the other hand, apatite chemistry is not correlated to AHe dates.
* Current models failed to reproduce both AFT and AHe dates. To reconcile both datasets, a new damage accumulation model was used (Gerin et al., under review), and combined with an new annealing law regarding alpha damage annealing (similar to Ketcham et al., 2007 for fission tracks).
* New alpha damage parameters are required to explain the anomalously high He retention
  - The trapping energy must be high (>49 kJ/mol)
  - Annealing has to be slow, with low rmr0 values (slower than AFT, as proposed by Fox and Shuster 2014, g).
  - At high damage density, the annealing rate has to rise with the defect density, similarly than in Ketcham et al. 2013 (h)

References:

Ci-dessous l'abstract et les diapositives présentées à la Réunion des sciences de la Terre d'octobre 2016 à Caen.

North Tregor geodynamic evolution (Armorican Massif, France) constrained by apatite (U-Th-Sm)/He and FT thermochronometers

Alice Recanati, Cécile Gautheron, Yves Missenard, Jocelyn Barbarand

The Armorican Massif (north-western France) is an ancient mountain range, which has been dismantled for several hundreds million years. Its current relief has been shaped by major erosion phases when the Massif was emerged above sea levels ([1]). The Variscan chain now has become a large peneplain. However, the quasi absence of sediments onshore makes difficult any reconstitution of the long-term erosion history or dating of planation surfaces ([2]).

The present study combines apatite fission tracks and (U-Th-Sm)/He low-temperature thermochronology to constrain the cooling (erosion) and heating (burial) chronology. It aims at quantifying the associated erosion rates over hundreds million years. Thus, the evolution of reliefs due to peneplanation can be dated. For this purpose, the combined distribution of (U-Th-Sm)/He and AFT dates was determined in plutonic rocks from the Tregor (Massif Armoricain).

AFT dates range from 137 to 174 Ma, with mean track length of 12.8 μm. AHe dates are older, between 80 Ma and 291 Ma. A positive AHe versus eU correlation was found, revealing that alpha recoil damages strongly control He retention in apatites.

The thermal history was reconstructed from AFT dates and geological considerations. The time-temperature evolution evidences a protracted residence in the partial retention zone

since the Triassic. From AHe dates, the first erosion event is inferred during the Permian. Exhumation/burial events followed, but did not exceed 100°C. From AHe dates, the last erosion event occurred ≈70 Ma ago, corresponding to the Maastrichtian uplift of the Massif Armorican. However, none of the thermochronometers were reset, implying that maximum burial temperature did not exceed 100°C.

The long-term evolution of the Tregor thus includes several low depth (<4km) burial steps between erosion stages. Three sedimentation/erosion cycles occurred. Our study enabled to define the maximal burial temperature: 90° C Thus, a ≈2 km thick sedimentary pile buried the massif in the Liassic period. Erosion of the massif occurred through a succession of burial and erosion phases. Sedimentation/erosion rates decreased with time.

In addition to the geological interest regarding peneplanation processes, the combination of AFT and AHe thermochronometry was useful to better understand and quantity the He trapping mechanisms in apatite. AFT dates are lower than AHe dates, which reveals that in these old rocks He retention is extremely high. As the current models failed to reproduce such high storage capacities, we used and refined a new thermochronometric model.

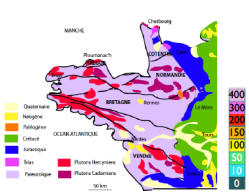
Keywords: (low temperature thermochronology, Armorican Massif, erosion, burial)

References:

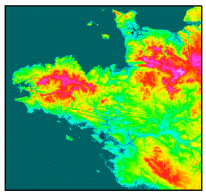
[1] Guillocheau F., et al. Geological History of the Armorican Massif since 140 My (Cretaceous-present day. Bulletin Inf. Geol. Bass. Paris (2003).

[2] Bessin, P., et al Planation surfaces of the Armorican Massif (western France): denudation chronology of a Mesozoic land surface twice exhumed in response to relative crustal movements between Iberia and Eurasia. Geomorphology (2014).

Le Massif Armorcain : contexte géologique



D'après la Carte Géol. de France, BRGM



Topographic-map.com

- Quasi absence de sédiments post-Trias
- Histoire thermique Méso-Cénozoïque complexe à déterminer: île ou histoire complexe ?

1

Objectif de l'étude

- **Quelle est l'évolution post-Triasique du Trégor ?**
  - Quelle histoire thermique ?
  - Quelle(s) phase(s) d'érosion ?
- **Stratégie de reconstitution de l'histoire thermique**
  - Datations (U-Th-Sm)/He + AFT
  - Modélisation des données

2

Thermochronologie basse température

Traces de fission sur apatite (AFT)

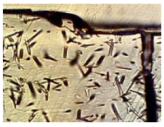
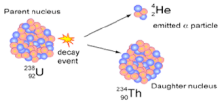


Photo :Tristan Ferroir

Zone de cicatrisation partielle (PAZ) : 60-120°C

AFT= f (t , T)

(U-Th-Sm)/He sur apatite (AHe)



eU=[U]+0.24[Th]

Colorado.edu

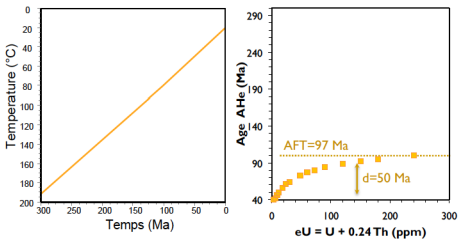
Zone de rétention partielle d'hélium (HePRZ) : 40-80°C

AHe= f (t , T , eU)

- En contexte de refroidissement monotone, interprétation directe : Datation du refroidissement à des températures < PAZ et à l'HeRPZ
- En contexte plus complexe, nécessité de coupler les thermochronomètres AFT et (U-Th-Sm)/He

3

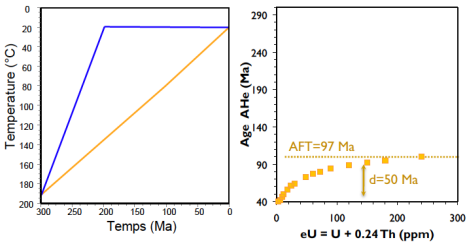
Datations thermochronologiques : aspects méthodologiques



Simulations numériques forward réalisées avec HeFTy (Kecham, 2005), avec le code de diffusion d'hélium de Flowers et al. (2009) et la cinétique de cicatrisation des traces de fission de Ketcham et al. (2007).

4

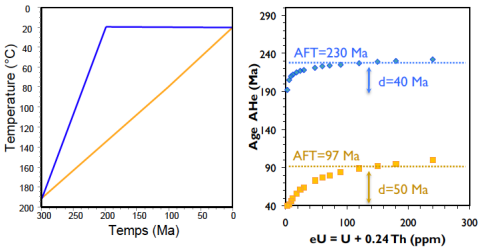
Datations thermochronologiques : aspects méthodologiques



Simulations numériques forward réalisées avec HeFTy (Kecham, 2005), avec le code de diffusion d'hélium de Flowers et al. (2009) et la cinétique de cicatrisation des traces de fission de Ketcham et al. (2007).

5

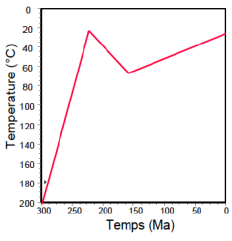
Datations thermochronologiques : aspects méthodologiques

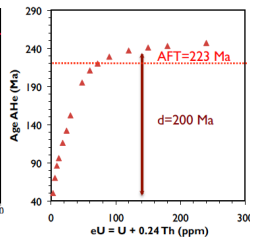


Simulations numériques forward réalisées avec HeFTy (Kecham, 2005), avec le code de diffusion d'hélium de Flowers et al. (2009) et la cinétique de cicatrisation des traces de fission de Ketcham et al. (2007).

6

Datations thermochronologiques : aspects méthodologiques

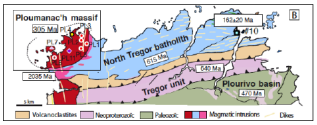


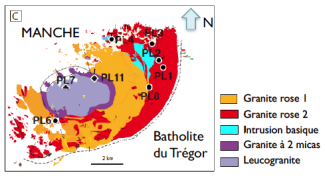


• La dispersion et AHe/AFT renseignent sur le chemin (T-t)
• Exhumation polyphasée ≠ Exhumation monophasée

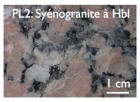
7

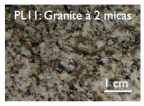
Le pluton de Ploumanac'h

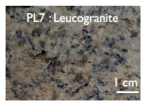




D'après Barrière (1977)

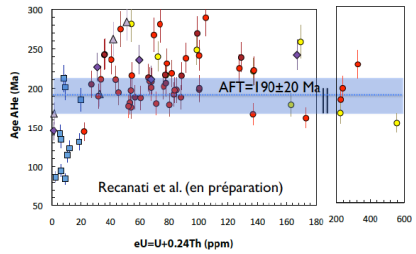






8

Distribution des âges AHe et AFT



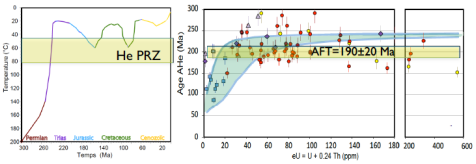
Granite rose à Hornblende Leucogranite Granite à deux micas
Granodiorite du Trégor Granitoïde quartzique

• Forte dispersion: d ≈170 Ma
• Ages croissants avec eU jusqu'à 80 ppm

9

Implications sur l'histoire du Trégor

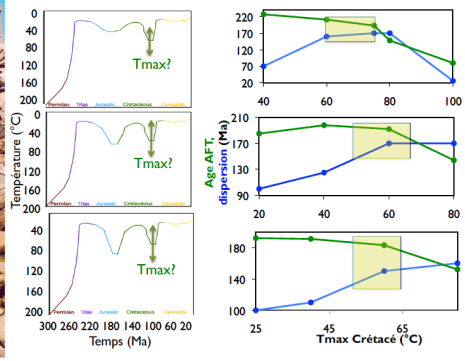
• Histoire thermique polyphasée
• Exhumation précoce : dès le Permo-Trias
• Phases de réchauffement : Guillocheau et al., 2003



Simulations réalisées avec HeFTy (Ketcham, 2005),
en utilisant les codes de diffusion de Flowers et al. (2009),
et la cinétique de cicatrisation des traces de Ketcham et al. (2007)

10

Thermochronomètres : aspects quantitatifs



Conclusion : Histoire du Trégor

- Couple de thermochronomètres : AHe, AFT
- Une histoire thermique polyphasée.
- Exhumation précoce au Permo-Trias. Phases de réchauffement, au Jurassique et Crétacé.
- Ces phases augmentent la dispersion d et diminuent l'age AFT.
- Les simulations prouvent le réchauffement Crétacé, et contraignent sa température à 60±10°C.

Merci de votre attention !

12

Ci-après l'abstract et les diapositives présentés à la Goldschmidt 2017 à Paris en août 2017.

Helium trapping in apatite damage: insights from overly dispersed (U-Th-Sm)/He dates.

A. RECANATI[1] C.GAUTHERON[1] J. BARBARAND[1] Y. MISSENARD[1] K.GALLAGHER[2] R. PINNA[1]
[1]GEOPS, UMR 8148, ,Université Paris Sud, 91405 Orsay. alice.recanati@u-psud.fr
[2]Geosciences Rennes, UMR 6118, Universite de Rennes 1, 35402 Rennes Cedex.

Over the past 10 years, the effects of radiation damage on helium diffusion kinetics were discovered and led to significant improvements of the (U-Th-Sm)/He thermochronomeric system. Nevertheless, helium retention rate and closure temperature in apatite are still debated, mostly because the physical nature of these defects, and their ability to trap helium are still unknown. Based on recent experimental analyses and quantum calculation, Gerin et al. (2017) predict helium diffusion properties in damaged apatite. In this contribution, we present a new dataset of apatite He and AFT ages, from a 300 Ma pluton (French Brittany). Using the new model, we quantify trapping behaviour in terms of energy. The AHe date dispersion for single grain with similar eU content may be explained by a variation in the trapping ability. We additionally propose that damage connect and cluster for high damage content leading to a decrease of retention.

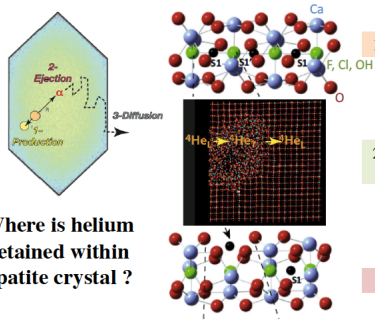
Gerin et al., 2017. Influence of vacancy damage on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scales. Geochim. Cosmochim. Acta. 197, 87-103

Helium trapping in apatite damage: insights from overly dispersed (U-Th-Sm)/He dates

Alice Recanati, C. Gautheron, J. Barbarand, Y. Missenard, K. Gallagher, R. Pinna-Jamme

Contact: alice.recanati@u-psud.fr

Helium trapping in apatite



1) Interstitial sites

2) Lattice disorder zones (damage)

Trachenko et al., 2003

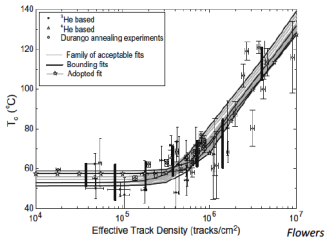
3) Vacancies

Gerin et al., 2017

Where is helium retained within apatite crystal ?

2

Helium diffusion in damage apatite



Flowers et al., 2009

Damage decrease diffusion processes

- Increase of the closure temperature
- Decrease of the diffusion coefficient

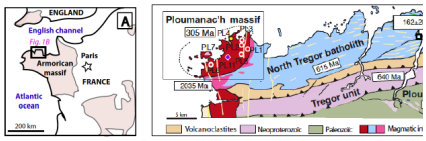
3

Aim of the study

- Investigation of the natural dispersion in AHe dates for crystals with various amount of alpha-recoil damage.
- Are the current He diffusion model reliable?
- What should be modified in available damage models ?

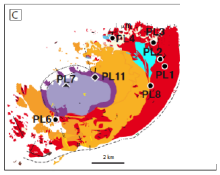
4

The French Armorican Massif: a stal



- Same low elevation
- ≈Km² area
- No major fault

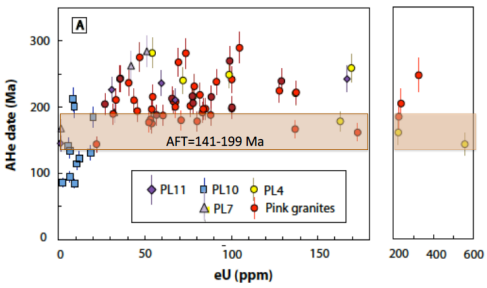
Same thermal history since ~ 300 Ma



Recanati et al., submitted to Chemical Geology

5

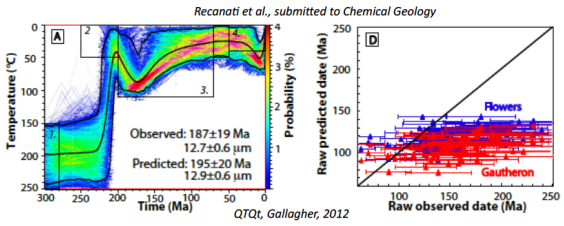
Variable (U-Th-Sm)/He dates



➢ **Complex control of He retention**

6

Current damage-related diffusion models



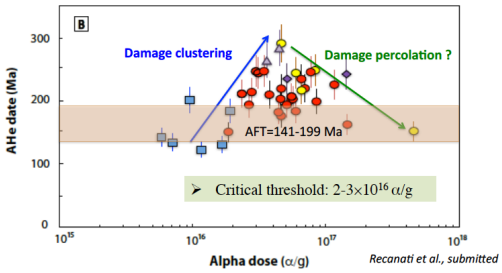
• AFT inversion: Good fit

• AHe inversion: unsatisfying

➢ **Current diffusion models mispredict He retention**

7

Helium retention and alpha-recoil damage



➢ **Similar behavior than for zircon (Guenthner et al. 2013)**

8

Testing the parameters influencing He di

➢ Model AFT + AHe data using Gerin et al. (model implemented in QTQt

$$\tilde{D}(x,t) = \frac{D(T)}{\left[1 + f(x) \times \exp\left(\frac{\Delta E_a}{RT}\right) \times h\right]}$$

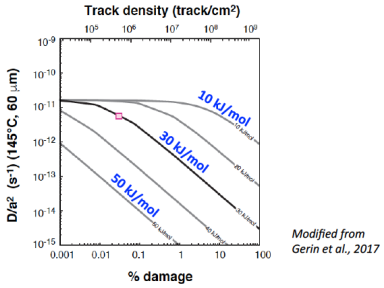
• Undamaged apatite: Tc=30-40°C (Djimbi et al., 2015)

• ΔEa=Additional energy required for He to leave damage sites once trapped

• Use ar
rmr0'
da
(≠ that f

9

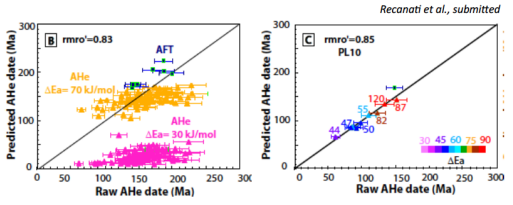
AHe date diffusion and He trapping



➢ **ΔEa quantifies the damage site retentivity**

10

AHe date dispersion and He trapping



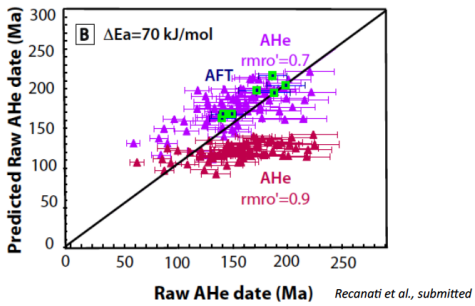
• He retention increases with ΔEa

• Dispersion is explained by ΔEa variations

➢ **The required trapping energy is higher than previously suggested**

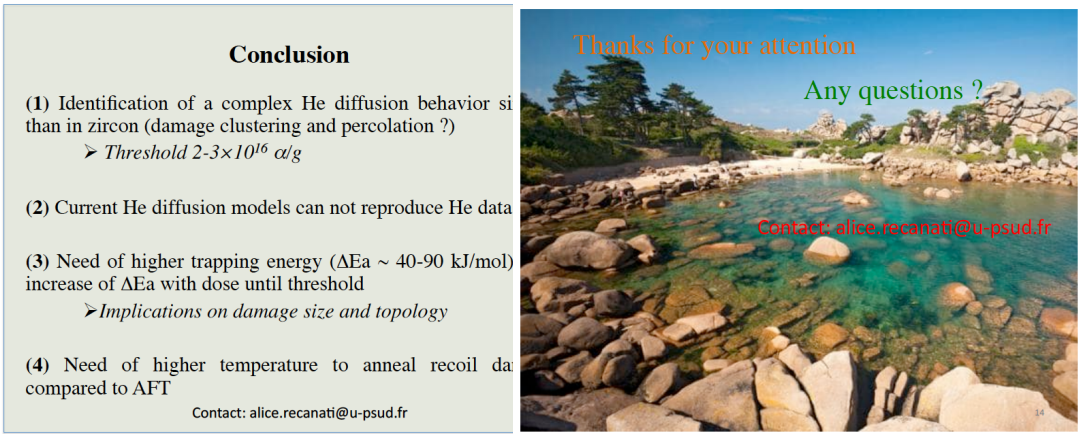
11

Alpha recoil damage annealing rate



➢ **Damage anneal slower than fission tracks**

12



3. Congrès des doctorants

Ci-dessous l'abstract et les diapositives présentées à la journée des doctorants en juin 2016.

Controls on helium retention in apatites from the Tregor (Armorican Massif, France)

Recanati, Alice

Geosciences Paris Sud

PhD student (2nd year)

Advisors: Cécile Gautheron, Yves Missenard

alice.recanati@u-psud.fr

Apatite crystals are widely used for low temperature thermochronology, as they retain fission tracks and helium at low temperature. However, the mechanisms and kinetics of helium storage are still unresolved while essential for diffusion models. Cratons are locations where retention is often higher than usual as helium accumulates for long timescales.

The present study investigates the factors controlling helium retention in apatites in such contexts. To this aim, the combined distribution of (U-Th-Sm)/He and AFT dates was determined in 300 Ma old samples from the Tregor (French Massif Armoricain). A detailed description of rock petrography and apatite geochemistry was additionally performed in order to determine the physical and chemical controls on helium retention ([1]).

The aim of this work is to better understand and quantity the He trapping mechanisms. Current helium diffusion models assume helium storage in alpha recoil related damage in apatite crystals ([2]). Retention is thus mainly controlled by alpha particle production. The apatite chemical composition is also thought to play a role in crystal storage ability, as it is assumed to influence damage annealing kinetics.

As the current models failed to reproduce the present dataset, we used a new diffusion and annealing model. Here, we calibrate it at the long-term geological scale. One of the purpose of the PhD project is indeed to investigate the parameters which influence He retention and that should be used in new models.

Results confirm that alpha decay is the main factor controlling He retention. However, they show that the trapping energy must be higher than expected in order to account for the high retention ability of these rocks. Additionally, alpha recoil damage annealing kinetics controls He retention at the second order. Yet, our results evidence that apatite geochemistry is not influencing retention.

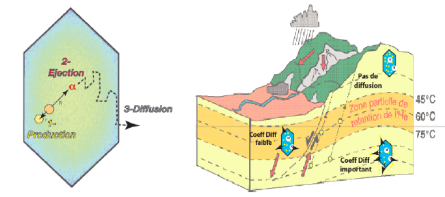
Keywords: (helium, apatite, retention, damage, annealing)

References

Recanati, A. et al., « Physical and chemical controls on He retention in alpha recoil damage: insights from the Tregor (Armorican Massif, France) », Chemical Geology, in prep.

Gautheron, C. et al., « Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology », Chemical Geology, 266, 166-179, (2009).

(U-Th-Sm)/He thermochronometry



- Radiogenic Helium production
- Alpha particle ejection
- Below 120°C (2-3 km), Helium diffusion

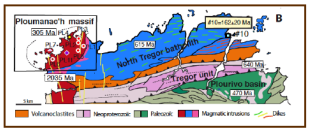
1

Purpose of the study

- **Which factors control AHe dates ?**
  - Crystal damage
  - Apatite chemistry
  - Thermal history
- **Can we accurately model AHe dates ?**
  - AFT data and thermal history
  - Current AHe models

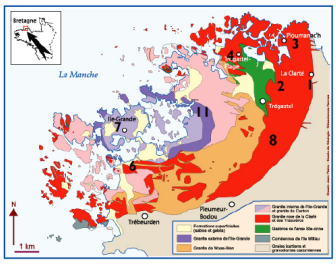
2

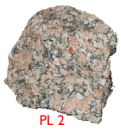
The Armorican Massif



3

The Ploumanac'h complex





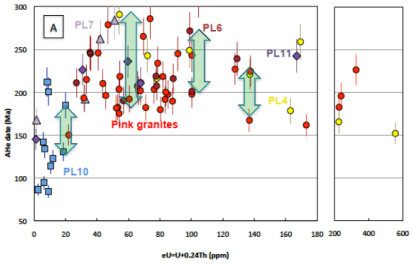
- Wide range of lithology, rock chemistry, grain size, eU content (9 samples)

4

Factors controlling AHe dates

5

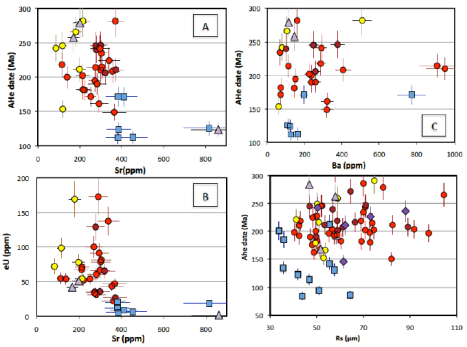
AHe date distribution



- First control on AHe dates: eU (alpha damage)
- High eU decrease in He retention
- Second order scattering

6

Origin of He retention scattering ?

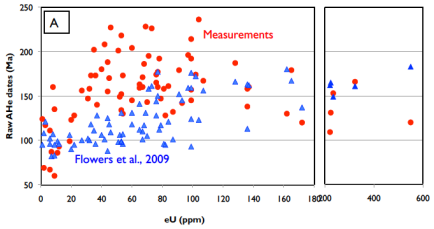


7

AHe Data modeling

8

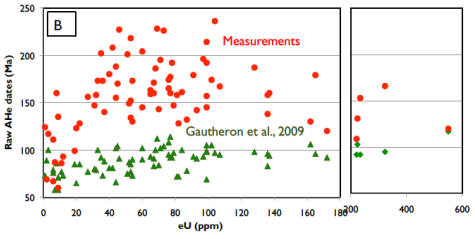
AFT and AHe discrepancy: need for a new He retention model



- Measurements
- Flowers et al., 2009 model

9

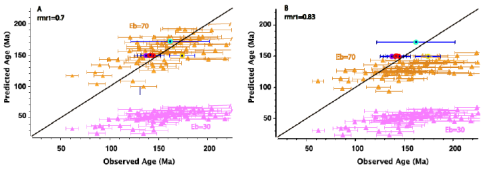
AFT and AHe discrepancy: need for a new He retention model



- Measurements
- Gautheron et al., 2009 model

10

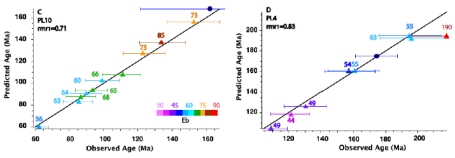
The Gerin et al. model



- If Eb=30 KJ/mol, the model underestimates AHe dates
- To fit the AHe dates, Eb must be high (>70 KJ>mol)

11

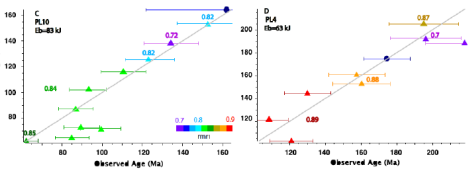
Long-term parametrization of Eb



- Variations of Eb between grains can explain the data
- Retention increases with Eb

12

He retention and damage annealing



• Small variations in annealing kinetics explain the data
• He retention decreases with rmro'

13

Conclusion

- **Alpha damage** is the main control on AHe dates.
- **He retention** is anomalously high compared to what is predicted by current models.
- This can be explained by **new diffusion parameters**: high storage capacity and/or slow annealing rate.
- **Apatite size and chemistry** apparently do not control AHe dates; except for Sr where there is a weak correlation.

14

Perspectives

- Are the present observations valid i other geological contexts ? *Algeria, A*
- How to quantify accurately the alpha damage kinetics rmro'? *Experimental*

15

Ci-après l'abstract et les diapositives présentées à la journée des doctorants en juin 2017.

Neogene inversion of Lesser Kabylia dated by (U-Th-Sm)/He thermochronometry

Recanati, Alice

Geosciences Paris Sud

3rd Year of Phd

Director: Cécile Gautheron. Advisor: Yves Missenard

alice.recanati@u-psud.fr

The North Algerian Margin is constituted of several mountain chains – the Atlas, Tell, and Kabylides- resulting from the convergence between Africa and Eurasia plates. Our study focuses on Lesser Kabylia, which was part of the AlKaPeCa – a microcontinental block that migrated toward the North Africa margin to finally invert recently.

Here, we aim to establish a chronology of mountain building in Algeria, in order to sketch the different tectonic events that affected the region. Indeed, the evolution of the relief of the Kabylides is poorly understood yet, due to the lack of information about this region.

The compression of the Atlas occurred in two phases, one at the Eocene and the second during the Plio-Quaternary period ([1]). The Tell nappes were docked on the African plate during the Miocene.

This study dates the Cap Bougaroun granite, thus providing the first low temperature thermochronometric data in Lesser Kabylia. It aims at inferring the exhumation history in this region.

Our dataset evidences a rapid exhumation step during the Tortonian times, followed by Plio-Quaternary quiescence. We interpret this as an Early onset of inversion of the Kabylides, challenging the compression chronology in Northern Algeria.

Keywords: Thermochronometry, mountain belt, geodynamics, Lesser Kabylia, Tortonian

References

Frizon D., Zizi M., Missenard Y., Hafid M., El Azzouzi M., Maury R.C., Charrière A., Taki Z., Benammi M., Michard A. « The Atlas System», in Continental evolution: the Geology of Morocco, Lectures notes in Earth Sciences 116 (2008).

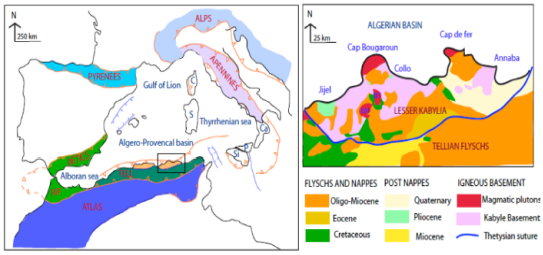
GEOSCIENCES PARIS SUD — université PARIS-SACLAY — Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG) — UNIVERSITÉ PARIS SUD

Lesser Kabylia

Neogene inversion of Lesser Kabylia, date
by (U-Th-Sm)/He thermochronometry

USTHB

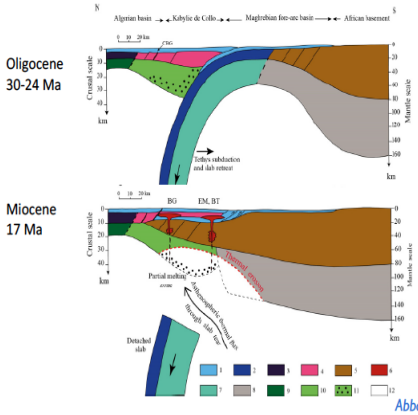
Alice Recanati, PhD (3d year)
directed by Cécile Gautheron and Yves Missen



Aim of the study

- When did the Kabylide chain enter a compression regime ?
- What's the Neogene evolution of the Cap Bougaroun pluton
- Which relationships between the Kabylides, the Maghrebides, and the African Atlas ?

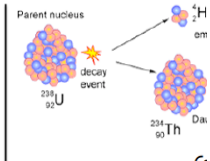
Algerian geodynamics



Abbassene et al., 2016

Low temperature thermochronon

Photo :Tristan Ferroir

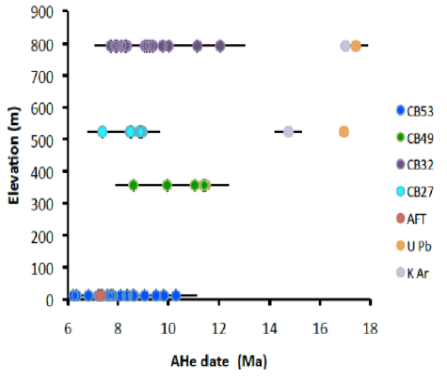


Partial annealing zone(PAZ) : 60-120°C

Helium partial retention z
40-80°C

•Datation of cooling below PAZ and HeRPZ, when the exhumatio

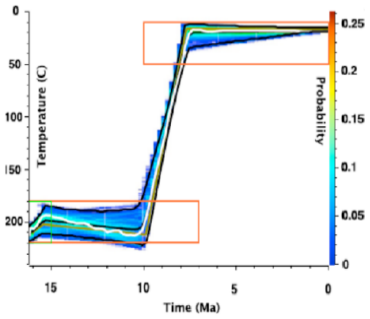
Results



AFT= 7.3±0.8 Ma

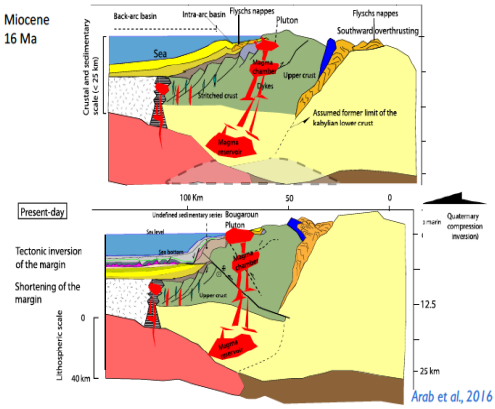
AHe= 5.2±0.4 to 12±1.2 Ma

Thermal modeling



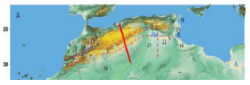
Fast monotonous TORTONIAN exhumation: 8-9 Ma.

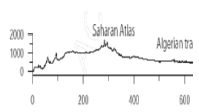
Innovation in the Kabyle calendar



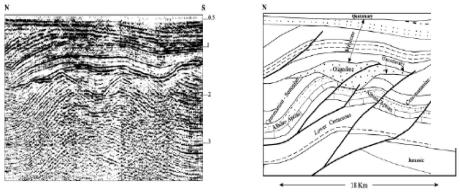
Arab et al., 2016

Regional context: Atlasic inversion



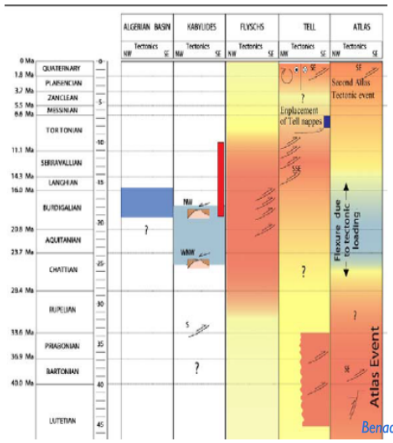


Bracene and Frizon, 2002



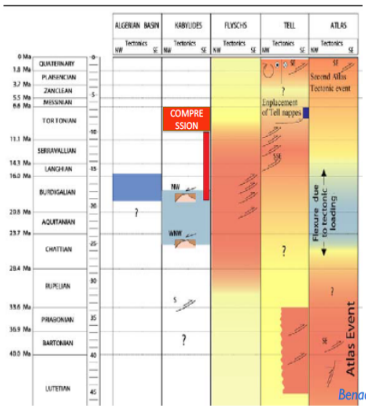
Two inversion events: Eocene (56-40 Ma) and Pliocene (5-3 Ma).

Regional context: compression events

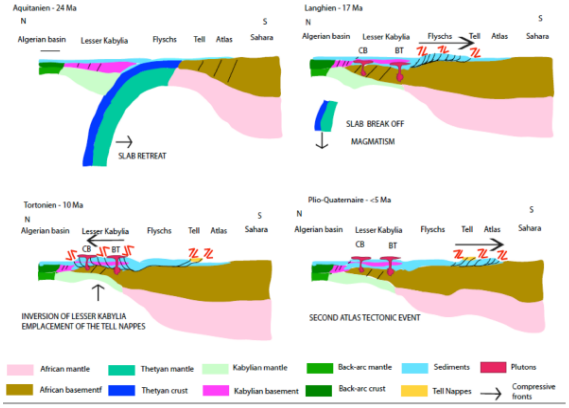


Benaouali et al., 2006

Regional context: compression events

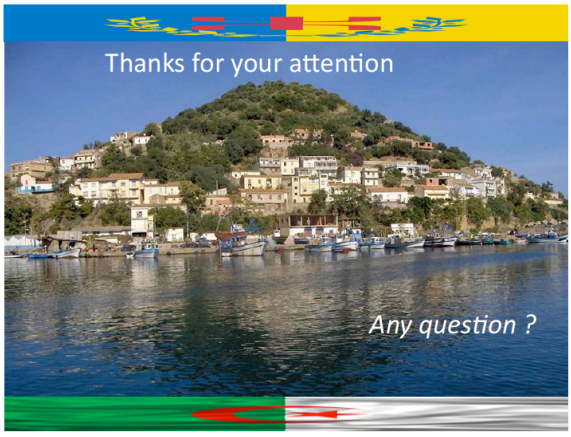


Evolution of the Algerian margin



Conclusion

- **Neogene evolution of Lesser Kabylia**: Tortonian inversion (8-10 Ma) followed Plio-Quaternary quiescence.
- This Tortonian event is an **innovation** i Benaouali et al., 2006 and Arab et al., 2
- The tectonic evolution of the Atlas is **asynchronous** with that of Lesser Kabyl



4. Informations supplémentaires aux articles

4.1 Article présenté au chapitre 3 :

Supplementary material for **"He trapping in apatite damage: insights from (U-Th-Sm)/He dating of different granitoid lithologies"**

Section S1: Analytical results

Table S1: AHe analyses of Durango crystals

Table S2: Individual apatite chemical composition

Figure S1: Chondrite-normalized diagram of REE composition

Table S3: Fission-track annealing parameters

Figure S2: AHe dates vs. Alpha dose in highly damaged apatites

Section S2: Thermal modeling

Figure S3: Simulation of AFT and AHe data using Flowers et al. (2009) model

Figure S4: Simulation of AFT and AHe data using the Gautheron et al. (2009) model

Figure S5: Numerical inversion of AFT dataset.

Figure S6: Numerical inversion of AFT dataset of only PL1.

Figure S7: Numerical inversion of AHe dataset using the Flowers et al. (2009) model.

Figure S8: Numerical inversion of AHe dataset using the Gautheron et al. (2009) model

Section S1: Analytical results

AHe analyses were calibrated using the Durango crystals, which is a standard for (U-Th)/He and fission-track dating (McDowell et al., 2005). Table S1 presents the results on these standards. They are reproducible, and give a AHe date of 28-33 Ma. Major, trace, and minor elements were analyzed on AHe dated crystals using ICP MS, after grain dissolution in nitric acid. Methods are described in the core of the text, and the entire elemental composition of the grain analyzed at LSCE (Gif Sur Yvette, France) is reported in this section. These include cations such as barium, manganese, and strontium, and rare earth elements (e.g. lanthanum, cerium, neodymium). Within the core of the text, we reported SREE: the sum of all rare earth element contents; LREE: light rare earth elements, and HREE: other rare earth elements. Table S1 includes all element composition. Figure S1 is a diagram representing chondrite-normalized rare earth element composition. All of the samples show a similar pattern in this diagram, except the leucogranite PL7, which show a different elemental signature.

Nom	4He	U	Th	Sm	Th/U	Age
	(ccSTP)	(ng)	(ng)	(ng)		(Ma)
DUR17#2-A	4,0E-03	0,183	3,734		20,4	31,3
DURCG1	4,6E-09	0,220	4,373		19,9	30,3
DURCG2	5,5E-09	0,270	5,176		19,2	30,6
DURCG3	3,6E-09	0,169	3,327		19,7	31,0
DURCG4	2,6E-09	0,131	2,458		18,8	29,8
DURCG5	7,9E-09	0,366	7,523		20,5	30,5
DURCG6	4,5E-09	0,210	4,160		19,8	31,0
DUR17-2B	4,4E-03	0,207	4,080		19,7	31,4
DURCG7	8,5E-09	0,376	7,973		21,2	31,2
DUR17-2C	3,4E-03	0,158	3,153		20,0	31,4
DURCG8	1,2E-08	0,570	11,525		20,2	29,4
DUR17-2D	4,6E-03	0,206	4,066		19,7	32,3
DUR17-2E	4,7E-03	0,205	4,259		20,8	32,3
DUR17-2F	4,3E-03	0,199	3,817		19,2	32,1
DURRP11	9,3E-09	0,438	8,787		20,1	30,6
DURRP12	3,3E-09	0,150	3,059		20,4	31,4
DURRP13	5,2E-09	0,244	4,734		19,4	31,8
DURRP14	3,7E-09	0,151	3,125		20,7	34,8
DURRP16	7,7E-09	0,385	7,548		19,6	29,4

DURRP7	6,8E-09	0,293	6,271		21,4	31,8
DURFA35	4,2E-09	0,203	4,254	1,050	20,9	28,5
DURFA36	7,6E-09	0,337	7,125	1,148	21,1	31,1
DUR_Fa40	6,9E-09	0,293	6,086	1,150	20,7	32,9
DUR_FA39	2,8E-09	0,132	2,652	0,912	20,1	30,5
DURSL2A	1,0E-09	0,047	0,922	0,502	19,6	32,2
DURSL2B	3,3E-09	0,161	3,126	0,919	19,5	29,7
DURSL2D	1,0E-08	0,474	9,260	1,206	19,5	32,0
DURFA41	4,7E-09	0,209	4,382	1,059	20,9	30,7
DURFA42	5,6E-09	0,238	5,046	1,100	21,2	32,2
DURFA43	2,0E-08	0,899	19,653	1,319	21,9	30,2
DURFA44	2,2E-09	0,093	1,925	0,781	20,6	32,7
DURFA45	5,0E-09	0,227	4,577	1,032	20,2	31,3
DURSL2F	3,1E-09	0,143	2,853	0,925	19,9	31,1
DURSL2G	1,8E-09	0,081	1,638	0,730	20,2	32,1
DURSL2H	2,3E-09	0,109	2,167	0,749	19,9	30,5
DURSL2I	2,1E-09	0,098	1,905	0,726	19,4	31,9
DURSL2S	1,9E-09	0,085	1,664	0,545	19,5	31,9
DURSL2P	3,4E-09	0,160	3,221	0,713	20,1	30,4
DURLL01A	1,0E-08	0,471	9,716	0,918	20,6	30,2
DUR12-1	1,4E-08	0,771	14,120	0,959	18,3	28,6

DUR12-2	3,7E-08	1,676	30,768	1,027	18,4	34,2
DUR12-3	6,0E-08	2,606	51,865	1,057	19,9	33,1
DURRP-3B	2,3E-09	0,110	2,112	0,553	19,2	30,4
DURRP3D	1,4E-09	0,062	1,226	0,437	19,8	31,6

Table S1: AHe analyses of Durango crystals

The AHe age is reproducible and close to that of the standard value.

Table S2: Individual apatite composition analyzed by ICP MS

Samples Names	Ba (ppm)	Mn (ppm)	Sr (ppm)	La (ppm)	Ce (ppm)	Nd (ppm)	Sm (ppm)	Eu (ppm)	Gd (ppm)	T (ppm)	Dy (ppm)	Ho (ppm)	Tm (ppm)	Yb (ppm)	Lu (ppm)
PL1ter B	286	702	114	759	2676	2405	860	26	821	116	587	104	29	162	21
PL8bisC	2822	479	369	1905	5539	3476	748	39	678	76	362	65	20	115	16
PL4bisA	3822	449	364	1908	5179	2906	578	27	478	56	262	46	14	81	10
PL1QuA	237	752	139	1071	3689	2959	1002	31	930	131	663	117	33	190	25
PL8bisE	290	492	297	1182	3702	2293	498	28	419	51	249	44	14	82	11
PL2-B	406	449	356	1838	5096	2786	534	31	478	50	235	41	12	73	10
PL8terA	236	6278	283	1384	6610	2735	602	33	512	62	299	53	16	97	13
PL2-C	72	353	253	1063	3019	1711	348	22	314	33	160	28	9	52	7
PL10-A	196	959	382	910	2462	1352	248	14	249	27	140	27	9	57	8
PL2-D	906	739	306	1525	4172	2360	469	26	421	44	208	36	11	64	9
PL10-B	128	645	382	558	1485	786	137	12	133	14	69	13	5	28	4
PL2-E	151	412	272	1429	4140	2384	476	34	435	45	217	38	12	74	11
PL10-D	774	1709	412	814	2192	1190	211	14	208	22	107	20	7	42	6
PL2bisA	160	591	369	2764	7185	3856	674	31	568	63	287	50	14	83	11
PL10-F	163	681	454	517	1295	686	118	11	118	12	57	11	3	18	3
PL2bisB	948	480	300	2234	6134	3603	673	34	557	64	295	52	16	92	12
PL10-I	110	693	816	903	2204	1189	199	22	198	19	89	16	5	28	4
PL2bisC	68	452	303	2492	6780	3907	731	31	597	69	318	56	16	94	12
PL10-L	122	740	386	667	1742	913	155	11	157	16	75	14	5	27	4
PL3-B	321	701	292	1485	4441	2950	683	30	614	72	366	63	20	117	16
PL3bisA	224	479	213	2201	6464	4338	941	40	791	98	476	84	25	147	19
PL3bisB	72	496	215	1742	5164	3403	761	33	638	79	382	67	20	120	15
PL3bisC	144	529	223	1535	4658	3137	717	31	604	76	369	65	20	114	14
PL4-D	105	644	180	814	3014	2965	1043	10	1029	156	907	162	65	417	56
PL4-E	61	720	118	1197	3510	3706	1320	12	1308	198	1132	193	72	456	60
PL4-H	3217	884	198	1097	3825	3293	1117	11	1095	165	978	175	69	455	60
PL4-I	248	817	117	772	2859	2841	1130	11	1229	195	1163	205	77	487	64
PL4bisA	509	682	215	626	2459	2490	884	8	823	138	787	147	58	380	49
PL4bisC	79	893	85	1637	5145	4251	1232	15	1117	180	1040	192	75	484	60
PL6-C	100	601	279	2056	5858	3492	707	48	654	70	332	58	18	109	16
PL6bisA	247	443	275	861	2330	1240	232	21	200	23	107	20	6	39	6
PL6bisB	376	436	300	732	1982	1036	195	19	169	19	86	16	5	33	5
PL6bisC	258	1017	321	2239	6436	3766	739	44	611	72	334	60	19	110	15
PL6bisD	2817	481	372	906	2512	1379	267	24	234	26	121	23	7	43	6
PL7-AA	145	2243	170	160	505	390	164	16	219	42	273	49	18	104	13
PL7-BB	114	3112	200	251	810	610	236	10	295	50	297	52	16	95	12
PL8bisA	258	590	283	1656	5142	3244	712	38	589	73	353	63	19	114	15
PL8bisB	113	588	275	1175	3411	2123	440	25	371	45	214	38	12	69	9

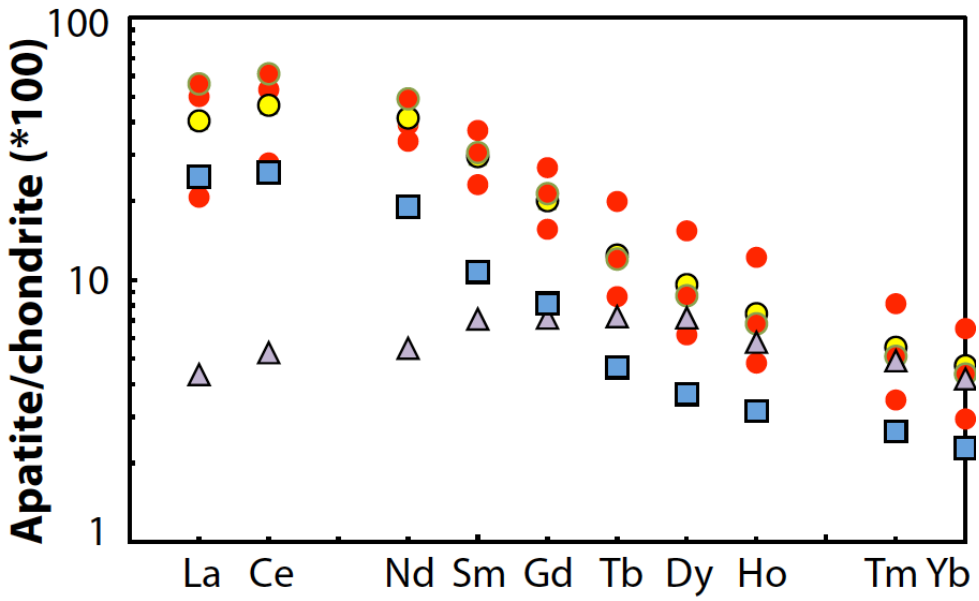


Figure S1: **Chondrite-normalized diagram of apatite REE composition.** REE contents were measured with ICP MS on single grain apatite. Here are the results from six crystals from different samples. Color codes are similar to those used in Fig. 2.

Based on the chemical composition obtained by EPMA analysis, the fission-track annealing parameter has been calculated (Kecham et al., 2015). Results are presented in Table S2 for each sample. Note that all of the granite samples have the same annealing parameter, revealing a genetic relationship in the composition. Comparatively, the two-mica granite and the granitoid both have a lower rmro value because of a different chemical composition. Thus, the source of the originating magma influences the apatite chemistry and the kinetic annealing parameter.

Sample	Dpar only	Cl-only	Multi
PL1	0.85	0.83	0.82
PL2	0.85	0.83	0.82
PL3	-	0.83	0.82
PL4	0.85	0.83	0.81
PL6	0.85	0.83	0.83
PL8	-	0.83	0.83
PL10	0.85	0.82	0.82
PL11	0.85	0.83	0.8

Table S2: Fission-track annealing parameters

Dpar only and Cl-only parameters are rmro parameters calculated from Ketcham et al. (2007). Multi- is the multicompositional rmro parameter calculated from the whole chemical composition measured with EPMA, using the equations from Ketcham et al. (2015).

Figure S2 presents the AHe dates plotted against the alpha dose for the most damaged apatites. This confirms that these ages decrease with the alpha dose for these ten crystals. The correlation coefficient is 0.5. Note that the highest-dose sample strongly influences this relationship. Thus we cannot statistically prove this negative relationship. However, it does exist. This should be confirmed by other studies in different geological contexts.

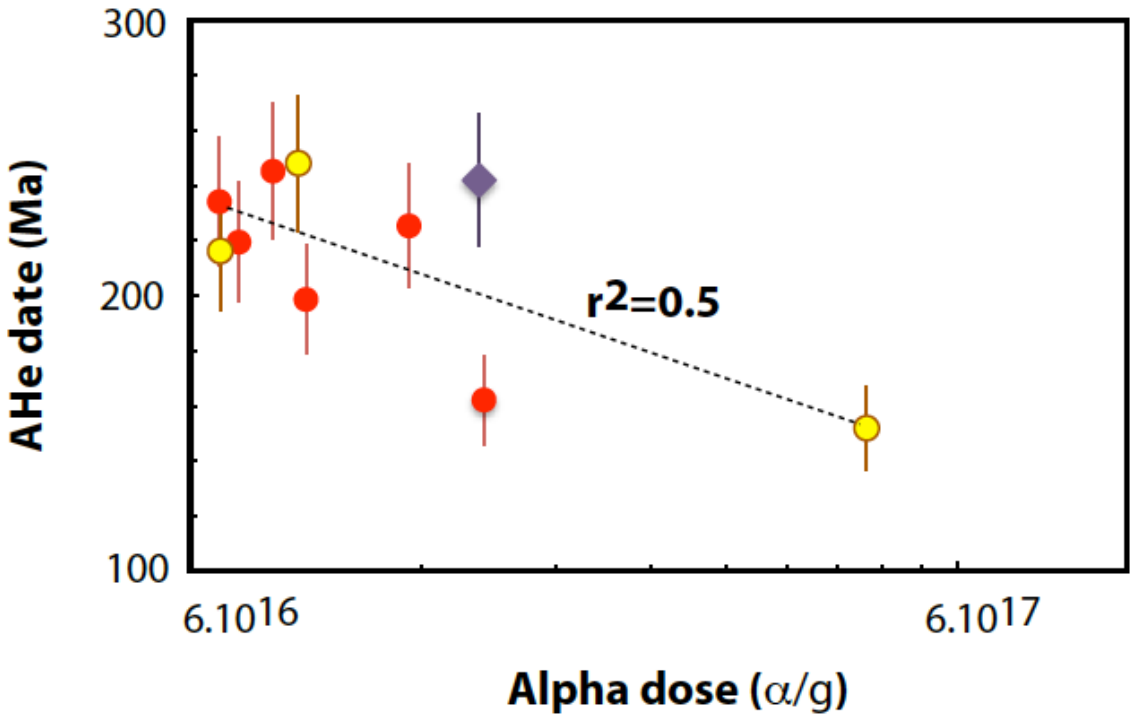


Figure S2: AHe dates vs. Alpha dose in highly damaged apatites

Red: Pink granites. Yellow: PL4. Purple: PL11. Black dashed line: linear correlation.

Section S2: Thermal modeling

Numerical inversions were carried out using QTQt software (Gallagher, 2012), and some of the inversion results are reported in the core of the text. Here, we report the simulations integrating both AFT and AHe datasets. With or without constraints on the thermal history, none of the current models manage in reproducing both AFT and AHe data. Thus, there is a significant discrepancy between these two thermochronometers. Figure S2 represents the results of the simulations performed using the Flowers et al. (2009) model. Figure S2 A and C represent the inversed thermal history, while Figure S2 B and D represent the modeled data against the observed data, and evidences that the simulations failed to reproduce the observed dataset. Figure S3 represents the results of other simulations, using the Gautheron et al. (2009) model. The thermal histories (Figure S3 A and C) are different from these in Figure S2. But the model also failed in reproducing the dataset. Thus, in the core of the model, the recently published model of Gerin et al. (2017) was used, in order to better reproduce both AFT and AHe datasets.

In order to test the Gerin et al. (2017) model with direct simulations, we had to choose a thermal history compatible with known regional geological constraints. The aim of the paper was not to discuss the thermal history, but rather discuss the helium retention processes in apatite. Thus, the thermal history was simulated by numerical inversion of the AFT dataset, and the expected model was selected as entry parameter of the direct simulations of the AHe dataset. This model is obtained from the distribution of all models, weighted from their respective probabilities (Gallagher, 2012, 2015). The results of the inversion are reminded in Figure S4 A. In Figure S4 B, C, D, E the predicted ages against the observations for different T-t paths are presented. As one can notice, few T-t paths satisfy the AFT ages. Only the

57 expected model (black T-t path in figure S4A) reproduces several of the AFT dates, i.e. the
58 highest ages around 180 Ma. The other paths investigated by QTQt are less likely (blue paths)
59 and do not reproduce the AFT ages (Figuure S4C, D). Even the most probable paths (red
60 paths) under predict the AFT ages (Figure S4E).

61 Figure S5 was performed by inverting the AHe dataset only using QTQt and the
62 Flowers et al. (2009) model. As you notice, the Jurassic heating event is smaller than
63 previously inversed with the AFT dataset: it is 75-80°C. Additionally, the predictions does not
64 fully fits the observations: the lowest dates are over predicted, while the highest dates are
65 under predicted.

66

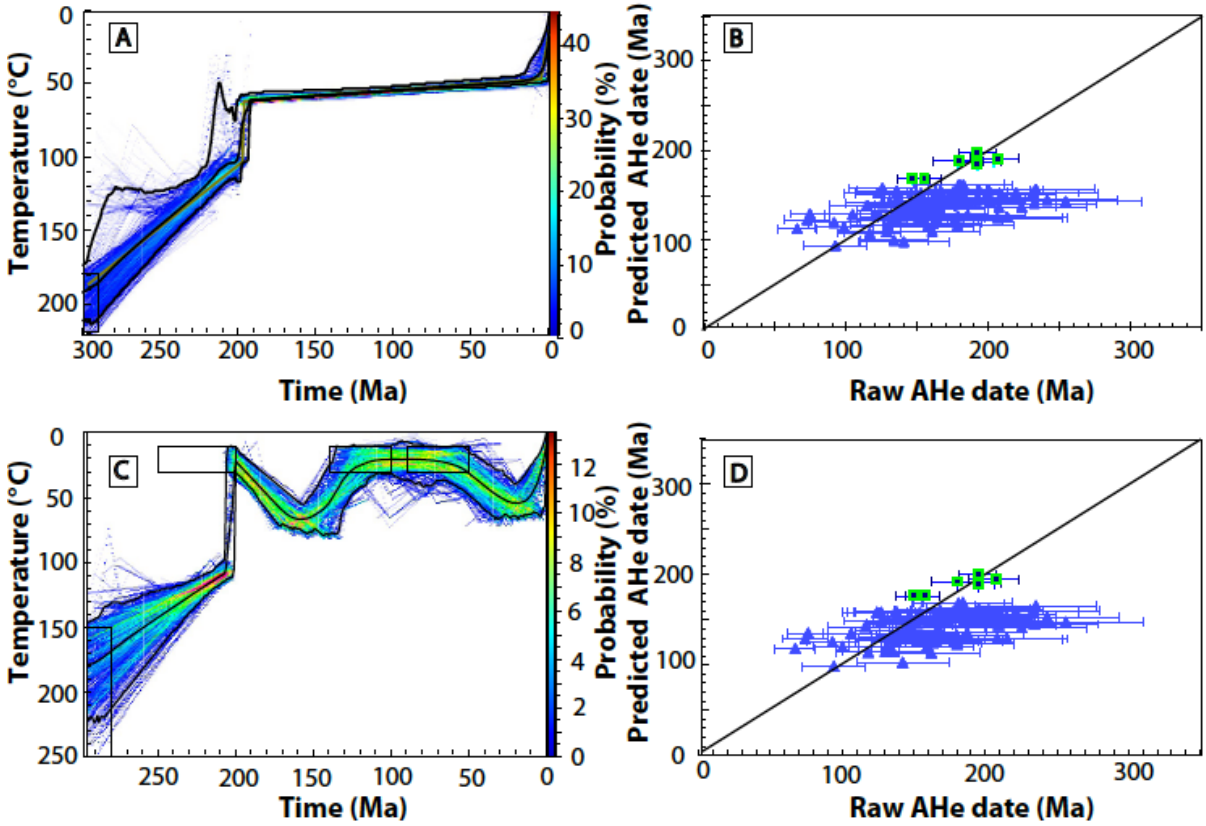


Figure S3: **Numerical inversions of combined AFT and AHe, using Flowers et al. (2009) model**. (A) and (B) Inversion with one constraints: the rock was at "high temperature" (200°C) during its formation ~300 Ma ago. (C) and (D) Inversion with three other constraints: the rock was at surface temperature during geological denudation phases. None of these models reproduce both AFT and AHe datasets. Blue triangle (B and D): AHe dates. Green squares (B and D): AFT.

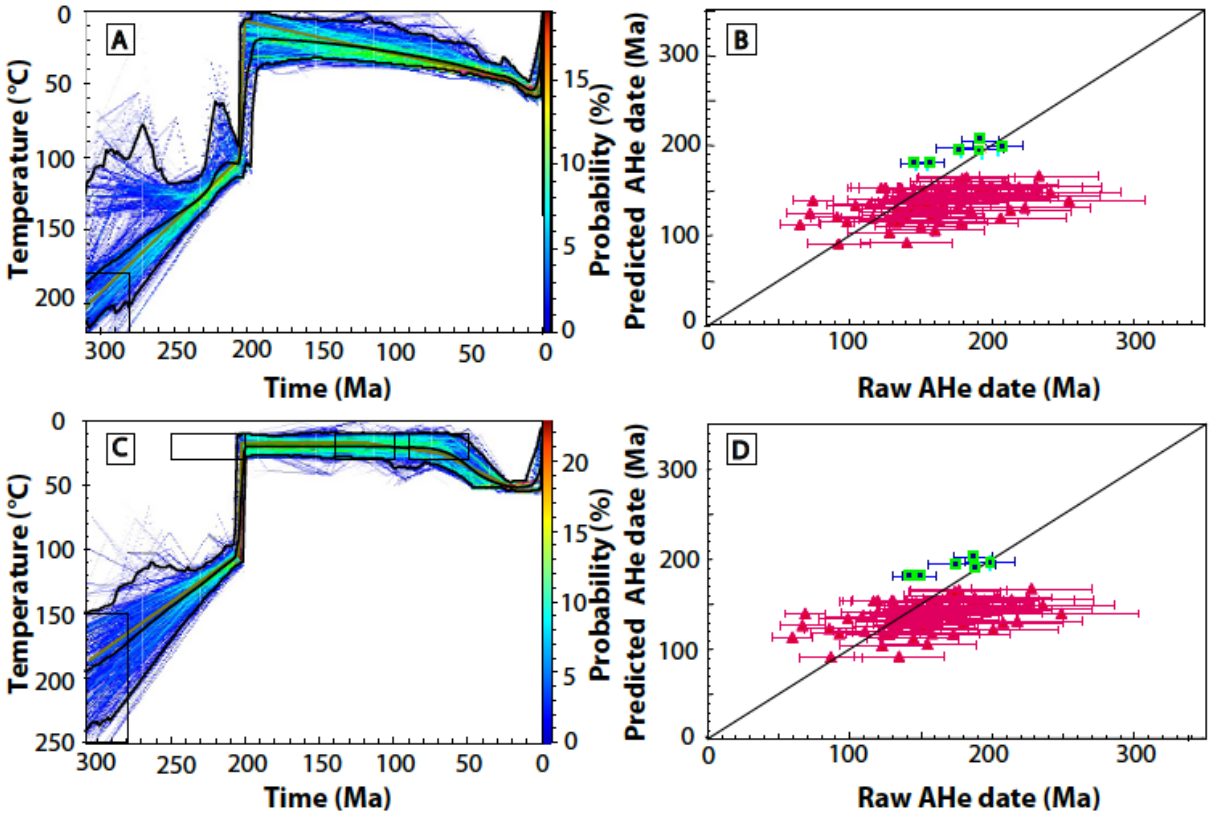
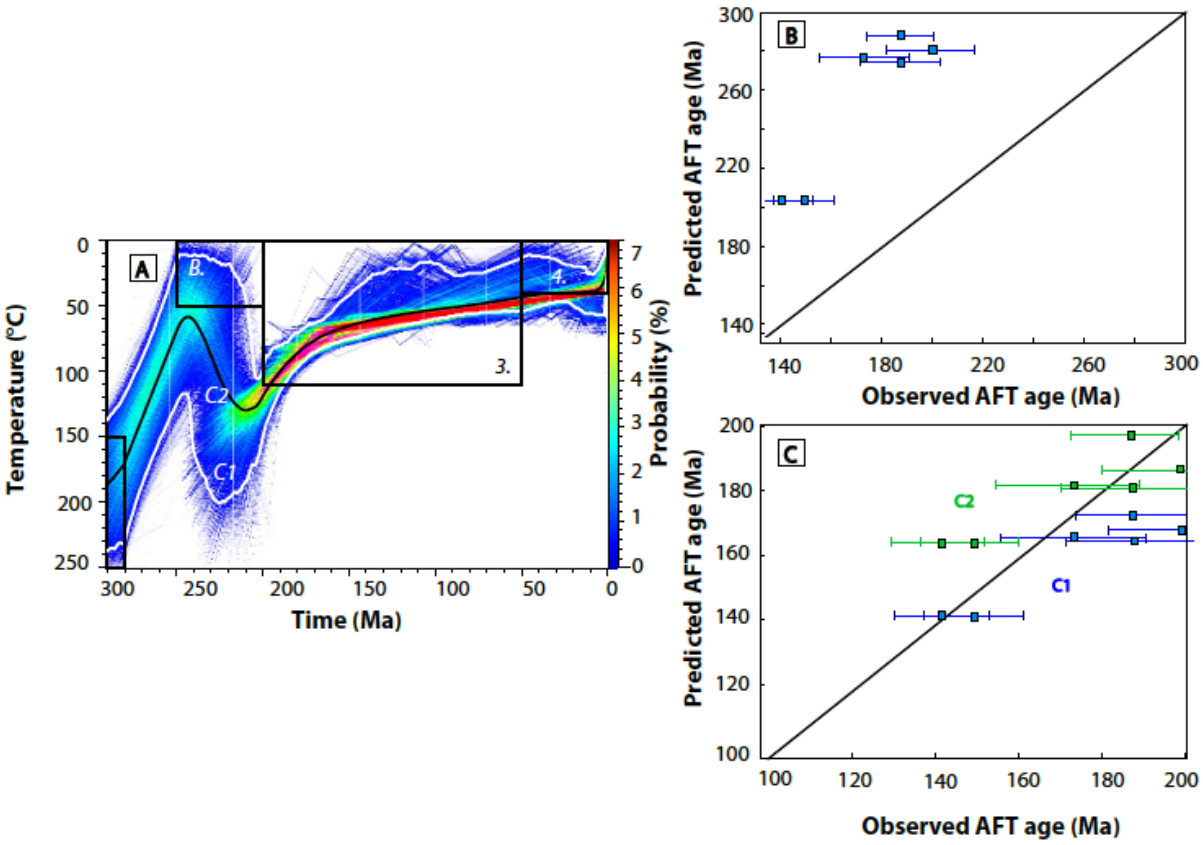


Figure S4: Numerical inversions of combined AFT and AHe, using Gautheron et al. (2009) model. Same simulations than in Figure S2, but using the Gautheron et al. (2009) model. A and B: with one constraint. C and D: with the geological constraints.



82

83

84 Figure S5: Numerical inversion of AFT dataset.

85 A: Thermal history obtained from the numerical inversion of the AFT dataset. Black
86 line is the expected model (1.). White lines define an envelop of possible (T-t) paths, and
87 colors indicate their probability. B, C: Direct simulations carried out using different (T-t)
88 paths. Only the expected model (C2) reproduces most of the AFT ages. The less probable
89 paths do not reproduce the dataset: the cooler envelop B overestimate dates, while the hotter
90 envelop C1 underestimate dates.

91

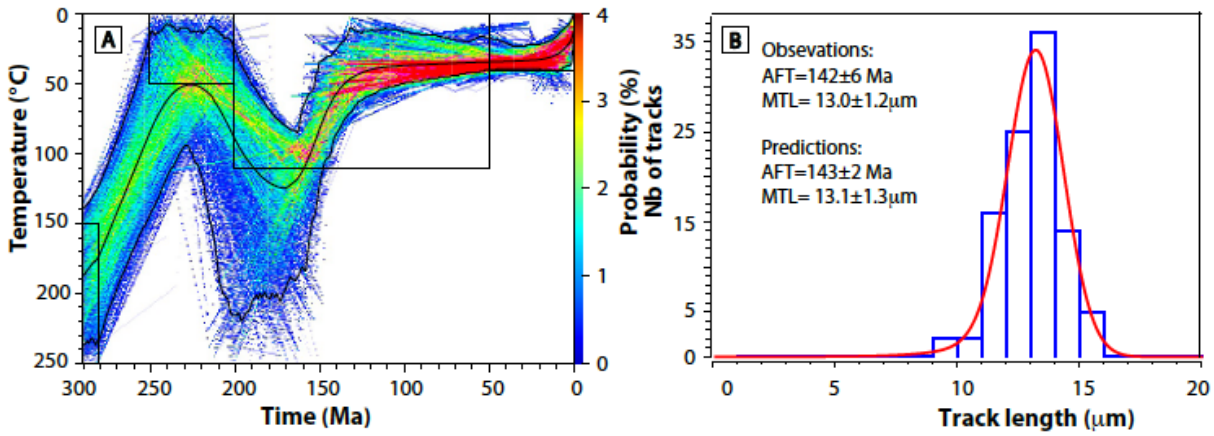
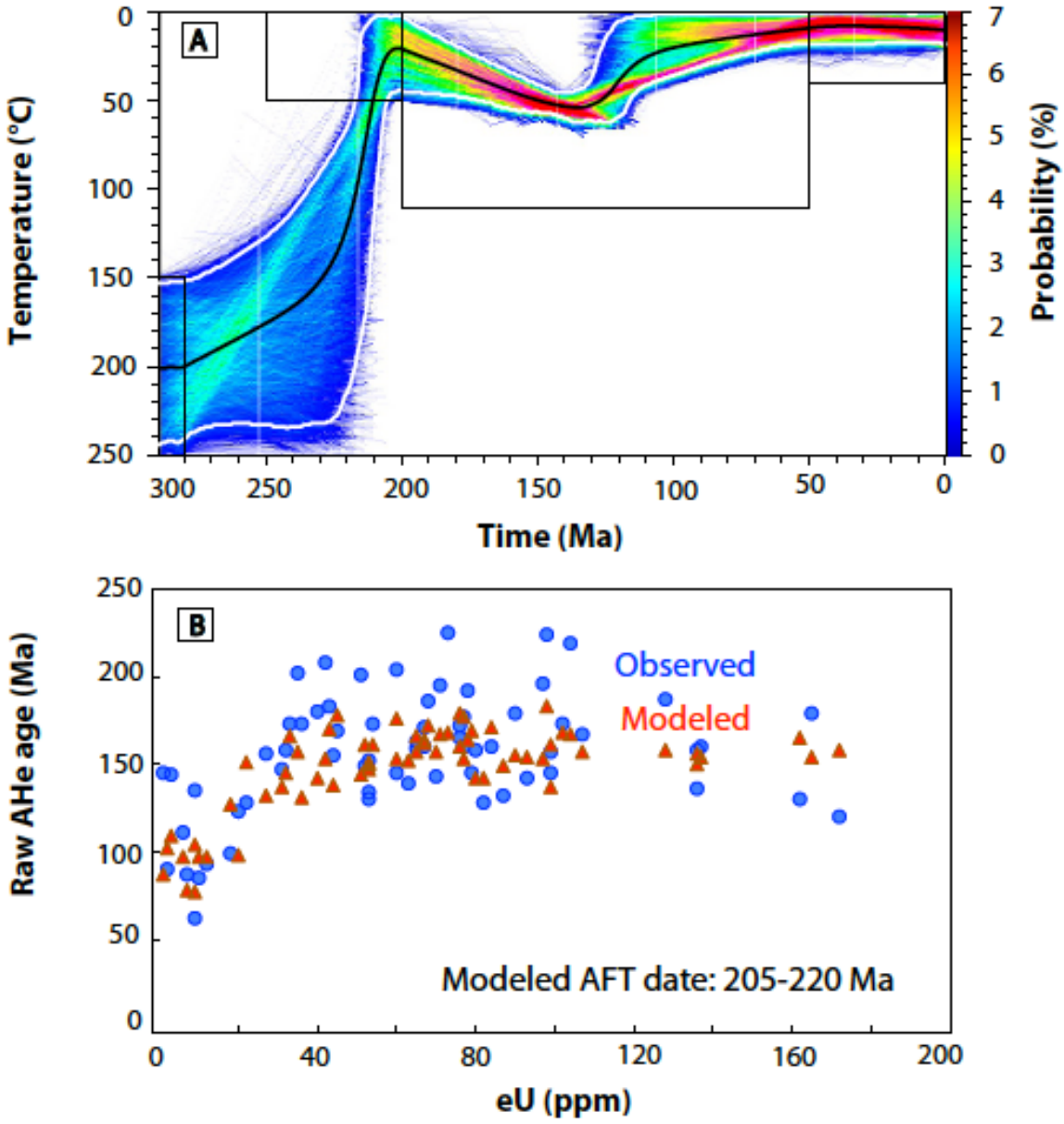


Figure S6: Numerical inversion of AFT dataset of only PL1.

The thermal history is the same if we inversed PL1 without lengths. A: thermal history. B: Comparison between observations and predictions.



99

100

101

102 Figure S7: Numerical inversion of AHe dataset using the Flowers et al. (2009) model.

103 A: Thermal history obtained from the numerical inversion of the AHe dataset only
104 using the Flowers et al. (2009) model. Black line is the expected model. White lines define an
105 envelop of possible (T-t) paths, and colors indicate their probability. B: Predictions against
106 observations. With such thermal history, fission track ages range between 205 and 220 Ma.

107

108

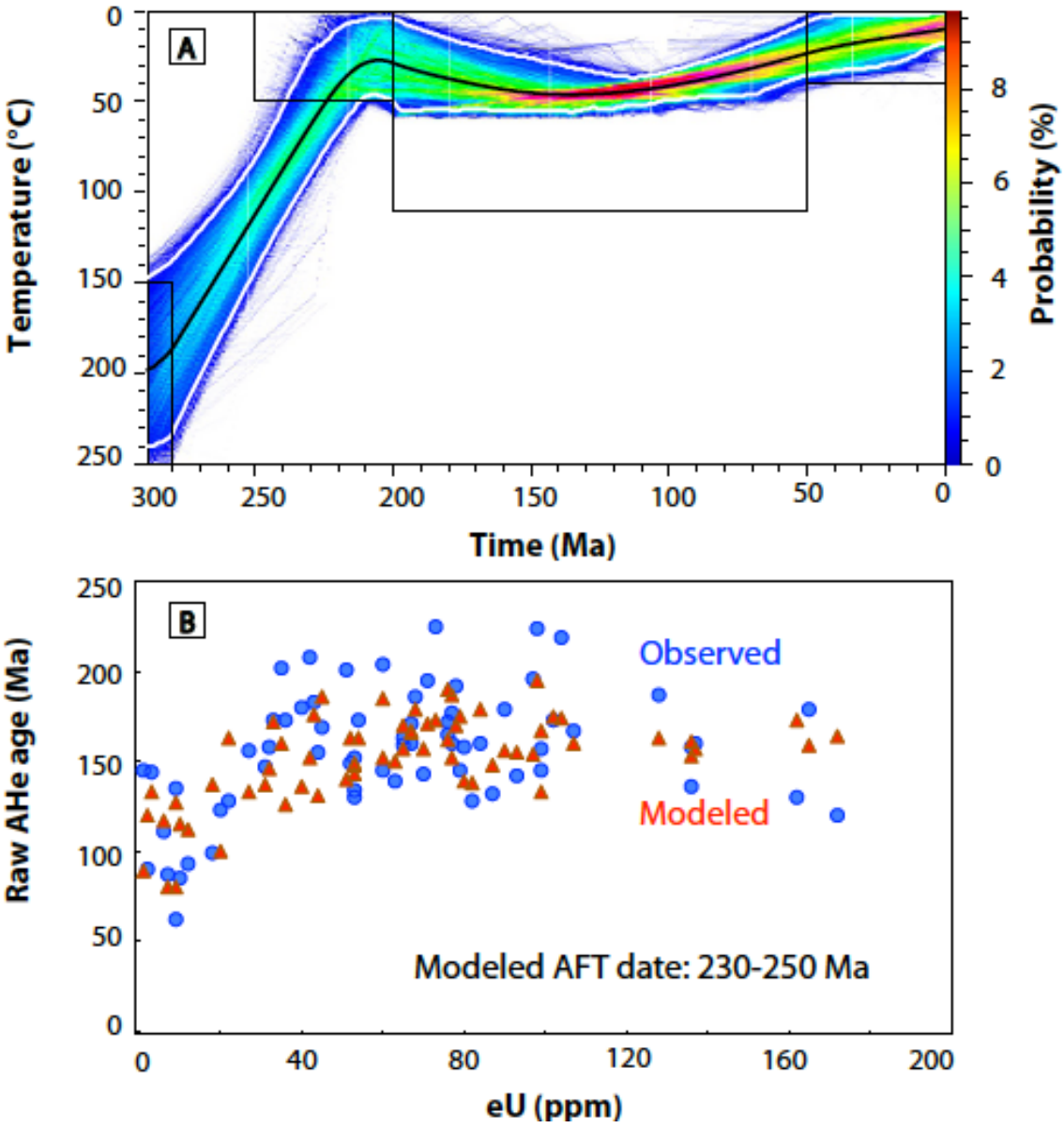


Figure S8: Numerical inversion of AHe dataset using the Gautheron et al. (2009) model.

A: Thermal history obtained from the numerical inversion of the AHe dataset using the Gautheron et al. (2009) model. Black lines define an envelop of possible (T-t) paths, and colors indicate their probability. B: Predictions against observations. For such thermal history, the fission track data range between 230 and 250Ma.

References:

Flowers, R., Ketcham, R.A., Shuster, D., Farley, K.A., 2009. Apatite (U-Th)/He thermochronology using a radiation damage accumulation and annealing model. Geochim. Cosmochim. Acta 73: 2347-2365.

Gallagher, K., 2012. Transdimensional inverse thermal history modelling for quantitative thermochronology. J. Geophys. Res. 117 (B02408): 16pp.

Gallagher, K., 2015. QTQt 5.4.3 User guide.

Gautheron, C., Tassan-got, L., Barbarand, J., Pagel, M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U-Th)/He thermochronology. Chem. Geol. 266: 166-179.

Gerin, C., Gautheron, C., Oliviero, E., Bachelet, C., Djimbi, M.D., Seydoux-Guillaume, A.M., Tassan-Got, L., Sarda, P., Roques, J., Garrido, F. Influence of vacancy damage on He diffusion in apatite, investigated at atomic to mineralogical scales. Geochim. Cosmochim. Acta. 197: 87-103.

Ketcham, R.A., 2015. Technical note: Calculation of stoichiometry from EMP data for apatite and other phases with mixing or monovalent anion sites. American Mineralogist 100: 1620- 1623.

McDowell, F.W., McInstosh, W.C., Farley K.A., 2005. A precise $^{40}Ar/^{39}Ar$ reference age for the Durango apatite (U-Th)/He and fission-track age dating standard. Chem. Geol. 214: 249-263.

4.2 Article présenté au chapitre 4 :

Supporting information for **'Apatite (U-Th-Sm)/He thermochronometry in the Aiguilles Rouges and Aar massifs (Switzerland): how to interpret data dispersion?'**

Section SI1: AHe results

Table SI1: AHe results in the Aiguilles Rouges massif (SIO profile)

Table SI2: AHe results in the Aar massif (VIS profile)

Section SII: Apatite chemical compositions

Table SII1: Chemical composition of apatite in the Aiguilles Rouges massif

Table SII2: Chemical composition of apatite in the Aar massif

Section SIII: Apatite dimensions

Figure SIII1: AHe dates and apatite dimensions

Name		L	W	T	Rs	Ft	m	4He	U	Th	Sm	eU	Th/U	Age	Agec
SIO2A	No pyr	288	250	213	110	0.87	32	33185	60	1	36	60	0.01	4.5	**5.2**
SIO2B	No pyr	313	188	150	85	0.83	18	30468	79	3	48	80	0.04	3.1	**3.8**
SIO2D	No pyr	200	163	125	67	0.79	8	63937	125	3	26	126	0.02	4.2	**5.3**
SIO2E	No pyr	263	150	113	65	0.78	9	38151	76	1	25	76	0.01	4.1	**5.3**
SIO2F	No pyr	200	175	163	81	0.82	13	93199	116	2	24	116	0.02	6.6	**8.0**
SIO2G	No pyr	313	275	250	126	0.89	47	55782	92	1	21	92	0.01	5.0	**5.6**
SIO2H	No pyr	200	200	188	90	0.84	17	65838	130	2	26	130	0.01	4.2	**5.0**
SIO2I	No pyr	219	138	138	73	0.80	9	45269	87	1	24	87	0.02	4.3	**5.3**
SIO2J*	No pyr	163	163	163	76	0.81	10	31809	24	13	22	27	0.53	9.6	**11.8**
SIO2K	No pyr	263	213	175	93	0.85	20	66322	135	1	29	135	0.01	4.0	**4.8**
SIO3A	No pyr	238	175	138	76	0.81	12	124153	239	6	50	241	0.03	4.3	**5.3**
SIO3D	No pyr	213	150	138	73	0.80	10	186856	232	13	58	235	0.06	6.6	**8.2**
SIO3E	No pyr	188	125	119	63	0.78	6	124223	224	1	31	224	0.01	4.6	**5.9**
SIO03F	No pyr, 1 bf	188	163	163	79	0.84	11	50185	119	1	26	119	0.01	3.5	**4.1**
SIO03G	No pyr	250	163	150	81	0.82	13	45029	101	3	23	102	0.03	3.6	**4.4**
SIO03H	No pyr, 1 bf	125	125	125	58	0.79	4	84717	149	3	34	149	0.02	4.7	**5.9**
SIO03J	No pyr	150	113	113	57	0.75	4	83464	211	8	38	213	0.04	3.2	**4.3**
SIO03K	No pyr	363	200	163	94	0.85	24	87383	205	5	45	207	0.02	3.5	**4.1**
SIO04A	No pyr	250	188	150	82	0.83	14	61458	133	1	32	134	0.01	3.8	**4.6**
SIO04B	No pyr	163	163	100	52	0.73	4	36528	93	0	23	93	0.00	3.2	**4.4**
SIO04C	No pyr, 1 bf	250	163	163	85	0.85	15	42791	84	1	18	84	0.02	4.2	**4.9**
SIO04D	No pyr	138	125	113	56	0.75	4	38348	112	2	22	112	0.01	2.8	**3.8**
SIO04E	No pyr	188	138	125	66	0.78	7	69677	107	2	19	108	0.02	5.3	**6.8**
SIO04F	No pyr	163	138	125	64	0.78	6	57250	116	2	26	117	0.02	4.1	**5.2**
SIO04G*	No pyr	175	150	113	60	0.77	6	79226	59	2	27	59	0.04	11.1	**14.5**
SIO04H	No pyr	288	150	100	59	0.76	8	55855	128	2	33	129	0.02	3.6	**4.7**
SIO04I	No pyr	188	113	100	56	0.75	5	56042	125	3	24	126	0.02	3.7	**4.9**
SIO04J	No pyr	175	113	113	59	0.76	5	56804	107	1	21	107	0.01	4.4	**5.8**
SIO05-A	No pyr	188	188	163	80	0.82	12	72699	90	0	33	90	0.00	6.7	**8.1**
SIO05-B	No pyr, 1 bf	188	150	131	69	0.82	8	70338	87	2	30	88	0.02	6.6	**8.1**
SIO05-D	No pyr	213	163	138	74	0.81	10	74405	109	0	27	109	0.00	5.6	**7.0**
SIO05E*	No pyr, 1 bf	250	163	125	71	0.81	10	107800	88	1	31	88	0.01	10.1	**12.4**
SIO05G	No pyr	163	156	150	72	0.80	9	80938	267	3	81	268	0.01	2.5	**3.1**
SIO05H	No pyr	200	150	125	67	0.79	8	39058	49	0	33	49	0.01	6.5	**8.3**
SIO05I	No pyr	150	125	125	62	0.77	5	41444	61	0	26	61	0.00	5.6	**7.3**
SIO05K	No pyr	125	113	113	54	0.74	4	75258	126	7	74	128	0.06	4.8	**6.5**
SIO05L	No pyr	150	113	113	57	0.75	4	61370	95	3	33	96	0.03	5.3	**7.0**
SIO07A	No pyr	213	200	175	88	0.84	16	41525	53	1	23	53	0.02	6.4	**7.7**
SIO07B	No pyr	175	113	88	49	0.72	3	65186	109	1	20	109	0.01	4.9	**6.9**
SIO07D	No pyr	188	138	113	61	0.77	6	57703	103	2	19	103	0.02	4.6	**6.0**
SIO07E	No pyr	300	263	163	88	0.84	22	163402	256	5	44	257	0.02	5.3	**6.3**
SIO07F	No pyr	238	238	188	96	0.85	21	76681	123	3	31	123	0.02	5.1	**6.0**
SIO07H	1 pyr	338	238	238	119	0.88	34	83613	133	2	22	134	0.02	5.2	**5.9**
SIO07I	No pyr, 1 bf	200	175	163	81	0.85	13	68425	106	2	24	106	0.02	5.3	**6.3**
SIO07J	No pyr	200	125	113	62	0.77	6	59546	100	4	27	101	0.04	4.9	**6.3**

Table SI1: AHe results in the Aiguilles Rouges massif (SIO profile)

Name		L	W	T	Rs	Ft	m	4He	U	Th	Sm	eU	Th/U	Age	Agec
VIS01A	No pyr	175	163	150	74	0.81	9	14686	28	16	53	32	0.6	3.8	**4.7**
VIS01D	No pyr	150	125	113	58	0.76	5	16870	32	9	33	35	0.3	4.0	**5.3**
VIS01E	No pyr	188	138	125	66	0.78	7	10049	17	6	27	18	0.3	4.5	**5.8**
VIS01G	No pyr	175	138	113	60	0.77	6	22527	40	11	35	42	0.3	4.4	**5.7**
VIS01H	No pyr	163	138	125	64	0.78	6	11755	23	4	36	24	0.2	4.0	**5.1**
VIS01I	No pyr	125	125	100	51	0.73	3	18507	42	11	43	44	0.3	3.4	**4.7**
VIS01K	No pyr	188	150	125	66	0.79	7	13808	27	11	26	29	0.4	3.9	**4.9**
VIS04B	No pyr	188	175	150	76	0.81	10	9736	18	21	11	23	1.2	3.5	**4.3**
VIS04D	No pyr	313	225	200	107	0.86	30	8901	7	10	9	10	1.5	7.6	**8.8**
VIS04F	1 pyr	213	175	125	67	0.79	7	9433	24	33	16	32	1.4	2.4	**3.1**
VIS04G	No pyr	200	188	175	86	0.83	15	21693	36	30	19	43	0.8	4.2	**5.0**
VIS04J	No pyr	238	175	163	85	0.83	15	16078	22	15	14	26	0.7	5.1	**6.2**
VIS04K	No pyr	113	100	100	48	0.71	3	9563	24	16	15	27	0.7	2.9	**4.0**
VIS04M	No pyr	188	150	150	75	0.81	10	10412	22	13	11	26	0.6	3.3	**4.1**
VIS04O	No pyr	225	138	138	73	0.80	10	13412	22	22	14	27	1.0	4.1	**5.1**
VIS05A	No pyr	200	175	125	67	0.79	8	8528	14	15	39	18	1.1	3.9	**5.0**
VIS05B	No pyr	175	125	113	60	0.77	5	15272	20	13	68	23	0.7	5.3	**7.0**
VIS05E	No pyr	125	113	113	54	0.74	4	7449	13	18	27	17	1.4	3.5	**4.8**
VIS05F	No pyr	263	238	200	103	0.86	26	6103	15	18	42	20	1.2	2.5	**3.0**
VIS06A	No pyr, 1 bf	275	213	188	99	0.87	24	6727	24	14	20	27	0.6	2.0	**2.3**
VIS06B	No pyr	163	163	138	69	0.79	8	13204	102	18	68	106	0.2	1.0	**1.3**
VIS06C	No pyr	181	150	150	74	0.81	9	27263	54	21	33	59	0.4	3.8	**4.7**
VIS06E	No pyr, 1 bf	150	150	150	70	0.83	8	146805	386	145	356	421	0.4	2.9	**3.5**
VIS06J	No pyr	200	175	163	81	0.82	13	17094	36	13	36	39	0.4	3.6	**4.4**
VIS06K	No pyr, 2 bf	250	188	188	95	0.88	20	16861	48	38	69	58	0.8	2.4	**2.7**
VIS06M*	No pyr, 1 bf	150	138	125	62	0,80	6	32441	24	5	31	26	0.2	10.3	**12,9**

196

197 **Table SI2: AHe results in the Aar massif (VIS profile)**

198

	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	ppm	(ppm)	ppm	(ppm)
SIO 02 A	18024	159707	1306	5346	204	2282	314	870	121	537	112	7	141
SIO 02 B	23073	160555	1329	5348	205	3106	312	880	125	557	123	6	150
SIO 02 D	21279	147402	1493	6643	204	2236	233	680	97	437	147	5	112
SIO 02 E	24091	143009	928	5216	208	2088	214	642	94	426	140	6	109
SIO 02 F	18439	147076	1180	5125	191	1960	196	594	87	394	117	5	102
SIO 02 G	14767	151342	1200	5787	182	2050	212	639	92	416	92	5	107
SIO 02 H	19301	152915	1194	4552	209	2196	223	663	95	424	112	6	110
SIO 02 I	26144	151355	1139	4601	197	2282	227	673	98	442	141	5	114
SIO 02 J	32452	152887	1169	6020	219	2056	228	693	103	470	160	6	128
SIO 02 K	17461	156797	1264	4517	188	2278	230	689	99	449	108	5	118
SIO 03 A	24087	157810	1522	3930	204	2386	262	805	118	533	127	6	127
SIO 03 D	17058	159799	1424	4654	205	2344	259	801	116	514	128	6	125
SIO 03 E	27039	150766	1570	2681	223	2102	220	694	104	488	161	6	112
SIO 03 F	19629	156646	1449	4563	214	2434	241	738	111	500	148	5	125
SIO 03 G	19053	151230	1388	3167	194	2259	229	729	111	500	143	5	121
SIO 03 H	26158	144902	1272	3136	198	2166	230	724	106	473	184	5	114
SIO 03 J	43740	153379	1312	8243	215	2920	273	893	137	624	235	6	150
SIO 03 K	15249	150908	1455	4449	183	2029	221	686	102	457	98	5	109
SIO 04 A	14719	150370	1354	3445	169	1829	176	537	77	348	93	5	93
SIO 04 B	23838	147460	1412	# # #	176	1783	151	480	71	324	158	5	85
SIO 04 C	15281	151948	1379	3401	172	1814	174	526	76	341	104	5	89
SIO 04 D	16756	146530	1077	2529	173	1747	169	494	73	330	175	5	86
SIO 04 E	17698	149438	1387	3415	168	1888	191	552	78	342	145	6	92
SIO 04 F	14355	150729	1413	5469	176	1989	193	569	83	374	149	5	101
SIO 04 G	22488	154332	1744	8127	233	2206	186	596	90	414	142	6	92
SIO 04 H	20567	148760	1289	4312	181	2033	203	609	87	393	122	5	101
SIO 04 I	28644	143682	1245	5111	185	1977	192	581	84	379	186	5	104
SIO 04 J	14963	147692	1276	3049	171	1781	173	515	76	336	165	5	87
SIO 05 A	22586	146979	724	2914	203	1871	176	552	86	410	118	6	114
SIO 05 B	17022	150252	700	3561	218	1762	153	496	79	384	134	6	110
SIO 05 C	16642	149797	791	4262	200	1967	182	570	85	404	103	6	114
SIO 05 D	19913	147352	800	3890	212	1953	182	562	84	385	125	6	106
SIO 05 E	27269	146755	731	3487	225	1937	177	556	84	399	125	6	113
SIO 05 G	16986	148152	818	3811	201	2000	186	579	86	402	100	6	112
SIO 05 H	16708	146288	818	4528	234	2057	189	567	86	411	138	8	118
SIO 05 I	22676	149336	815	4336	213	1771	196	587	88	413	175	7	107
SIO 05 K	17314	145741	400	1665	284	1741	166	536	82	389	118	5	100
SIO 05 L	29765	151911	763	3212	256	2379	212	609	95	445	192	7	123
SIO 05 M	48581	142642	44	550	465	881	3288	4160	321	964	112	15	98
SIO 07 A	18143	152108	1719	5188	186	2356	254	739	103	451	109	5	99
SIO 07 B	34319	144506	1408	6632	171	2059	215	622	88	389	228	5	92
SIO 07 C	27833	144415	1579	4903	199	2269	227	661	93	404	120	5	97
SIO 07 D	18492	150131	1606	6607	183	2020	203	595	86	374	169	5	91
SIO 07 E	14137	152997	1640	5313	176	1918	188	561	79	347	76	4	83
SIO 07 F	16644	154083	1687	4622	173	2230	219	642	90	393	89	4	95
SIO 07 H	13594	155162	1663	5650	169	1821	188	545	77	335	74	6	79
SIO 07 I	21213	146263	1422	4255	181	2058	201	590	85	372	106	5	91
SIO 07 J	23116	149417	1441	5152	263	2444	296	820	114	492	156	11	99
SIO 08 A	13657	155123	1952	3164	210	1226	121	365	57	259	140	12	62

199 Table SII1: Chemical composition of apatite in the Aiguilles Rouges massif

	Tb (ppm)	Dy (ppm)	Ho ppm	Er (ppm)	Tm (ppm)	Yb (ppm)	Lu (ppm)	Th (ppm)	U (ppm)
SIO 02 A	32	201	34	72	8	43	6	1	34
SIO 02 B	35	240	47	115	15	93	15	3	35
SIO 02 D	25	173	35	94	14	96	16	6	80
SIO 02 F	24	165	33	84	12	79	13	4	50
SIO 02 F	23	156	30	80	12	80	13	4	74
SIO 02 G	24	164	32	83	12	81	13	2	64
SIO 02 H	25	169	33	88	13	90	15	3	79
SIO 02 I	26	176	35	93	13	94	15	5	60
SIO 02 J	29	182	32	69	8	41	6	15	21
SIO 02 K	27	179	35	88	12	86	14	2	77
SIO 03 A	30	195	37	89	9	46	7	4	97
SIO 03 D	29	194	37	88	10	51	7	6	82
SIO 03 F	22	142	29	85	14	109	19	5	130
SIO 03 F	29	196	37	90	10	47	7	4	88
SIO 03 G	28	184	34	84	10	49	7	5	84
SIO 03 H	27	176	34	81	9	46	7	7	80
SIO 03 J	35	234	45	111	13	68	10	12	135
SIO 03 K	25	167	31	75	8	42	6	3	75
SIO 04 A	21	145	28	72	10	68	11	2	58
SIO 04 B	20	135	27	71	10	67	11	6	51
SIO 04 C	21	139	27	70	10	66	11	4	62
SIO 04 D	20	136	27	72	10	67	11	8	68
SIO 04 F	22	145	28	71	10	69	11	7	73
SIO 04 F	23	155	31	79	11	75	12	6	69
SIO 04 G	23	161	32	79	11	70	11	5	32
SIO 04 H	23	155	31	84	12	81	13	4	61
SIO 04 I	24	157	31	79	11	75	12	9	81
SIO 04 J	20	137	28	72	10	69	11	7	69
SIO 05 A	25	161	31	78	11	71	12	2	47
SIO 05 B	24	153	29	71	10	65	11	4	47
SIO 05 C	25	167	32	81	11	79	13	2	46
SIO 05 D	24	158	30	79	12	83	14	3	64
SIO 05 F	25	161	31	79	11	75	12	3	49
SIO 05 G	25	164	32	83	12	82	13	2	52
SIO 05 H	26	171	33	84	12	78	12	4	26
SIO 05 I	23	152	29	73	10	65	10	6	41
SIO 05 K	22	141	28	73	10	70	12	4	26
SIO 05 L	28	194	38	103	14	101	16	7	55
SIO 05 M	12	61	12	34	4	25	3	215	12
SIO 07 A	23	169	35	97	14	96	15	3	36
SIO 07 B	21	151	32	89	13	94	16	10	77
SIO 07 C	23	164	35	99	15	103	17	4	51
SIO 07 D	21	150	31	88	13	97	16	8	79
SIO 07 F	20	141	30	83	13	90	15	2	76
SIO 07 F	22	158	34	96	14	103	17	2	56
SIO 07 H	18	131	28	77	12	84	14	2	75
SIO 07 I	21	149	31	87	13	94	16	3	64
SIO 07 J	23	168	35	96	14	98	16	7	61
SIO 08 A	14	100	19	55	8	60	10	7	68

Table SII2: Chemical composition of apatite in the Aar massif

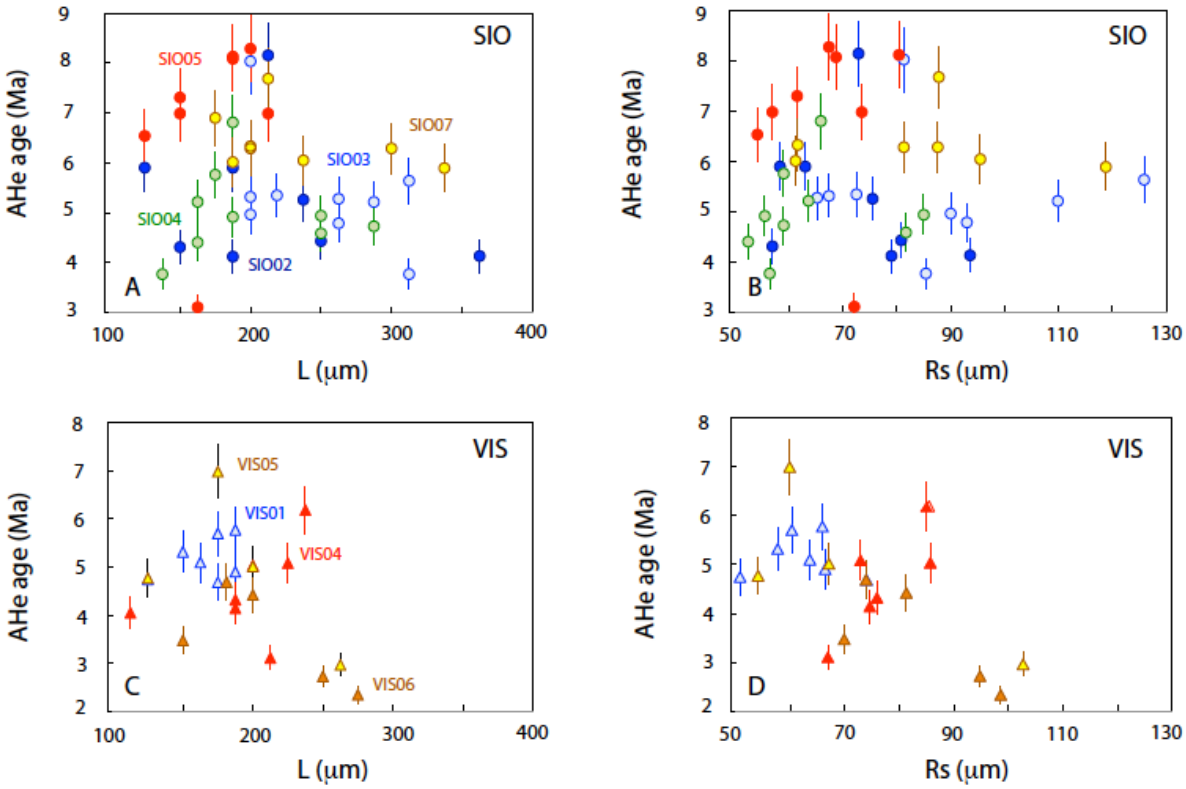
	Na (ppm)	P (ppm)	Mn (ppm)	Fe (ppm)	Sr (ppm)	Y (ppm)	La (ppm)	Ce (ppm)	Pr (ppm)	Nd (ppm)	Sm (ppm)	Eu (ppm)	Gd (ppm)
VIS 01 A	15734	149525	345	1396	509	1800	282	884	153	838	227	14	183
VIS 01 D	60181	147552	403	2991	662	1447	210	702	119	595	219	13	117
VIS 01 F	21649	147015	350	1237	765	1178	160	565	98	506	177	11	103
VIS 01 G	17638	151970	609	21031	652	1534	232	823	138	688	218	14	127
VIS 01 H	18161	150852	456	1861	461	1646	162	613	110	575	208	14	131
VIS 01 I	20044	151065	343	922	933	1259	206	693	116	580	225	11	112
VIS 01 K	19562	148170	320	761	1114	1140	152	511	88	446	157	10	94
VIS 01 L	2915046	150696	329	3423	838	1177	142	475	83	430	232	11	95
VIS 03 A	31721	151869	591	2171	124	1987	121	415	77	424	190	3	166
VIS 04 B	11300	150663	266	481	813	200	318	776	100	397	84	11	33
VIS 04 D	10350	152534	210	972	773	249	278	752	101	426	67	13	38
VIS 04 F	10898	152623	187	219	797	172	354	848	103	383	69	12	28
VIS 04 G	8493	156068	301	633	750	272	366	930	119	470	67	12	38
VIS 04 I	18238	150429	303	1144	793	297	369	926	123	504	124	15	47
VIS 04 J	9817	154835	291	313	662	384	328	899	124	522	92	14	46
VIS 04 K	80203	148698	297	1660	817	298	338	854	114	471	230	12	41
VIS 04 M	15439	149385	291	303	756	297	307	784	106	433	108	12	39
VIS 04 O	10894	154223	252	232	727	285	354	891	118	477	99	14	42
VIS 05 A	23709	152158	388	2944	579	1484	345	988	158	757	177	13	119
VIS 05 B	25792	151929	207	375	622	2245	383	1076	175	889	232	12	166
VIS 05 D	16148	146799	359	452	551	1469	323	909	141	671	209	15	110
VIS 05 F	28122	148400	344	6632	487	686	293	839	125	583	227	16	86
VIS 05 F	20569	154302	502	523	441	2818	378	1135	184	907	186	15	168
VIS 06 A	13592	156602	144	570	349	1401	298	733	105	493	96	12	92
VIS 06 B	20202	159934	378	548	322	2864	294	906	141	663	157	8	160
VIS 06 C	24762	153740	520	754	306	5113	191	609	109	612	209	22	220
VIS 06 D	14860	155149	301	224	550	1887	239	799	130	635	132	10	130
VIS 06 F	16447	157330	191	370	336	3193	786	2247	376	1888	327	37	373
VIS 06 I	28913	155088	350	1650	347	2710	296	897	142	668	182	8	161
VIS 06 J	94579	152773	210	548	314	3136	194	589	104	578	156	8	171
VIS 06 K	15518	153764	199	2046	387	2647	493	1592	283	1570	332	28	368
VIS 06 M	37327	151560	242	802	324	2631	315	903	142	662	224	8	158
VIS 07 A	11288	150270	172	701	568	226	474	960	111	422	121	16	34
VIS 07 C	9136	155746	192	480	459	239	378	834	99	380	50	16	32

286

	Tb (ppm)	Dy (ppm)	Ho (ppm)	Er (ppm)	Tm (ppm)	Yb ppm	Lu (ppm)	Th (ppm)
VIS 01 A	28	154	26	66	8	59	9	13
VIS 01 D	20	118	21	56	7	53	8	13
VIS 01 F	17	99	17	44	5	35	5	9
VIS 01 G	22	127	22	59	8	55	9	13
VIS 01 H	23	137	24	61	8	53	8	8
VIS 01 I	19	107	18	47	6	38	6	12
VIS 01 K	16	95	17	43	6	37	6	11
VIS 01 L	17	98	17	44	5	36	6	11
VIS 03 A	33	188	29	72	9	66	10	7
VIS 04 B	3	14	3	7	1	7	1	16
VIS 04 D	4	18	3	9	1	8	1	12
VIS 04 F	2	10	2	6	1	7	1	14
VIS 04 G	4	17	3	10	1	11	2	14
VIS 04 I	5	22	4	11	1	10	2	15
VIS 04 J	5	23	4	14	2	17	4	14
VIS 04 K	4	19	4	11	1	12	2	21
VIS 04 M	4	18	3	11	1	12	3	14
VIS 04 O	4	20	4	11	1	10	2	18
VIS 05 A	19	112	21	58	8	52	8	12
VIS 05 B	28	171	32	90	12	83	12	10
VIS 05 D	18	105	20	58	8	52	8	17
VIS 05 F	11	59	10	25	3	16	3	20
VIS 05 F	29	189	37	109	16	124	20	15
VIS 06 A	15	98	20	56	7	50	9	12
VIS 06 B	33	222	44	120	16	113	19	8
VIS 06 C	48	353	74	219	30	221	37	21
VIS 06 D	24	154	28	76	10	67	11	4
VIS 06 F	56	306	53	127	13	81	12	23
VIS 06 I	32	219	42	115	15	106	17	10
VIS 06 J	35	244	49	135	17	118	19	10
VIS 06 K	55	281	47	105	10	61	9	32
VIS 06 M	31	210	41	112	15	100	16	10
VIS 07 A	3	15	3	9	1	9	2	34
VIS 07 C	3	16	3	9	1	9	2	21

323

Figure SIII1: AHe ages and apatite dimensions



Apatite AHe ages against crystal length (A, C) and radius size (B, D). The AHe ages appear to be independent of crystal dimensions in SIO, while it seems to decrease with crystal length and radius size in VIS. Yet, as the crystal dimensions are correlated to rock altitudes (the highest sample VIS01 is fine-grained while the lowest sample VIS06 has large grains), there is no causality between high AHe ages and low grain sizes.

343 **4.3 Article présenté au chapitre 8 :**

344 Supporting information for **'A Tortonian start for the Algerian margin underthrusting:**
345 **first evidence from low temperature thermochronology'**
346
347 **Section SI1: Analytical methods**
348 **Sampling**
349 **Mineral separation**
350 **Apatite (U-Th)/He method**
351 **Figure SI1:** Corrected AHe ages as a function of the effective uranium content, Rs,
352 and Th/U
353 **Apatite fission tracks dating method**
354 **Figure SI2:** Radial-plot representation of the AFT age
355
356 **Section SII: Thermal modeling**
357 **Figure SII1:** Forward simulation results using the Gautheron et al. (2009) model
358
359 **Table SI1:** Sample petrology and location
360 **Table SI2:** Apatite (U-Th-Sm)/He data
361 **Table SI3:** Apatite fission tracks data
362
363 **References**
364

Section SI1: Analytical methods

Sampling

The Bougaroun pluton consists of granitoïds including cordierite. Among the samples, we could distinguish two main lithologies: (i) a syenogranite composed of fine-grained pink granite with millimetric biotite crystals and sub-millimetric potassic feldspars and quartz crystals and (ii) a medium-size granodiorite composed of plurimillimetric plagioclase feldspars, quartz, and biotites. A detailed petrographical and geochemical study of this granitoïd massif was provided by Ouabadi et al. (1994). Additional major, trace, and Sr, Nd analyses of the Bougaroun province were also performed by Abbassene (2016). The new data of Abbassene (2016) enable to evidence two main magmatic sources: a first one depleted, and a second-one enriched in LREE represented by the subcontinental Kabylian mantle. Felsic rocks would have evolved from this magma by fractionated cristallisation.

We collected samples (i) close to the sea (<100 m a.s.l.) - CB53, (ii) on top of the Bougaroun Massif - CB27 (500 m), CB32 (800m), and (iii) at mid altitudes, within valleys incising the massif (≈300m) - CB49. These samples are homogeneously distributed within the batholith. Thin sections were cut out of these samples for petrological study. Two lithologies are prominent: porphyritic granodiorite specimens (CB 49 and CB32) including cordierite, and small grain sized pink syenogranites (CB27 and CB53). All of our mineralogical observations are consistent with those that Ouabadi (1994).

Mineral separation

Apatite crystals from the four samples (Table SI1) were separated at GEOPS laboratory (Paris-Sud University, Orsay, France) following standard density and magnetic procedure and then picked under a binocular microscope.

Apatite (U-Th)/He method

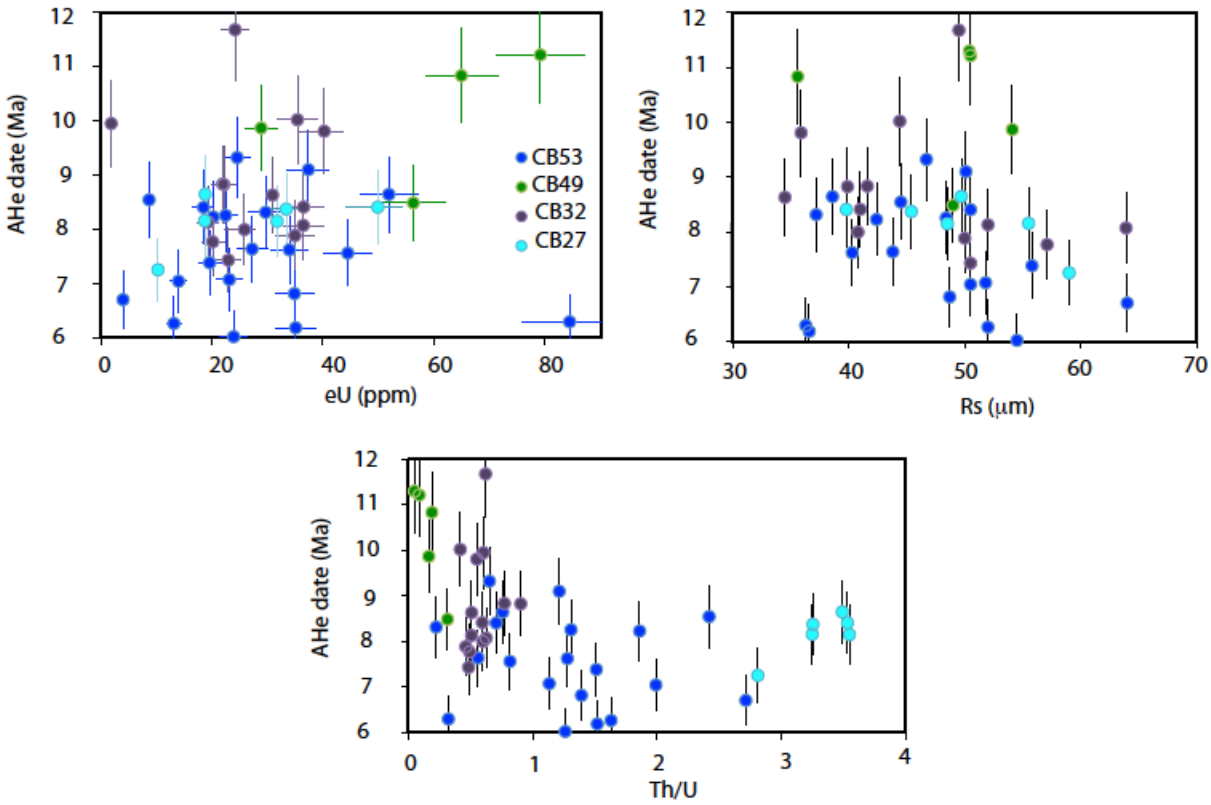
Inclusion-free apatite crystals were carefully selected for AHe dating. (U-Th-Sm)/He thermochronological study was performed on all of the granitoïd samples. The analytical procedure is similar to that described by Gautheron et al. (2013). Crystal dimensions were measured under a binocular microscope, in order to determine the equivalent sphere radius (Rs) and the ejection factor (F_T), following the methodology presented in Gautheron and Tassan-Got (2010) and Ketcham et al. (2011). Individual apatite crystals were analyzed twice by a quadrupole mass spectrometer. Apatite grains were then dissolved in 5N HNO_3, using a ^{235}U, ^{230}Th, and ^{149}Sm spikes. U, Th, and Sm concentrations were measured using a ELEMENT XR ICP-MS at GEOPS (Paris Sud University). U, Th and Sm content determination followed a procedure described in Evans *et al.* (2005). Analysis on Durango apatite providing a mean AHe age of 31.1 ± 1.5 Ma, value in agreement with published data of 31.02 ± 0.22 Ma for the Durango apatite (McDowell *et al.*, 2005). The 1σ error on AHe age is considered at 8%, reflecting the sum of errors in the ejection-factor correction and age dispersion of the standard. (U-Th-Sm)/He data is reported on Table SI2.

Note that out of 51 analyses, two crystals have anomalously high AHe date (>17 Ma) compared to the age of the pluton. These two apatite crystals probably result from secondary phenomena such as helium implantation. This causes an overestimation of the AHe date (Gautheron et al., 2012). Thus, in the following discussion and simulations, we'll exclude both apatites as non significant outliers. Additionally, four other crystals have higher AHe date than all other grains (>13Ma). These crystals may not be statistically representative of the whole dataset, and may have undergone helium implantation. Thus, we also exclude them from our discussion, and marked them with an asterisk and in italics in the Table SI2.

There is no correlation between AHe dates and the effective uranium content (eU= U +0.24 Th), which is a proxie of the alpha damage dose in apatite. Additionally, the AHe dates

414 neither are correlated to apatite crystal size. However, an interesting anticorrelation was found
415 between AHe date and the U/Th ratio. All ages were corrected from the FT factor, calculated
416 using the U/Th ratio and grain geometry.

417



418

419 Figure SI1: Corrected AHe ages as a function of the effective uranium content, Rs, and
420 Th/U.

421 **AFT method**

422 Apatite grains from sample CB53 were mounted in epoxy, polished, and etched at 5M
423 HN03 for 20 seconds at 20°C. Muscovite foils were used as external detectors and irradiated
424 at the Garching facility (Munchen, Germany), with a 5×10^{15} neutrons/cm^2 fluence. Detectors
425 were etched for 20 minustes in 40% HF at 20±1°C. The analyst value of zeta (Hurford and
426 Green, 1982) was 359±8 for the CN5 dosimeter (J. Barbarand). Tracks were counted and

measured at the *1000 magnification. The AFT central age was calculated at ±1σ, following the procedure of Galbraith and Laslett (1996). AFT data is presented as a radial-plot and an individual age histogram (Fig. SI2), as well as in Table SI3.

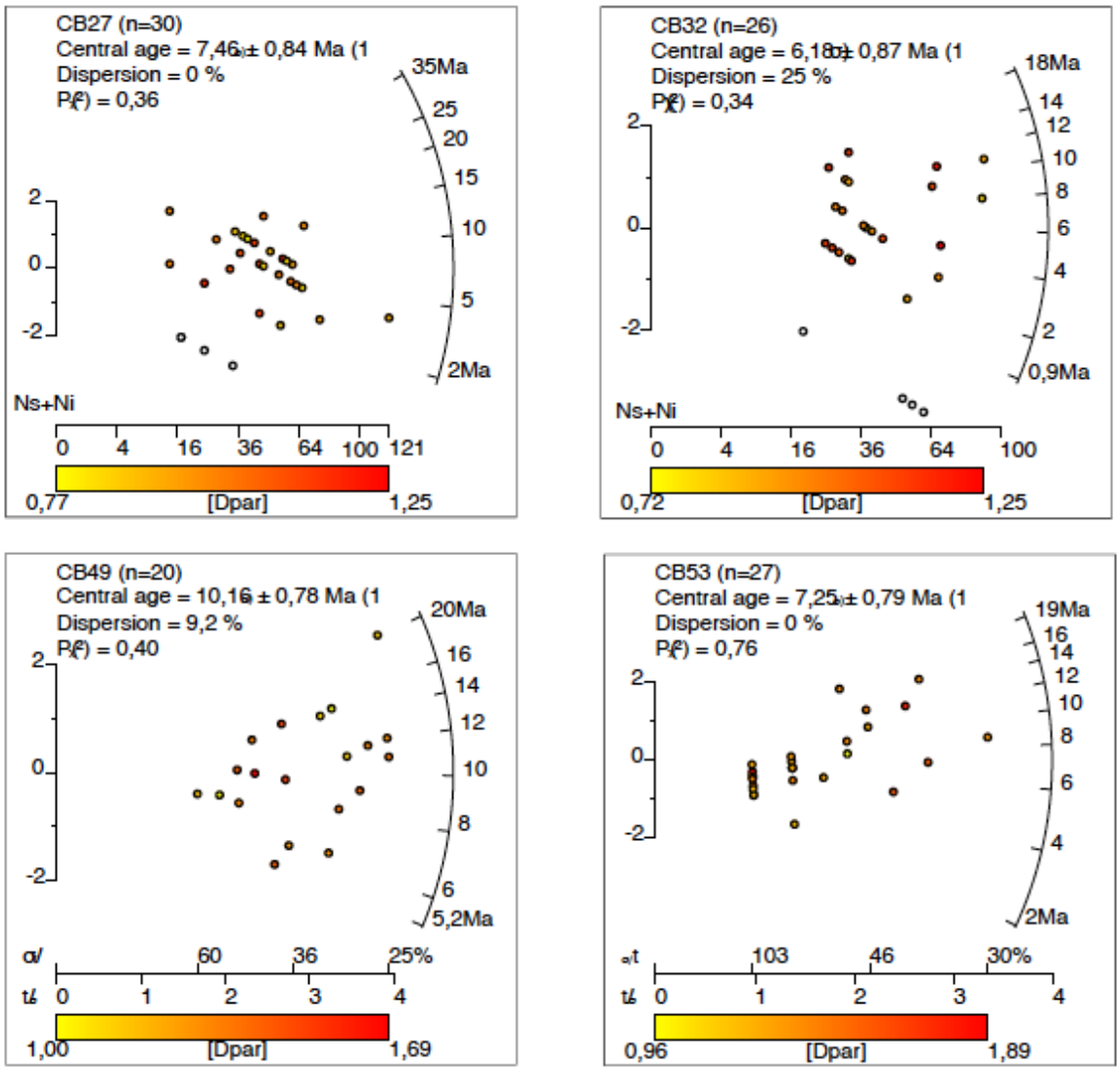


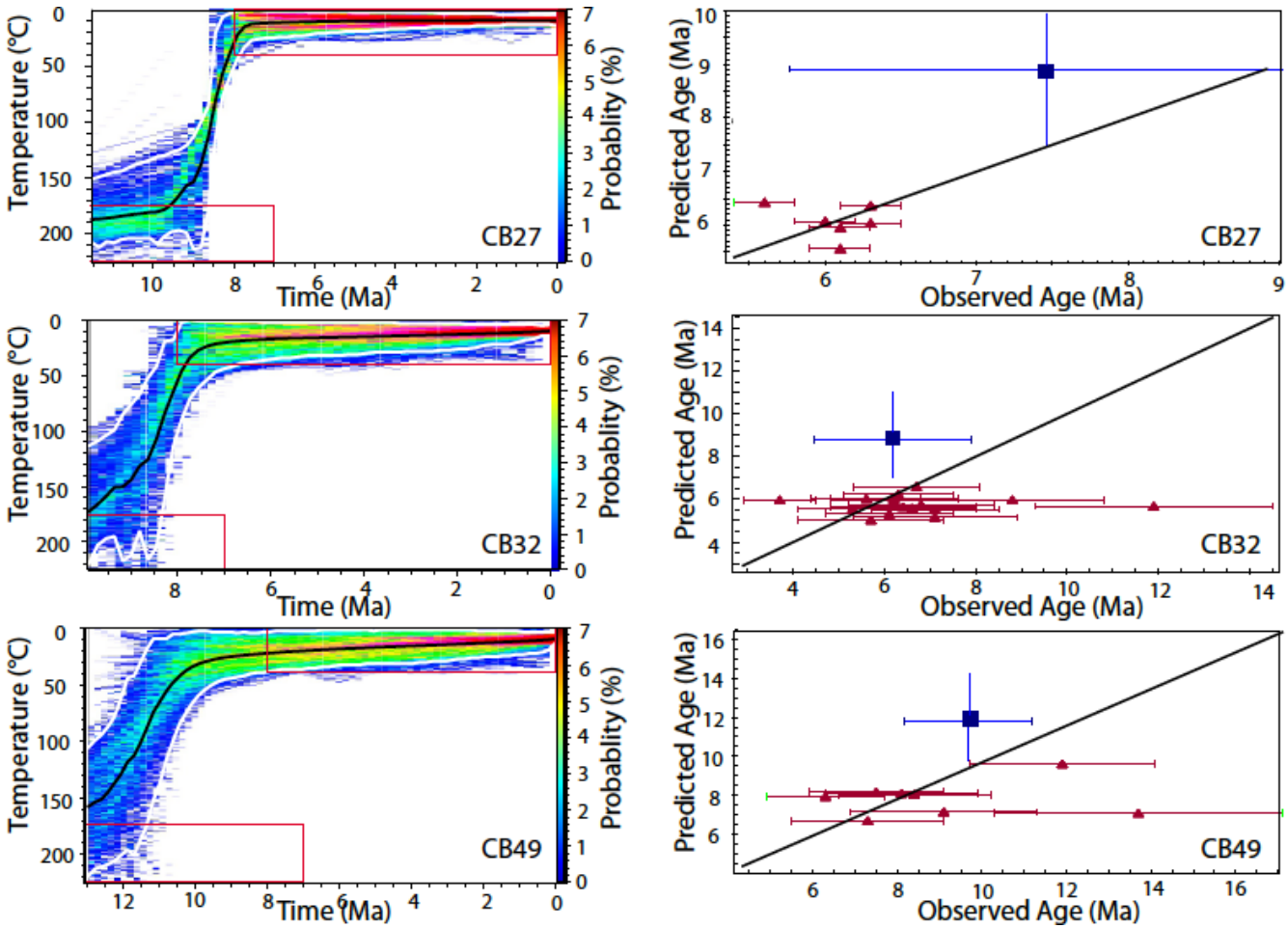
Figure SI2: Radial-plot of the AFT results.

Section SI2: Thermal modeling

Neogene time-temperature (t-T) path was inferred using QTQt modelling software (Gallagher, 2012). Based on Markov chain Monte Carlo sampling method, the QTQt inversion code allows obtaining thermal histories including the most recent AFT annealing model (Ketcham *et al.*, 2007) as well as a selection for He diffusion model in apatite (Flowers *et al.*, 2009; Gautheron *et al.*, 2009). The whole thermochronological dataset (AFT and AHe) was inverted using the model of Ketcham et al., 2007 and Gautheron et al., 2009. Two constraints on the temperature/time history were used: (i) today, the temperature is lower than 40°C. (ii) The pluton has formed at high temperature (>150°C) 17 Ma ago (Abbassene et al., 2016). Two constraints boxes were thus used, one for the present temperature (20 ± 20°C since a maximum of 8 Ma), and one for the pluton formation (175±25°C at 13±4Ma). 100 000 run were performed as burn-in and burn-out.

The retained path corresponds to the weighted mean model from the posterior distribution and the predicted thermochronology ages (AHe and AFT) inferred from the model reproduce the input data testifying its statistical robustness. The results of the inverse simulation presented in Figure SI-2 is a suite of thermal histories along with their probability to reproduce the thermochronometric dataset. The colours (blue to red) indicate this probability, red paths being the most probable. Additionally, the inversion model well reproduces the AHe dates (modelled date – observed date < 4 Ma) and the AFT date (predicted date –observed date=0.7 Ma).

455



482

483 **Figure SI2: Forward simulation results using the Gautheron et al. (2009) model.**

Table SI1 Sample location and lithology

Samples	Petrography	Altitude (m)	Latitude	Longitude
CB32	Granodiorite	790	37°01’40.9’’N	60°23’29.8’’E
CB27	Granite	520	37°03’33.8’’N	6°23’23.5’’E
CB49	Granodiorite	360	37°01’20’’N	6_20’13’’E
CB53	Syenogranite	10	37°04’35.6’’N	6°21’57.3’’E

502 **Table SI2 He results and apatite characteristics**

503

Sample	Prism termination	L	W	T	Rs	weigth	FT	^{4}He	U	Th	Sm	eU	Th/U	Age	Age c	err
		µm	µm	µm	µm	µg		ncc/g	ppm	Ppm	ppm	ppm		Ma	Ma	Ma
CB53Q	1 bf	125	113	100	51	3.0	0.78	9907	9	19	123	**14**	2.0	5	7.0	0.6
CB53R	No pyr	100	88	88	42	1.7	0.69	14814	14	26	181	**20**	1.9	6	8.2	0.7
CB53V	No pyr	138	125	88	47	2.8	0.75	21745	21	14	153	**25**	0.7	7	9.3	0.8
CB53W	No pyr	112,5	88	88	44	2.0	0.71	18686	24	13	164	**27**	0.6	5	7.6	0.6
CB53F	No pyr	188	100	100	55	4.2	0.77	13905	18	23	119	**24**	1.3	5	6.0	0.5
CB53G	No pyr	125	113	100	51	3.0	0.75	14863	16	11	131	**19**	0.7	6	8.4	0.7
CB53H	1 pyr, 1 bf	125	125	100	48	2.3	0.77	18191	17	22	161	**22**	1.3	6	8.3	0.7
CB53J	No pyr	137,5	113	100	52	3.3	0.75	15517	18	21	141	**23**	1.1	5	7.1	0.6
CB53M	2 bf	187,5	125	100	56	4.8	0.87	15884	14	22	114	**20**	1.5	6	7.4	0.6
CB53P	No pyr	175	125	125	64	6.2	0.79	2986	2	7	85	**4**	2.7	5	6.7	0.5
CB53N	2 pyr	200	100	88	50	2.7	0.58	24867	29	35	218	**37**	1.2	5	9.1	0.6
CB53X	1 pyr	100	88	88	40	1.3	0.66	21759	26	33	245	**34**	1.3	5	7.6	0.6
CB53B	1 bf	163	113	88	49	3.2	0.80	23840	26	36	179	**35**	1.4	5	6.8	0.6
CB53C	2 bf	225	113	75	45	3.4	0.87	8427	5	13	197	**9**	2.4	7	8.5	0.8
CB53D	2 bf	100	88	75	39	1.4	0.78	48933	44	33	260	**52**	0.8	8	8.6	0.8
CB53S	No pyr	150	88	63	36	1.6	0.70	51159	78	25	225	**84**	0.3	5	6.3	0.6
CB53T	1 bf	138	63	50	30	0.9	0.70	29970	37	30	315	**44**	0.8	5	7.6	0.7
CB53Y	No pyr	88	75	75	37	1.1	0.65	19456	26	39	280	**35**	1.5	4	6.2	0.5
*CB53Z**	*1 bf*	*138*	*100*	*69*	*39*	*1.8*	*0.77*	*15414*	*11*	*12*	*126*	***14***	*1.1*	*9*	*13.2*	*1.0*

CB53AA	1 bf	150	100	100	52	3.4	0.79	8089	9	15	95	**13**	1.6	5	6.3	0.5
CB53DD	1 bf	88	88	75	37	1.2	0.72	22117	28	6	109	**30**	0.2	6	8.3	0.7
*CB49AA**	*No pyr*	*250*	*250*	*163*	*85*	*18.1*	*0.86*	*50646*	*32*	*10*	*50*	***35***	*0.3*	*12*	*13.9*	*1.1*
CB49CC	No pyr	200	100	88	50	3.8	0.77	197772	197	10	160	**200**	0.0	8	11.3	0.9
CB49DD	No pyr	150	63	63	36	1.3	0.67	58550	62	12	229	**65**	0.2	7	10.8	0.9
*CB49GG**	*No pyr*	*188*	*75*	*63*	*38*	*1.8*	*0.70*	*131094*	*111*	*27*	*281*	***118***	*0.2*	*9*	*12.9*	*1.1*
CB49II	No pyr	125	100	113	51	3.0	0.75	81225	77	7	85	**79**	0.1	8	11.2	0.9
CB49JJ	No pyr	125	113	113	54	3.6	0.76	27185	28	5	140	**29**	0.2	8	9.9	0.8
CB49LL	No pyr	113	113	100	49	2.7	0.74	43740	52	16	172	**56**	0.3	6	8.5	0.7
CB32A	No pyr	138	88	75	103	25.2	0.71	1712	2	1	13	**2**	0.6	7	10.0	0.8
*CB32D**	*1 bf*	*113*	*100*	*88*	*45*	*2.1*	*0.76*	*54243*	*33*	*14*	*200*	***36***	*0.4*	*12*	*15.7*	1.4
CB32F	1 pyr,1 bf	138	100	113	50	2.6	0.79	27373	31	15	181	**35**	0.5	6	7.9	0.7
CB32I	1 pyr	138	88	75	41	1.6	0.63	24449	32	19	216	**37**	0.6	5	8.4	0.6
CB32Q	1 pyr	125	100	88	44	1.8	0.68	30585	32	13	223	**35**	0.4	7	10.0	0.8
CB32V	1 bf	144	125	113	57	4.4	0.81	15952	18	9	105	**20**	0.5	6	7.8	0.6
CB32M	1 pyr, 1bf	181	163	125	64	5.6	0.83	30284	32	20	121	**36**	0.6	7	8.1	0.7
CB32U	No pyr	125	113	100	51	3.0	0.74	13328	23	22	140	**28**	0.9	4	5.1	0.4
*CB32W**	*No pyr*	*138*	*113*	*94*	*50*	*3.0*	*0.75*	*26772*	*21*	*13*	*143*	***24***	*0.6*	*9*	*11.7*	*1.0*
CB32Z	No pyr	150	100	100	52	3.4	0.76	15082	17	9	112	**19**	0.5	6	8.1	0.7
CB32AA	No pyr	150	113	94	51	3.3	0.76	16355	21	10	127	**23**	0.5	6	7.4	0.6
CB32G	No pyr	125	75	75	40	1.6	0.69	17306	18	16	179	**22**	0.9	6	8.8	0.7
CB32O	No pyr	138	75	93	36	1.4	0.72	35761	35	20	218	**40**	0.6	7	9.8	0.9
CB32H-	2 bf	125	100	75	41	1.8	0.82	21688	23	14	194	**26**	0.6	7	8.0	0.7

CB32T	No pyr	138	100	75	42	2.0	0.72	17746	18	14	148	**22**	0.8	6	8.8	0.8
CB32Y	No pyr	113	75	63	35	1.1	0.66	22304	27	14	191	**31**	0.5	6	8.6	0.7
CB27A	No pyr	238	88	75	45	3.3	0.73	25592	19	61	185	**33**	3.3	6	8.4	0.1
CB27B	No pyr	175	113	113	59	5.0	0.77	7462	6	17	103	**10**	2.8	6	7.3	0.1
CB27D	1 bf	113	88	75	40	1.6	0.73	38839	27	95	358	**50**	3.5	6	8.4	0.1
CB27F	No pyr	188	113	100	56	4.6	0.77	14994	10	34	148	**19**	3.3	6	8.2	0.1
CB27E	No pyr	125	100	100	50	2.9	0.73	15228	10	36	162	**19**	3.5	6	8.7	0.1
CB27H	No pyr	163	100	88	49	3.0	0.74	24120	17	61	199	**32**	3.5	6	8.2	0.1

Table SI3 : Fission track results

	Nb. Grains	**N_s**	**r_s *10^5 (tr/cm^2)**	**N_i**	**r_i *10^5 (tr/cm^2)**	**N_d**	**r_d *10^5 (tr/cm^2)**	**AFT Age (Ma)**	**Error (Ma)**	**D (%)**	**Dpar**	**Error**
CB53	27	89	0.073	1429	1.167	5479	6.490	7.3	0.8	2	1.6	0.2
CB49	30	182	0.159	2110	1.844	6710	6.483	9.7	0.8	0.6	1.5	0.2
CB32	26	61	0.066	1115	1.212	6710	6.534	6.2	0.9	24.5	1.2	0.1
CB27	30	84	0.056	1285	0.861	6710	6.584	7.5	0.9	7.5	1.2	0.1

References

Abbassene, F., 2016. Contraintes chronologiques et petro-géochimiques du magmatisme sur l'évolution pré- et post-collisionnelle de la marge algérienne. Secteur de la Petite Kabylie. PhD Université de Bretagne Occidentale.

Abbassene, F., Chazot G., Bellon H., Bruguier O., Ouabadi A., Maury R.C., Deverchère J., Bosch D., Monié P., 2016. A 17 Ma onset for the post-collisional K-rich calc-alkaline magmatism in the Maghrebides: evidence from Bougaroun (Northeastern Algeria) and geodynamic implications. Tectonophysics 674: 114-134.

Evans, N.J., Byrne, J.P., Keegan, J.T., Dotter, L.E., 2005, Determination of uranium and thorium in zircon, apatite, and fluorite: Application to laser (U–Th)/He thermochronology. Journal of analytical Chemistry, v. 60, p. 1300–1307.

Flowers, R.M., Ketcham, R.A., Shuster, D.L., Farley, K.A., 2009. Apatite (U–Th)/He thermochronometry using a radiation damage accumulation and annealing model. Geochim. Cosmochim. Acta 73, 2347–2365. doi:10.1016/j.gca.2009.01.015

Galbraith, R.F., Laslett, G.M., 1996. Statistical modelling of thermal annealing of fission tracks in apatite. Geochim. Cosmochim. Acta, v. 60, p. 5117-5131.

Gallagher, K., 2012. Transdimensional inverse thermal history modelling for quantitative thermochronology. Journal of Geophysical Research 117.

Gautheron, C., Tassan-Got, L., Barbarand, J., Pagel, M., 2009. Effect of alpha-damage annealing on apatite (U–Th)/He thermochronology. Chem. Geol. 266, 157–170. doi:10.1016/j.chemgeo.2009.06.001

Gautheron, C., Tassan-Got, L., 2010. A Monte Carlo approach to diffusion applied to noble gas/helium thermochronology. Chem. Geol. 273, 212–224. doi:10.1016/j.chemgeo.2010.02.023

Gautheron, C., Tassan-Got, L., Ketcham, R.A., Dobson, K.J., 2012. Accounting for long alpha-particle stopping distances in (U–Th–Sm)/He geochronology: 3D modeling of diffusion, zoning, implantation, and abrasion. Geochim. Cosmochim. Acta 96, 44–56. doi:10.1016/j.gca.2012.08.016

Gautheron C., Barbarand J., Ketcham R.A., Tassan-Got L., Van der Beek P., Pagel M., Pinna-Jamme R.,Couffignal F., Fialin M., 2013. Chemical influence on α-recoil damage annealing in apatite: implications for (U-Th)/He dating. Chemical Geology351: 257-267.

Hurford, A.J., Green, P.F., 1982. A users' guide to fission track dating calibration. Earth Planet. Sci. Lett. 59, 343–354.

Ketcham, R.A., Carter, A., Donelick, R.A., Barbarand, J., Hurford, A.J., 2007. Improved modeling of fission-track annealing in apatite. Am. Mineral. 92, 799–810. doi:10.2138/am.2007.2281

Ketcham, R.A., Gautheron, C., Tassan-Got, L., 2011. Accounting for long alpha-particle stopping distances in (U–Th–Sm)/He geochronology: Refinement of the baseline case. Geochim. Cosmochim. Acta 75, 7779–7791. doi:10.1016/j.gca.2011.10.011

McDowell, F.W., McIntosh, W.C., Farley, K.A., 2005. A precise 40Ar–39Ar reference age for the Durango apatite (U–Th)/He and fission-track dating standard. Chemical Geology, v. 214, p. 249–263.

Ouabadi A., 1994. Pétrologie, Géochimie, et origine des granitoïdes péralumineux à cordierite (Cap Bougaroun, Beni Touffout, et Filfila), Algérie Nord Orientale. PhD. Université de Rennes1.

5. Bibliographie des annexes

Recanati A., Gautheron C., Missenard Y., Barbarand J., Pinna R., Tassan-Got L., 2015. Distribution des âges (U-Th-Sm)/He sur apatite dans le complexe plutonique de Ploumanac'h (Bretagne, France). Journées ANR 8-10 septembre 2015, Dignes les Bains, France.

Recanati A., 2016. (U-Th-Sm)/He thermochronological study of the pink granite coast (French Armorican Massif) : alpha damage and He rétention. Journées ANR 15 juin 2016, Orsay, France.

Recanati A., 2016. Controls on He retention in apatites from the Tregor (Armorican Massif, France). Journée des doctorants GEOPS, juin 2016, Orsay, France.

Recanati A., Gautheron C., Missenard Y., Barbarand J., Pinna-Jamme R., 2016. Evolution thermique du Trégor (Nord du Massif Armoricain) : apports de la thermochronologie basse température. Réunion des Sciences de la Terre, Caen, octobre 2016.

Recanati A., 2017. Neogene inversion of Lesser Kabylia, dated by (U-Th-Sm)/He thermochronometry. Journée des doctorants GEOPS, juin 2017, Orsay, France.

Recanati A., Gautheron C., Barbarand J., Missenard Y., Gallagher K., Pinna-Jamme R., 2017. Helium trapping in apatite damage : insights from overly dispersed (U-Th-Sm)/He dates. Goldschmidt, Paris, août 2017.

université PARIS-SACLAY | ÉCOLE DOCTORALE Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Titre : Thermochronométrie basse température (U-Th-Sm)/He : méthodologie et applications géodynamiques

Mots clés : Thermochronologie, Apatite, Hélium, Rétention, Algérie, Alpes, Massif Armoricain

Résumé : Une première partie de cette thèse est méthodologique: elle vise à améliorer la thermochronométrie (U-Th-Sm)/He sur apatite et les modèles de diffusion actuels. Nous avons étudié le cas du Massif Armoricain (France), et celui des Alpes Suisses. Nos travaux montrent que la rétentivité en hélium des apatites est plus élevée que prévu par les modèles traditionnellement utilisés.
Une approche statistique comprenant des algorithmes d'apprentissage montre que la composition chimique des grains ne semble pas jouer sur la rétentivité des apatites en hélium.
Le principal paramètre contrôlant la dispersion des âges hélium est l'état d'endommagement des cristaux. Nous proposons une approche de physique/minéralogie expérimentale pour le caractériser à l'échelle nanométrique.
Dans la dernière partie de la thèse, nous avons appliqué la méthode (U-Th-Sm)/He sur apatite au cas de la marge algérienne. Nous mettons en évidence une phase majeure de dénudation dans la région des Petites Kabylies au cours du Tortonien. Cette phase marque probablement le début de l'inversion de la marge, bien plus précocément que suggéré jusqu'alors.

Title : Low-temperature (U-Th-Sm)/He thermochronology : methodology and geodynamical applications

Keywords : Thermochronology, Apatite, Helium, Retention, Algeria, Alps, Armorican Massif

Abstract : The first part of the thesis aims at improving the methodology and the models involved in apatite (U-Th-Sm)/He thermochronology. For this purpose, we studied two geological cases: the Armorican Massif (France) and the Swiss Alps. Our work suggests that apatite helium retentivity is higher than predicted in traditional models.
A statistical approach using machine learning algorithms evidences that the apatite chemical composition of grains does not influence helium retentivity. The key parameter is the parent radionuclide contents and the crystal damage content. We suggest an experimental procedure in order to characterize damage in apatite at the sub-micrometer scale.
In the last part of the thesis, we applied the (U-Th-Sm)/He method to the Algerian Margin. We evidenced a major denudation phase in Petite Kabylie (« Lesser Kabylia ») during the Tortonian times. This phase likely corresponds to the initiation of the margin inversion, earlier than previously suggested.

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France