Dynamique de construction et démantèlement des volcans tertiaires et quaternaires des Carpates par des approches géomorphologiques et géochronologiques

Stéphane Dibacto Kamwa

▶ **To cite this version:**

Stéphane Dibacto Kamwa. Dynamique de construction et démantèlement des volcans tertiaires et quaternaires des Carpates par des approches géomorphologiques et géochronologiques. Géomorphologie. Université Paris-Saclay, 2020. Français. NNT : 2020UPASS144 . tel-03767522

HAL Id: tel-03767522

https://theses.hal.science/tel-03767522

Submitted on 2 Sep 2022

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.

Thèse de doctorat

NNT : 2020UPASS144

université PARIS-SACLAY

Dynamique de construction et démantèlement des volcans tertiaires et quaternaires des Carpates par des approches géomorphologiques et géochronologiques

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n° 579, sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)
Spécialité de doctorat : structure et évolution de la terre et des autres planètes
Unité de recherche : Université Paris-Saclay, CNRS, GEOPS, 91405, Orsay, France.
Référent : Faculté des sciences d'Orsay,

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 2 juillet 2020, par

Stéphane DIBACTO KAMWA

Composition du Jury

Xavier QUIDELLEUR Professeur, Université Paris-Saclay	Président
Matthieu KERVYN Professeur, Université Libre de Bruxelles	Rapporteur & Examinateur
Zsolt BENKÓ Maître de conferences, Hungarian Academy of Sciences Institute for Nuclear Research	Rapporteur & Examinateur
Dávid KARATSON Professeur, Université Eötvös, Budapest	Examinateur
Pierre-Yves GILLOT Professeur émérite, Université Paris-Saclay	Examinateur
Pierre LAHITTE Maître de conférences, Université Paris-Saclay	Directeur de thèse

1. Organisation of this thesis

This part is for English readers

This thesis is organised into VII chapters, three of which are published as articles in international journals and another one in preparation. An outline of each chapter as well as the contribution of the various participants, are provided below.

Introduction

Here, we give a general introduction of the study area and outlines the scope and the aims of this study.

Chapter I:

Geological setting

Besides providing a general introduction to the study area and the geological frame, this chapter outlines the scope and the aims of this study.

Chapter II:

Erosion: Principles, mechanisms and different approaches to quantify it

This chapter presents the main principles of erosion, its particularity in volcanic environments, the factors that control its genesis and its evolution, the different approaches of its quantification and the possible interpretation for the understanding of the natural or even anthropic processes observed in volcanic environments.

Chapter III:

Methods

In this chapter, we highlight the different methods used during this thesis, namely, geochronology approach based essentially on the K-Ar radioactive chronometer via the unspiked Cassignol-Gillot technique and, in a second time, the geomorphological approach based essentially on the numerical approach.

Indeed, we present the general principle of each method (geochronology and geomorphology one) and the analytical techniques. For instance, sometimes the ages obtained disagree with the geological data as well, so, we will tackle the problems posed by the excesses and losses of argon. For geomorphological data, we present the advantages and the limits of different technique applied in this study to quantify erosion in volcanic environments.

Chapter IV:

Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians

IV.1) Presentation

IV.2) Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part I: timing of lava dome activity

P. Lahitte; **S. Dibacto**; D. Karátson; R. Gertisser; D. Veres

Published 2019: International Association of Volcanology & Chemistry of the Earth's Interior

This chapter aims to constrain the main history of extrusive activity of Ciomadul (the youngest volcanic complex of the entire Carpathians), focusing on the central dome complex and its peripheral lava domes. Due to the very young eruption ages (in the 100-ka range), apart from the $^{40}Ar/^{39}Ar$ method, the unspiked Cassignol-Gillot technique, which uses the K-Ar radioactive chronometer, is arguably the most precise radiometric argon dating technique that can be applied to Ca-rich volcanic rocks.

Pierre Lahitte, Dávid Karátson, Ralph Gertisser, and Daniel Veres have performed sampling during fieldwork (in June 2016) before I started this PhD thesis in October 2016. Preparation and dating of the samples by unspiked K-Ar Cassignol-Gillot technique were performed by Stéphane Dibacto with valuable help of Pierre Lahitte. Pierre Lahitte wrote a first draft of the manuscript, in collaboration with Stéphane Dibacto. Dávid Karátson, Ralph Gertisser, and Daniel Veres considerably improved the quality of the final manuscript.

IV.3) Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part II: magma output rates

D. Karátson; T. Telbisz; **S. Dibacto**; P. Lahitte; A. Szakács; D. Veres; R. Gertisser; Cs. Jánosi; G. Timár

Published 2019: International Association of Volcanology & Chemistry of the Earth's Interior

Based on the eruptive history of the late Quaternary Ciomadul volcano elaborated in section IV-1, this section presents new ages and the youngest ages of the entire Carpathian range (~27 ka). In this section too, we computed the magma output rates of this volcanic complex.

Dávid Karátson, Pierre Lahitte, Ralph Gertisser, and Daniel Veres have performed sampling during fieldwork (in June 2016) before I started this PhD thesis. Preparation and dating of the samples by unspiked Cassignol-Gillot technique were performed by Stéphane Dibacto and then, I dated the youngest ages of volcanic activity of the whole Carpathian range.

Stéphane Dibacto and Pierre Lahitte interpreted data. Dávid Karátson and Tamas Telbisz wrote a first draft of the manuscript, in collaboration with Stéphane Dibacto and Pierre Lahitte. Alexandru Szakács, Daniel Veres, Ralph Gertisser, Cs Jánosi, and Gabbor Timár considerably improved the quality of the final manuscript.

Chapter V:

Growth and erosion rates of the East Carpathians volcanoes constrained by numerical models: Tectonic and climatic implications

S. Dibacto, P. Lahitte, D. Karátson, M. Hencz, A. Szakács, T. Biró, I. Kovács, D. Veres

Published to Geomorphology

This chapter provides a comprehensive and novel assessment of interaction between volcanism, tectonism and climate fluctuation in the East Carpathian area. It combines new and previous geochronological constraints with innovative quantitative geomorphology in order to decipher the topographic evolution of the East Carpathian volcanoes (comprising twenty well-defined edifices) and the main geodynamic processes behind. This chapter should be of interest to a wide readership of different scientific fields such as volcanology, geomorphology, structural geology, plate tectonics, geochronology, and also, to those colleagues interested in the quantification of erosional processes in volcanic environments (e.g. erosion rates) and, finally, impact of climate fluctuations on volcanic landforms.

Stéphane Dibacto, Pierre Lahitte, Dávid Karátson, Mátyás Hencz, Alexandru Szakács, Tamás Biró and István János Kovács have performed sampling during fieldwork (in May 2017). Preparation, dating of the samples and numerical reconstructions of volcanoes were performed by Stéphane Dibacto with valuable help of Pierre Lahitte. Stéphane Dibacto wrote a first draft of the manuscript, in collaboration with Pierre Lahitte and Dávid Karátson. Alexandru Szakács, Mátyás Hencz, Tamás Biró, Daniel Veres and István János Kovács considerably improved the quality of the final manuscript.

Chapter VI:

Chronostratigraphic constraints of the Miocene ignimbrites' deposits and lavas domes of the north of Hungary: the case of the Miocene ignimbrites of the volcanic field of Bükkalja & the volcanic complex of Börzsöny (Western Carpathians)

VI. 1) Miocene ignimbrites of Bükk and Mátra Mts. (Western Carpathian)

Stéphane Dibacto, Pierre Lahitte, Dávid Karátson, Mátyás Hencz and Tamás Biró have performed sampling during fieldwork (in 2017, May 2018). Preparation, dating of the samples were performed by Stéphane Dibacto with valuable help of Pierre Lahitte.

VI. 2) Börzsöny volcanic complex (Western Carpathians)

Stéphane Dibacto, Pierre Lahitte, Dávid Karátson, Mátyás Hencz, Tamás Biró and Gabbor Timár have performed sampling during fieldwork (in 2016, May 2017, May 2019). Preparation, dating of the samples were performed by Stéphane Dibacto, Pierre Lahitte and Kata Molnar.

Chapter VII :

Discussion

Chapter VIII :

Conclusion et perspectives

This chapter summarizes the results of the presented thesis

References

Annexe

Annexe A: Age tables

Annexe B: Volumetric results at level of individual volcano

2. Remerciements

Je tiens à remercier en tout premier lieu mon cher directeur de thèse Pierre Lahitte qui a dirigé cette thèse. Merci de m'avoir donné cette opportunité en me sélectionnant parmi d'autres candidats sérieux. J'ai pris énormément plaisir de partager ces nombreuses années à tes côtés. Tout au long de ces années, il a su orienter mes recherches aux bons moments et a toujours été disponible pour toutes les questions que je me posais (nos soirées de discussions au labo puis parfois en voiture lors du retour). Merci encore pour ton investissement pendant cette thèse. Il a été présent depuis le master 2 pour m'initier dans ce domaine passionnant des SIG d'une façon remarquable. Merci aussi pour toutes nos belles missions de terrain en Roumanie (Dracula Hôtel), Hongrie et ces quelques minutes en Slovaquie (ça compte aussi !). Pour tout cela et sa confiance, je le remercie vivement.

J'adresse également mes remerciements aux rapporteurs de ce manuscrit, Matthieu Kervyn et Zsolt Benkó, pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail. Merci aussi aux autres membres du jury, Xavier Quidelleur, David Karátson et Pierre-Yves Gillot pour avoir accepté de juger ce travail.

Un merci à David Karátson pour ces années passées ensemble et pour toute sa disponibilité et ses explications sur le terrain (ce fût une très belle aventure et le meilleur reste à venir certainement). Grâce à toi, j'ai pu mieux cerner le volcanisme des Carpates Pannoniennes.

Un merci particulier à Tamas Biró, que j'ai rencontré lors de notre première mission dans les Carpates, pour sa bonne humeur et surtout pour ces instants matinaux de prières avant nos longues expéditions sur les volcans Roumains (You are the best bro !).

Un merci à toute l'équipe géochrono ! pour ces belles années depuis le master 2. Merci pour votre confiance, votre aide et votre investissement pendant cette thèse.

Merci à Anthony Hildenbrand pour nos discussions scientifiques et aussi, pour ces moments de détente autour du café (j'ai tout un livre de blagues maintenant) ; Merci à Xavier Quidelleur pour tes conseils, ton sens de l'organisation et du travail bien fait qui a été plus que formateur. Un merci à Jacques -Marie celui-là qui, au travers de ces bourquin a suscité en moi l'amour de la recherche dès ma tendre enfance. Une pensée pour Valérie pour la confection des lames minces, un merci à Jean Pascal et Claude pour les moments de détente matinaux. Carlos Pallares, merci pour ces moments d'échanges vivifiants.

Je tiens aussi à remercier tout Particulièrement Pierre-Yves Gillot qui m'a accueilli dans ce labo dès le master 2 et qui par la suite, m'a initié à la géochronologie K-Ar. Merci cher Pierre-Yves pour tout cela. Comment oublier nos discussions et ces moments de détentes (merci également à Lawrence). Merci pour les discussions et conseils stimulants que j'ai pu recevoir de leur part à tous.

Merci pour tout chère Kim : ton aide, ta bonne humeur, tes bons plans et nos discussions. Merci également à Chantal Rock qui a assuré pour mes différentes missions de terrain ; à Catherine, Evelyne, Claire et tous les autres pour l'accompagnement.

Je n'oublie pas non plus mes camarades thésards que j'ai eu le plaisir de côtoyer au cours de ces dernières années. Aux étudiants avec qui j'ai partagé séries de potassium, recharges des fours, mesures, café, repas, soirées, etc. Merci à Mathilde Bablon pour tous les échanges qu'on a pu avoir et à Santiago pour nos moments de refuge à la cave et ceux de détente autour d'une bonne bière après le labo (ça compte aussi pour une bonne thèse !). Merci à tous mes étudiants de M1 SIG, et ceux de M1 Analyses de données ce fût un plaisir de vous dispenser ces enseignements. Une pensée toute particulière à Fanny Soler avec qui j'ai passé de super moments au labo.

Beaucoup de personnes m'ont aidé durant cette thèse sans qu'elles ne s'en soient jamais doutées. Ces soldats de l'ombre m'ont apporté ce dont on a le plus besoin pour réussir et ceci ne se trouve pas dans les livres. Je les remercie donc et leur dédicace aussi en partie ce manuscrit, en espérant oublier personne.

Une grosse dédicace amicale à Joseph (le boxeur champion de France ; mon Tyson à moi), Alain (mon militaire), Carole (pas de mot, t'es la meilleure) que je connais depuis maintenant 6 ans. J'espère savourer encore très longtemps cette belle amitié fraternelle !

Merci également à toutes les personnes que j'ai pu rencontrer pendant mon cursus académique en France, Italie, Allemagne ou au Cameroun et qui sont aujourd'hui devenus des ami(e)s à savoir : Mathieu Colombier (nos moments de détentes à Clermont-Ferrand... tu me dois un match de foot ne l'oublie surtout pas), Marion (t'as été la meilleure des meilleures... je te suis infiniment reconnaissant pour tout), Flavien (mon cher infirmier avec qui j'ai partagé beaucoup ; merci pour m'avoir introduire dans l'univers de l'escalade), Morgane (c'est un secret entre nous ; le coup de la résine dans les cheveux... merci pour ces années de Clermont-Ferrand puis ici à Orsay). Merci à tous mes amis de la summerschool Volkswagen (Marco, Bastian, Eric, Daniel, German, Avinash et les autres).

Un merci à la mama !! Lucia Gurioli avec qui j'ai fait mes premiers pas dans la recherche (M1) du côté de Clermont-Ferrand.

Je tiens aussi à remercier toute l'équipe de foot de GEOPS (Xavier, Julien Fréderic, Hanz, Antoine, Max et les autres) pour nos sacrés jeudis de foot.

Un énorme merci à toute ma famille qui m'a toujours soutenu et épaulé dans tout ce que j'ai pu entreprendre. Enfin, parce qu'ils sont la principale cause d'existence de ce manuscrit (car sans eux je n'aurais peut-être pas poussé aussi loin mes études), qu'ils m'ont toujours aimé, soutenu, encouragé et ont fait d'énormes sacrifices pour moi, merci à mes parents chéris (Emmanuel et Pauline). Merci à mes 2 frères Césaire et Daniel et à mes deux sœurs Ruth et Christelle. Les autres membres de ma famille, oncles (Papa Guibert, Roger, Bernard et Jean). Un merci à toi maman Marie et tous les autres.

Un clin d'œil à celui-là qui a tout déclenché (tagny Luther). Merci Josiane (ma grande sœur chérie) et Freddy pour tout votre soutien. Un merci spécial à ma complice Joëlle Tchankou qui a été d'un soutien indéfectible tout au long de ces années ainsi que toutes les autres (Marie- Noelle, Mireille, Cynthia).

Chavelie Marlène et sa famille. *Chavelie Marlène*, qui est à mes côtés depuis plus de 5 ans, a été d'un soutien incommensurable pour tout le travail abattu au cours de cette thèse. Merci Princesse ! Plus de 5 ans à me supporter, si ça ne mérite pas la légion d'honneur ! Merci pour tout, je ne sais pas si j'aurais réussi sans toi !

3. Table des matières

1. ORGANISATION OF THIS THESIS 2

2. REMERCIEMENTS 6

3. TABLE DES MATIERES 10

4. APERÇU DES PROJETS AYANT FOURNI LE CADRE DE CETTE THESE ET LEURS OBJECTIFS 16

INTRODUCTION 18

CHAPITRE I CONTEXTE GEODYNAMIQUE & VOLCANOLOGIQUE DES CARPATES PANNONIENNES 24

I.1 CONTEXTE GEODYNAMIQUE ET VOLCANOLOGIQUE DE LA REGION DES CARPATES-PANNONIENNE 26
I.1.1 Contexte géodynamique général 26
I.1.2 Volcanisme général 30
I.2 LE SEGMENT ORIENTAL DES CARPATES PANNONIENNE 33
I.2.1 Pétrographie 34
I.2.2 La chaîne volcanique Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH): aspects géodynamiques, caractéristiques générales et volcanologiques 36
I.2.2.1 Aspects géodynamiques 36
I.2.2.2 Caractéristiques générales 38
I.2.2.3 Caractéristiques volcanologiques 42
I.2.2.3.1 Edifices Volcaniques majeurs par secteur : 46
I.2.2.3.1.1 Secteur de Călimani 46
I.2.2.3.1.2 Secteur de Gurghiu 48
I.2.2.3.1.3 Secteur Harghita du Nord 50
I.2.2.3.1.4 Secteur Harghita du Sud 51
I.3 LE SEGMENT OCCIDENTAL DES CARPATES PANNONIENNE 54
I.3.1 Champ volcanique de Bükkalja (les monts Bükk et Mátra) 55
I.3.1.1 Contexte géologique 55
I.3.1.2 Caractéristiques pétrologiques des unités majeures 57
I.3.2 Le complexe de Börzsöny 60
I.3.2.1 Contexte géologique 60

CHAPITRE II L'EROSION ET SA DYNAMIQUE 66

II.1 L'EROSION 68
II.1.1 Généralités 68
II.1.1.1 L'altération 68
II.1.1.2 Erosion sens strict 69
II.1.1.3 Dénudation 69
II.2 AGENTS D'EROSION 70
II.2.1 Erosion par eau de ruissellement 71
II.2.2 Erosion éolienne 71
II.2.3 Erosion par thermoclastie 71
II.2.4 Erosion hydrothermale (hydrothermalisme) 72
II.3 INTERACTION CLIMAT- TECTONIQUE- COUVERT VEGETAL- EROSION 73
II.3.1 Interaction tectonique érosion 73
II.3.2 Interaction climat érosion 74
II.3.3 Interaction couvert végétal (plantes et activité microbienne) érosion 76
II.4 EROSION EN MILIEUX VOLCANIQUES 77
II.5 METHODE DE QUANTIFICATION DE L'EROSION 82
II.5.1 Définition 83
II.5.2 Approches isotopiques 83
II.5.2.1 Utilisation des cosmogéniques pour quantifier les taux de dénudation 83

II.5.2.2 Utilisation des techniques radiométriques 85
II.5.3 Approche géochimique 86
II.5.4 Approche numérique 88
II.6 L'EROSION DANS LES CARPATES PANNONIENNES : CAS DU SEGMENT CGH 93

CHAPITRE III METHODES : GEOCHRONOLOGIE ET GEOMORPHOLOGIE 100

III. 1 GEOCHRONOLOGIE K-AR 103
III. 1.1 Points sur les données géochronologiques antérieures des Carpates Pannoniennes 103
III. 1.2 Présentation générale de l'horloge K-Ar 106
III. 1.2.1 Sélection et préparation 108
III. 1.2.2 Mesures du Potassium et de L'argon 110
III. 1.2.2.1 Mesure du potassium 111
III. 1.2.2.2 Mesure de l'argon 112
III. 1.2.2.2.1 Extraction (1) et Purification (2) 112
III. 1.2.2.2.2 Analyse isotopique : spectrométrie de masse 113
III. 1.2.2.2.3 Calibration et correction atmosphérique 114
III. 1.2.2.3 Calcul de l'âge et de l'incertitude 116
III. 1.3 Limites de la méthode 117
III. 1.3.1 Perte d'argon 117
III. 1.3.2 Lessivage du potassium 118
III. 1.3.3 Excès d'argon 118
III. 1.3.4 Problème de la Contamination atmosphérique 120

III. 2 GEOMORPHOLOGIE 123
III. 2.1 Définition et concepts 123
III. 2.2 Reconstructions numériques des volcans 126
III. 2.2.1 Définition et limites 126
III. 2.2.2 Définition et sélection de la surface de base des volcans de CGH 129
III. 2.2.2.1 Principe 129
III. 2.2.2.2 Sélection des points 132
III. 2.2.2.3 Sélection des points de contraintes : reconstructions numériques des édifices volcaniques 134
III. 2.2.2.3.1 La pente topographique 135
III. 2.2.2.3.2 L'indice de position topographique 136
III. 2.2.2.3.3 L'angle d'ouverture topographique (Op) 139
III. 2.2.3 Outils et méthodes d'interpolations 146
III. 2.2.3.1 Interpolation par krigeage ou Kriging 146
III. 2.2.3.1.1 Principes 146
III. 2.2.3.1.2 Les limites 148
III. 2.2.3.2 Interpolation via l'algorithme ShapeVolc 151
III. 2.2.3.2.1 Présentation 151
III. 2.2.4 Quantification des volumes construits et érodés 158

CHAPITRE IV HISTOIRE ERUPTIVE DU PLUS JEUNE COMPLEXE VOLCANIQUE DES CARPATES PANNONIENNES : NOUVELLES CONTRAINTES GEOCHRONOLOGIQUES ET GEOMORPHOLOGIQUES (VOLCAN DE CIOMADUL) 166

IV.1 PRESENTATION DES SITES ECHANTILLONNES 167

IV.1.1 Analyse Pétrographique des dômes de lave échantillonnés 168

IV.2 ERUPTIVE HISTORY OF THE LATE QUATERNARY CIOMADUL (CSOMÁD) VOLCANO, EAST CARPATHIANS, PART I: TIMING OF LAVA DOME ACTIVITY (ARTICLE) 173

IV.2.1 Abstract 174
IV.2.2 Introduction 174
IV.2.3 Geological Background 175
IV.2.4 Petrology of the Ciomadul lava domes 176
IV.2.5 Methods 176
IV.2.5.1 Applying the unspiked Cassignol-Gillot K-Ar technique 176

IV.2.5.1.1 The unspiked Cassignol-Gillot technique ... 178
IV.2.5.2 Crystal size distribution analysis ... 179
IV.2.5.3 Petrographical and geochemical analyses ... 180
IV.2.6 Results ... 180
IV.2.6.1 Crystal size distribution analysis and justification of the groundmass separation process ... 180
IV.2.6.2 K-Ar ages ... 181
IV.2.6.2.1 South-eastern and northern domes ... 181
IV.2.6.2.2 Western-central part of the dome complex ... 182
IV.2.6.2.3 Eastern-central part of the dome complex ... 182
IV.2.6.3 Geochemistry of the lava domes ... 182
IV.2.7 Discussion ... 184
IV.2.7.1 Timing of lava dome activity ... 184
IV.2.7.2 Comparison with previous radiometric results ... 185
IV.2.7.3 Difference between groundmass and xenocryst mineral ages ... 190
IV.2.7.4 Magmatic origin of inherited minerals ... 193
IV.2.7.5 Geochemical evolution of the Ciomadul lava domes ... 194
IV.2.8 Conclusion ... 195
IV.2.9 References ... 197

IV.3 ERUPTIVE HISTORY OF THE LATE QUATERNARY CIOMADUL (CSOMÁD) VOLCANO, EAST CARPATHIANS, PART II: TIMING OF LAVA DOME ACTIVITY (ARTICLE) ... 202

IV.3.1 Abstract ... 203
IV.3.2 Introduction ... 204
IV.3.3 Geological setting and major evolutionary issues of Ciomadul ... 204
IV.3.4 DEM-based volumetry ... 208
IV.3.4.1 Methodological issues ... 208
IV.3.4.1.1 Base level considerations ... 209
IV.3.4.1.2 Sequence of volume calculations ... 210
IV.3.5 Results ... 210
IV.3.6 Discussion ... 212
IV.3.6.1 Dome volumetry at Ciomadul: a worldwide comparison ... 212
IV.3.6.2 Assessment of erosion rates ... 213
IV.3.6.3 Time-averaged magma output rates—implications for long-term lava dome growth ... 213
IV.3.6.4 Implications for the volcano-geomorphological evolution of Ciomadul ... 215
IV.3.7 Conclusion ... 217
IV.3.8 Appendix ... 218
IV.3.9 References ... 219

CHAPITRE V : GROWTH AND EROSION RATES OF THE EAST CARPATHIANS VOLCANOES CONSTRAINED BY NUMERICAL MODELS: TECTONIC AND CLIMATIC IMPLICATIONS 224

ABSTRACT ... 225
1 INTRODUCTION ... 225
2 GEOLOGICAL SETTING ... 226
3 VOLCANISM OF THE CGH RANGE AND ITS TIMING ... 226
4 METHODS ... 228
4.1 K-Ar ages by unspiked Cassignol–Gillot technique ... 228
4.2 DEM-based volumetry calculations ... 228
4.2.1 Volcanic paleo-surface model ... 228
4.2.2 Volumetric data, growth and erosion rates ... 230
5 RESULTS ... 231
5.1 K-Ar ages ... 231
5.1.1 Călimani edifice ... 231
5.1.2 Seaca-Tătarca volcano (Gurghiu Mts.) ... 231
5.1.3 Vârghiș volcano (North Harghita Mts.) ... 231
5.1.4 Pilișca volcano (South-Harghita) ... 233
5.2 Volcanic surface models ... 233
5.2.1 Paleo-volcanic surfaces ... 233

5.2.2 Volumetric results ... 233
6 DISCUSSION ... 233
6.1 Volume comparison with previous results ... 233
6.2 K-Ar age constraints ... 235
V.6.2.1 Comparison with previous radiometric age data ... 235
V.6.2.2 Example of volcano growth through time: The case of Seaca-Tătarca volcano ... 235
6.3 Spatio-temporal evolution of the CGH volcanism ... 238
6.4 Growth rates evolution through time and tectonic implications ... 238
6.5 Erosion rate and degree of denudation through time ... 239
7 CONCLUSION ... 242
REFERENCES ... 243

SUPPLEMENTARY MATERIAL ... 246

A: METHOD ... 246
A1. K-Ar ages by unspiked Cassignol–Gillot technique ... 246
A1.1. Sample Preparation ... 246
A1.2. K-content measurement ... 247
A1.3. Argon measurements ... 247
A2. DEM-based volumetry calculations ... 248
A2.1. Modelling the pre-volcanic basal surface ... 248
A2.2. Volume, area, growth and erosion rates calculations ... 249
B1. Result of pre-volcanic basement surface estimation ... 251
B2. Impact of ellipticity on the fitting of volcano surface ... 251
FIGURES CAPTIONS ... 252
REFERENCES ... 256

CHAPITRE VI : CONTRAINTES CHRONOSTRATIGRAPHIQUES DES DEPOTS IGNIMBRITIQUES ET DOMES DE LAVES MIOCENE NORD HONGROIS : CAS DU CHAMP VOLCANIQUE DE BÜKKALJA & DU COMPLEXE VOLCANIQUE DE BÖRZSÖNY (CARPATES OCCIDENTALE) 260

VI. 1 LES CHAMPS VOLCANIQUES DE BÜKK ET MATRA ... 263
VI. 1.1 Objectifs de cette étude ... 263
VI. 1.2 Méthodes ... 263
VI. 1.2.1 Datation K-Ar sur phase séparé : les biotites ... 263
VI. 1.3 Résultats ... 265
VI. 1.3.1 Secteur de Bükkalja ... 265
VI. 1.3.2 A proximité du secteur de Mátra ... 266
VI. 1.4 Discussion ... 268
VI. 1.4.1 Comparaisons des âges K-Ar et corrélations avec les mesures paléomagnétiques ... 268
VI. 1.4.1.1 Secteur avec des Polarités inverses du champ magnétique ... 268
VI. 1.4.1.2 Secteur avec des Polarités normales du champ magnétique ... 270

VI. 2 LE COMPLEXE DE BÖRZSÖNY ... 276
VI. 2.1 Méthodologie ... 276
VI. 2.2 Résultats ... 277
VI. 2.3 Discussion ... 280
VI. 2.3.1 Comparaison ... 280

CHAPITRE VII : DISCUSSION GENERALE ... 288

VII.1 EVOLUTION SPATIO-TEMPORELLE DES CARPATES ORIENTALES : SEGMENT VOLCANIQUE DE CGH ... 291
VII.1.1 Complexe volcanique de Ciomadul ... 291
VII.1.1.1 Utilisation du chronomètre K-Ar pour un volcanisme récent ... 291
VII.1.1.2 Comparaison de nos résultats avec les âges K-Ar sur roche totale ... 292
VII.1.1.3 Influence de la taille de la fraction datée ... 295
VII.1.1.4 Comparaison de nos résultats avec les âges (U-Th) /He ... 296
VII.1.2 Evolution temporelle des volcans Pilişca, Varghis, Seaca-Tătarca et Călimani du segment CGH 297
VII.1.3 Synthèse ... 298

VII.2 EVOLUTION SPATIO-TEMPORELLE DES CARPATES OCCIDENTALES : COMPLEXE DE BÖRZSÖNY ET LES CHAMPS VOLCANIQUES DE BÜKK ET MATRA 300
VII.3 RECONSTRUCTIONS NUMERIQUES 300
VII.3.1 Modélisation de la surface de base anté-volcanique 301
VII.3.2 Modélisation numérique des paléo surfaces des volcans 302
VII.3.2.1 Pertinence du choix de ShapeVolc au détriment du Krigeage 302
VII.4 VOLUMES POST-ERUPTIFS (VOLUMES DE CONSTRUCTION) 306
VII.4.1 Corrélation entre volume construit, hauteur et surface 307
VII.4.2 Comparaison des volumes construits avec les précédents résultats 308
VII.4.3 Synthèse 310
VII.5 TAUX DE CONSTRUCTION 311
VII.6 VOLUMES ERODES 313
VII.7 TAUX D'EROSION 314
VII.7.1 Comparaison de nos taux d'érosion avec les valeurs mondiales 320

VIII CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES 324

BIBLIOGRAPHIE 332

ANNEXE A: TABLEAU SYNTHETIQUE DES NOUVEAUX AGES K-AR 358

ANNEXE B: VOLUMETRIC RESULTS AT LEVEL OF INDIVIDUAL VOLCANO: CASE OF CGH RANGE 364

4. Aperçu des projets ayant fourni le cadre de cette thèse et leurs objectifs

Le projet fournissant le cadre de l'étude présentée est principalement le programme hongrois pour la recherche scientifique **NKFIH-OTKA N ° 765 K 115472** ; intitulé « **Eruptive rates and Erosional Dynamics of the Inner Carpathians Volcanism as constrained by volumetry, radiometric chronology, and paleomagnetism** » initié par Dávid Karátson (porteur de projet) qui a couvert la période 2015 à 2019. En parallèle, le programme **SYSTER 2017 N ° 766** de l'INSU, CNRS (France), initié par Pierre Lahitte (porteur de projet) a également apporté un soutien financier.

Dans le détail, l'objectif principal porté par ces 2 projets était de déterminer les taux d'éruption et les taux d'érosion post-éruptif du volcanisme Miocène-Quaternaire des Carpates Pannoniennes telles que contraintes par la chronologie radiométrique, le paléomagnétisme et la volumétrie, en mettant l'accent sur la Roumanie et la Hongrie.

Ces 2 projets (**NKFIH-OTKA et SYSTER)** étaient axés autour des thématiques suivantes :

— (1) Produire une chronostratigraphie volcanique améliorée et détaillée en intégrant de nouveaux résultats K-Ar et paléomagnétiques aux ensembles de données existants sur l'ensemble de la chaîne volcanique.

- Au niveau des monts Bükk et Mátra (Carpates occidentales) : ces secteurs, relativement moins et mal contraints par le chronomètre K-Ar et les études paléomagnétiques, nécessitaient à combler des lacunes importantes dans sa stratigraphie volcanique.
- Au niveau du complexe de Börzsöny (Carpates occidentales) : il comprend un champ volcanique contraint par des études antérieures (datation K-Ar sur roche totale et biotite) mais qui malheureusement, présentent de larges incertitudes associées de l'ordre de 0.6 à 1.4 Ma. Par conséquent, affiner la chronostratigraphie volcanique avec de nouvelles méthodes (K-Ar sur phase séparée par la technique Cassignol-Gillot) pourra considérablement approfondir nos connaissances notamment sur sa durée d'activité.
- Au niveau du segment volcanique Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH ; Carpates orientale), l'objectif visé est d'effectuer et d'affiner son étude chronostratigraphique.

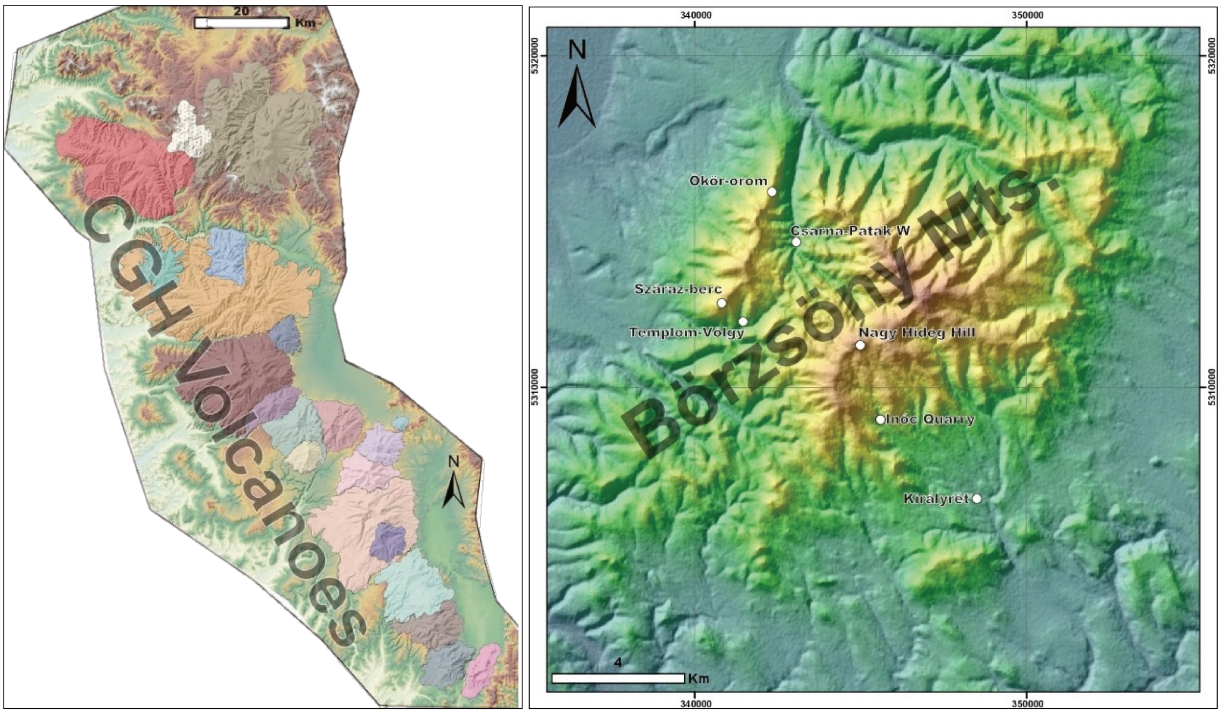
— (2) Calculer des données volumétriques précises des édifices volcaniques (Carpates orientales).

Déterminer les volumes de construction des parties superficielles des édifices volcaniques et des volumes de matériaux/produits enlevés par érosion par analyse morphométrie ayant pour

ossature des modèles numériques de terrain (MNT) de haute précision ; cas du complexe volcanique de Ciomadul et tous les autres volcans de CGH des Carpates orientales.

— (3) Calculer à l'aide des données chronologiques et volumétriques obtenues, les taux de construction pour différentes unités volcaniques (Complexes volcaniques, édifices volcaniques, unités de tuf) ainsi que les taux d'érosion : cas des Carpates orientales et du complexe de Börzsöny.

Introduction



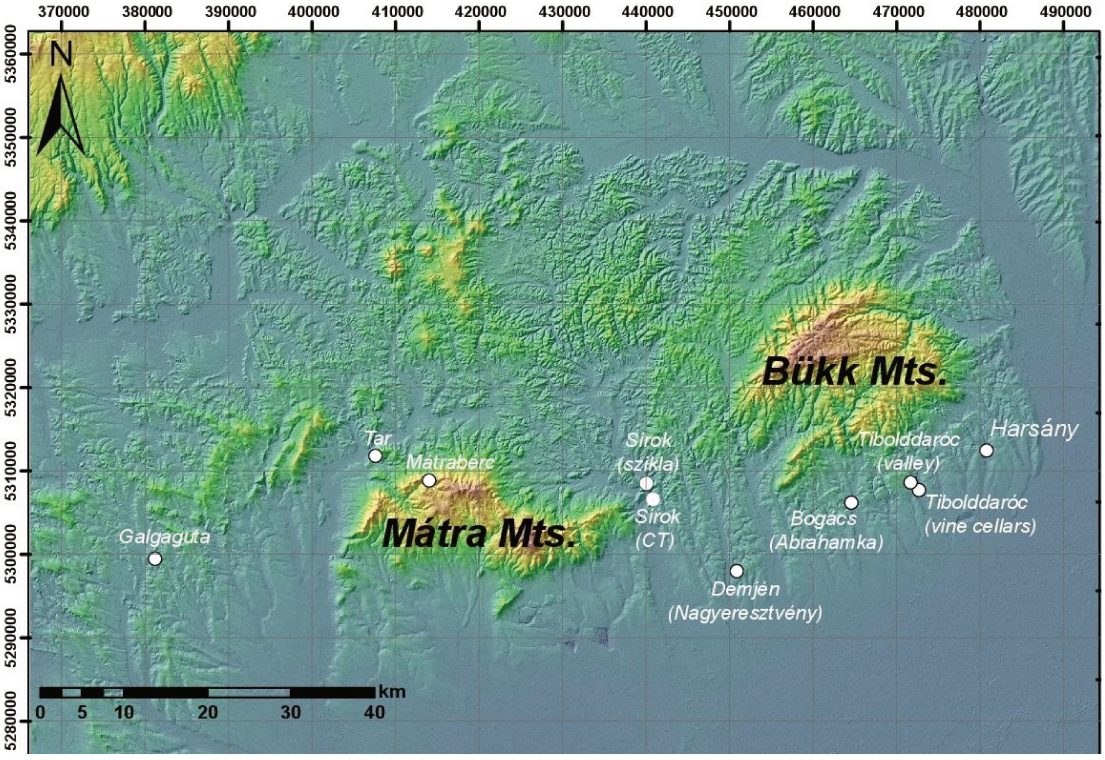


Figure 1 : A) Segment volcanique de Călimani-Gurghiu- Harghita (CGH) des Carpates de l'Est ; B) Complexe volcanique de Börzsöny (Carpates de l'Ouest ; C) Les monts Mátra et Bükk (Carpates occidentales)

Les volcans sont des évènements géologiques construisant le plus rapidement des reliefs importants (Crisp, 1984; White et al., 2006; Thouret et al., 2007). Ces reliefs volcaniques, par nature déséquilibrés, se démantèlent ensuite dans des délais qui peuvent être rapides sous l'action des facteurs naturels (érosion, variations climatiques) ou même anthropiques ce qui engendre dès lors, une large variété de morphologies (Cotton, 1952; Siebert, 1984; Ollier, 1988; Francis, 1983; Karátson et al., 1999; Thouret, 1999; Davidson and De Silva, 2000). L'opportunité de dater sur les volcans (géochronologie) les produits précoces et tardifs autorisent donc la contrainte sur des marqueurs identiques de ces deux types d'évènements géologiques : les périodes de construction et avec elles le dynamisme éruptif, et les périodes de démantèlement indicateur direct de l'efficacité de l'érosion au cours du temps. Ainsi, les volcans constitueraient donc des supports privilégiés pour l'étude des rapports couplant formation des reliefs et démantèlement (érosion). Très logiquement, la quantification des volumes volcaniques est un proxy privilégié pour contraindre le dynamisme magmatique sous-jacent ainsi que leur contribution à la création des reliefs. Par conséquent, une meilleure connaissance de cette dynamique éruptive pourra considérablement approfondir notre compréhension sur la formation des chaînes volcaniques, en ce qui concerne les processus géodynamiques, l'évolution du paysage et la paléogéographie.

Ce type de travail a ici été appliqué à la chaîne des Carpates Pannoniennes qui met en évidence une histoire volcanique présentant une migration spatiale assez clair, alternant phases de construction et de destruction avec la mise en place de différents matériels volcaniques (coulées de lave [activité dacitique et andésitique principalement], tufs rhyolitiques-dacitiques, dépôts ignimbritiques). L'érosion à long-terme reste ici le processus dominant dans le modelage des topographies actuelles (Karátson, 1996). Toutefois, si les facteurs d'érosion sont bien connus (Karátson, 1996; Székely and Karátson, 2004; Karátson and Timar, 2005), les taux d'érosion affectant ces édifices volcaniques le sont beaucoup moins ainsi que les facteurs qui contrôlent leur dynamique à long terme.

Longue de 1500 km de l'Autriche à la Roumanie, l'évolution des Carpates Pannoniennes est abordée dans ce travail dans sa partie roumaine et hongroise. Il s'agira respectivement de son segment volcanique le plus jeune (Călimani-Gurghiu-Harghita ou CGH ; Figure 1A), et des massifs hongrois de Börzsöny (Figure 1B), Bükk et Mátra (Figure 1C). Cet ensemble volcanique affecté par un climat tropical tempéré de type continental (Karátson, 1996; Erdei et al., 2007; Magyari et al., 2014), est constitué de tous les types pétrographiques allant

des termes ultrabasiques aux termes acides, avec l'andésite comme la variété la plus répandue (Mason et al., 1996; Seghedi et al., 2004a; Seghedi and Downes, 2011).

En domaine volcanique, l'étude efficiente des phases de construction (création des reliefs) et de destruction (érosion) nécessite une bonne compréhension de l'histoire volcanique du secteur étudié (c'est-à-dire, connaître au mieux la distribution spatiale du volcanisme et les modes d'éruptions en surface). Ainsi, pour déterminer aussi précisément que possible les taux de construction et démantèlement des reliefs volcaniques, c'est-à-dire le volume et la durée de ces phases de construction/démantèlement, nous avons eu recours dans cette étude à 3 approches principales : (1) la géochronologie afin de contraindre la durée d'activité volcanique, (2) la géomorphologique pour l'extraction des paramètres morphométriques afin de contraindre les taux de construction et d'érosion affectant les différents massifs volcaniques et enfin, (3) une approche de modélisation numérique qui a permis de reconstruire les paléo-enveloppes des volcans tels qu'ils étaient immédiatement à la fin de leur édification.

Dans un premier temps, nous avons associé de nouvelles données géochronologiques (une cinquantaine de nouvelles datations) obtenues par le chronomètre K-Ar dans le but de contraindre l'histoire volcanique par la datation absolue principalement des coulées volcaniques (Carpates Orientales (CGH), Börzsöny Mts [Carpates de l'Ouest]) et des retombés pyroclastiques (Carpates Occidentales essentiellement) par la technique unspiked K-Ar (Cassignol and Gillot, 1982; Gillot and Cornette, 1986). Ceci a apporté une contribution fondamentale à l'étude des rythmes d'évolution (chapitre IV et V) et a permis de caler de façon absolue les repères géomorphologiques définis. Par ailleurs, nous nous sommes attachés dans la plupart des cas à échantillonner et à dater les surfaces basales et sommitales des édifices volcaniques afin de pouvoir borner leur période d'activité ainsi que leur durée d'érosion. Dans un second temps, des investigations géomorphologiques et numériques nous ont permis de contraindre les taux de construction et d'érosion affectant les différents massifs volcaniques. En effet, l'étude de la morphologie des édifices, de leurs caractéristiques volcanologiques et l'analyse des directions d'épanchements ont permis d'identifier les séquences éruptives, de définir les surfaces structurales, de reconstruire numériquement les surfaces pré-érosionnelles pour ainsi quantifier les volumes construits et démantelés.

L'un des objectifs majeurs de ce travail étant de reconstruire les formes originelles des différents volcans étudiés afin de contraindre leur part de volume érodé, l'étude morpho-structurale s'est principalement basée sur l'analyse de la topographie via des Modèles Numériques de Terrain (MNT), des observations géologiques de terrain (lors des campagnes

d'échantillonnage de 2016, 2017 et 2018), de la modélisation numérique et des datations. La migration spatio-temporelle observée tout au long de la chaîne du Nord vers le Sud a permis ainsi de mieux déchiffrer les facteurs contrôlant l'érosion à long-terme et, de catégoriser sur une base purement morphologique les volcans des Carpates Pannoniennes suivant l'approche décrite par Grosse et al. (2009).

L'étude des processus de construction/érosion avaient déjà été abordé par l'équipe de volcanologie de GEOPS (université Paris-Saclay) en contexte de subduction et intraplaque sous climat tropical (Samper et al., 2007; Germa et al., 2010; Lahitte et al., 2012; Germa et al., 2015; Ricci et al., 2015a). Le présent travail vise ici à : 1) Etendre la connaissance de ces processus de construction/érosion au contexte de subduction des Carpates et ce durant les fluctuations climatiques drastiques du Miocène au Quaternaire qu'il a connu (climat chaud au Miocène puis marqué par une signature froide au Quaternaire) (Suc, 1984; Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006; Fielitz and Seghedi, 2005; Magyari et al., 2014). 2) Apporter de nouvelles contraintes en matière de taux de construction volcanique et d'érosion mécanique (physique) à long-terme car intégrés sur plusieurs ordres de grandeur de temps (de la vingtaine de milliers d'années au million d'année). Une telle variation temporelle permettrait donc d'intégrer l'influence des fluctuations climatiques, les spécificités du secteur géologique à savoir (tectonique, pétrographie et pétrologie des roches) sur les processus d'érosion. Ces éléments font de cette chaîne volcanique un très bon chantier pour une étude minutieuse de la dynamique de l'érosion (Chapitre II et V).

Pour appréhender cette double notion de construction et démantèlement, ce manuscrit s'organise en huit chapitres. Le premier est une présentation du contexte géologique des différents secteurs de la chaîne des Carpates Pannoniennes étudiés dans ce travail (Carpates orientales et occidentales). Le deuxième chapitre fait un point sur l'érosion au sens générale (altération, érosion au sens strict et dénudation), ses processus d'action, les paramètres la contrôlant, mais également les différentes méthodes visant à la quantifier. Un aperçu des études précédentes est également abordé. Le troisième chapitre présente les différentes méthodes et approches développées dans cette étude : méthodes géochronologiques (datation K-Ar sur phase séparée), géomorphologiques et numériques (modélisation des reconstructions et quantification des volumes). Les chapitres (IV [IV-1 & IV-2] et V) présentés sous forme d'articles, se focalisent respectivement sur : IV-1) les problématiques d'ordre géochronologique du plus jeune volcan de la chaîne (complexe volcanique de Ciomadul) riche en xénolites hérités ; IV-2) l'histoire éruptive et la quantification des volumes mis en jeu sur ce

très jeune volcan ; V) une étude synthétique de tous les volcans des Carpates orientales (CGH) combinant les aspects géochronologique, géomorphologique, tectonique ainsi que des corrélations des variations climatiques et érosives. Le chapitre VI est une étude menée sur la partie occidentale de la chaîne au niveau du massif de Börzsöny visant à apporter de nouvelles contraintes temporelles à ce volcanisme effusif ; et des secteurs des monts Bükk et Mátra où un intense volcanisme explosif a valeur de marqueurs stratigraphiques et tectoniques compte-tenu des contraintes paléomagnétiques dont l'on dispose. Une discussion générale sur l'évolution respective des volcans des Carpates orientales et occidentales fait la synthèse des résultats obtenus lors de cette thèse. Enfin, une conclusion générale ainsi que les perspectives à mener sont décrites dans le chapitre VIII.

Table des figures Introduction:

FIGURE 1 : A) SEGMENT VOLCANIQUE DE CALIMANI-GURGHIU- HARGHITA (CGH) DES CARPATES DE L'EST ; B) COMPLEXE VOLCANIQUE DE BÖRZSÖNY (CARPATES DE L'OUEST ; C) LES MONTS MATRA ET BÜKK (CARPATES OCCIDENTALES) 18

Chapitre I
Contexte géodynamique & Volcanologique des Carpates Pannoniennes

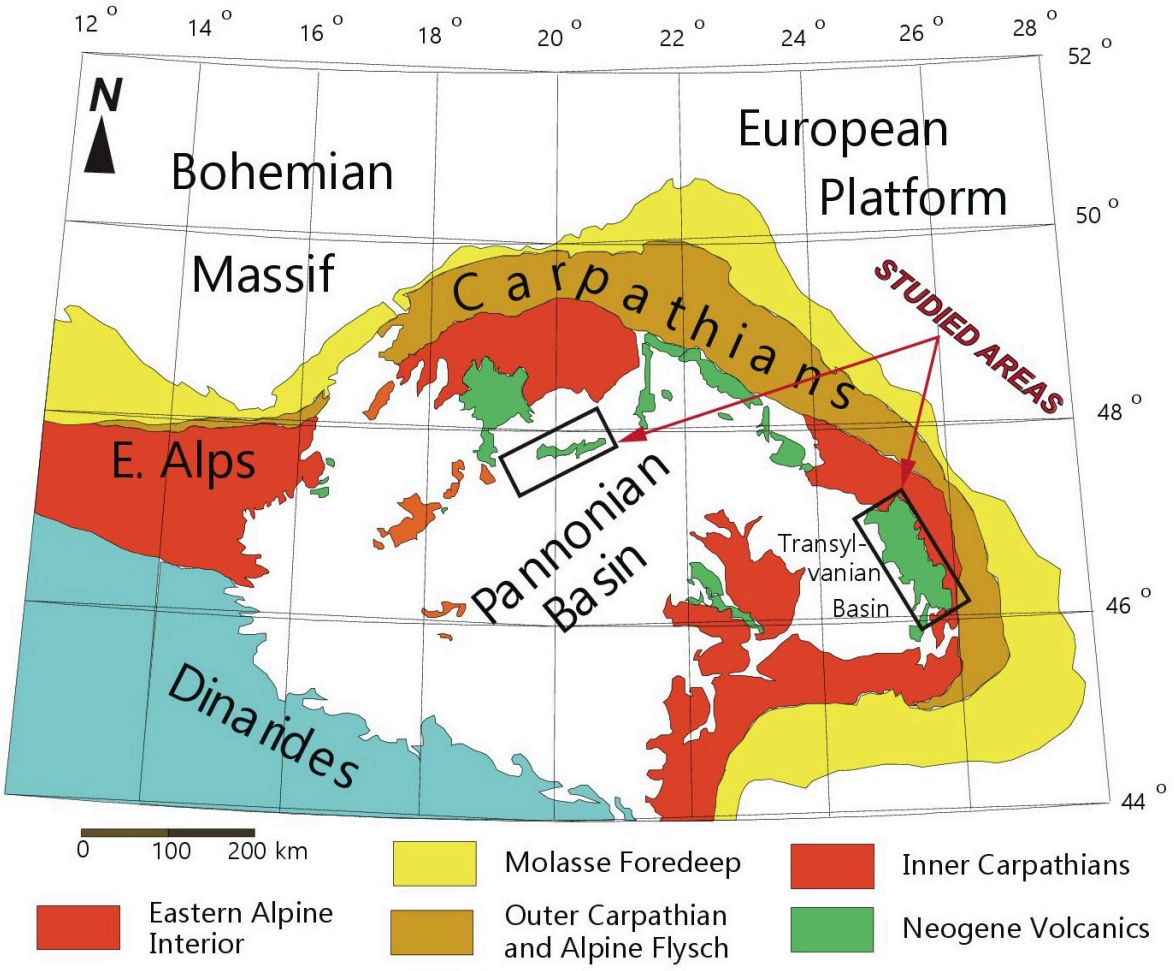


Fig. I-1: General view of Eastern Alpine-Carpathian-Pannonian Basin region (from Salters et al., 1988). Modified after (Lillie et al., 1994; Šimonová, 2017).

Dans ce chapitre, nous présentons le cadre géodynamique et volcanologique général des Carpates Pannoniennes (Carpates orientales et occidentales) puis par la suite, nous nous focalisons plus en détail sur le segment oriental de cette chaîne notamment la chaîne volcanique de Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH ; Fig. I-1, I-3). Le secteur occidental des Carpates Pannoniennes, notamment les complexes volcaniques de Börzsöny, les monts Mátra et Bükk (Fig. I-1), sera tout particulièrement abordé en seconde partie de ce chapitre sur l'aspect volcanologique et les dépôts ignimbritiques caractéristiques du secteur.

SOMMAIRE

I.1 CONTEXTE GEODYNAMIQUE ET VOLCANOLOGIQUE DE LA REGION DES CARPATES-PANNONIENNE 26
I.1.1 Contexte géodynamique général 26
I.1.2 Volcanisme général 30
I.2 LE SEGMENT ORIENTAL DES CARPATES PANNONIENNE 33
I.2.1 Pétrographie 34
I.2.2 La chaîne volcanique Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH): aspects géodynamiques, caractéristiques générales et volcanologiques 36
I.2.2.1 Aspects géodynamiques 36
I.2.2.2 Caractéristiques générales 38
I.2.2.3 Caractéristiques volcanologiques 42
I.2.2.3.1 Edifices Volcaniques majeurs par secteur : 46
I.2.2.3.1.1 Secteur de Călimani 46
I.2.2.3.1.2 Secteur de Gurghiu 48
I.2.2.3.1.3 Secteur Harghita du Nord 50
I.2.2.3.1.4 Secteur Harghita du Sud 51
I.3 LE SEGMENT OCCIDENTAL DES CARPATES PANNONIENNE 54
I.3.1 Champ volcanique de Bükkalja (les monts Bükk et Mátra) 55
I.3.1.1 Contexte géologique 55
I.3.1.2 Caractéristiques pétrologiques des unités majeures 57
I.3.2 Le complexe de Börzsöny 60
I.3.2.1 Contexte géologique 60

I.1 Contexte géodynamique et volcanologique de la région des Carpates-Pannonienne

I.1.1 Contexte géodynamique général

Le travail présenté dans ce mémoire porte sur l'étude de la dynamique de l'érosion affectant le volcanisme Néogène-Plio/Quaternaire des Carpates Pannoniennes. Cette région constitue une partie de la chaîne des Carpates, formée à partir de la fin de l'oligocène (~24 Ma (Seghedi et al., 2004a; Kovács et Szabó 2008), lors de l'orogenèse alpine (Fig. I-2). La chaîne des Carpates Pannoniennes se trouve d'une part à la bordure nord du bassin pannonien (cas des Carpates occidentales) et, entre le bassin de Transylvanie à l'ouest et le flysch Carpathique à l'est (cas des Carpates orientales) (Fig. I-3). La chaîne des Carpates peut être vue comme le prolongement oriental des Alpes, toutes deux se sont formées suite à la convergence entre le continent Africain et le continent Européen durant la fermeture de l'océan Téthys (Fig. I-2).

Les Carpates forment donc une chaîne orogénique incurvée en Europe centrale et orientale, s'étendant sur plus de 1500 km entre les Alpes orientales et les Balkans traversant différents pays tels que la République Tchèque (la Bohême orientale), le sud de la Pologne, la Slovaquie, le nord de la Hongrie, le sud de l'Ukraine, l'ouest de la Roumanie et la Serbie (Fig. I-2 et Fig. I-3). Sa forme actuelle a vu le jour durant le tertiaire, à la suite des mécanismes de subduction d'une part, et de la convergence de deux blocs continentaux avec le continent Européen (Rădulescu and Săndulescu, 1973; Csontos, 1995; Seghedi, 1995; Mason et al., 1996; Seghedi et al., 2004b; Seghedi et al., 2005a).

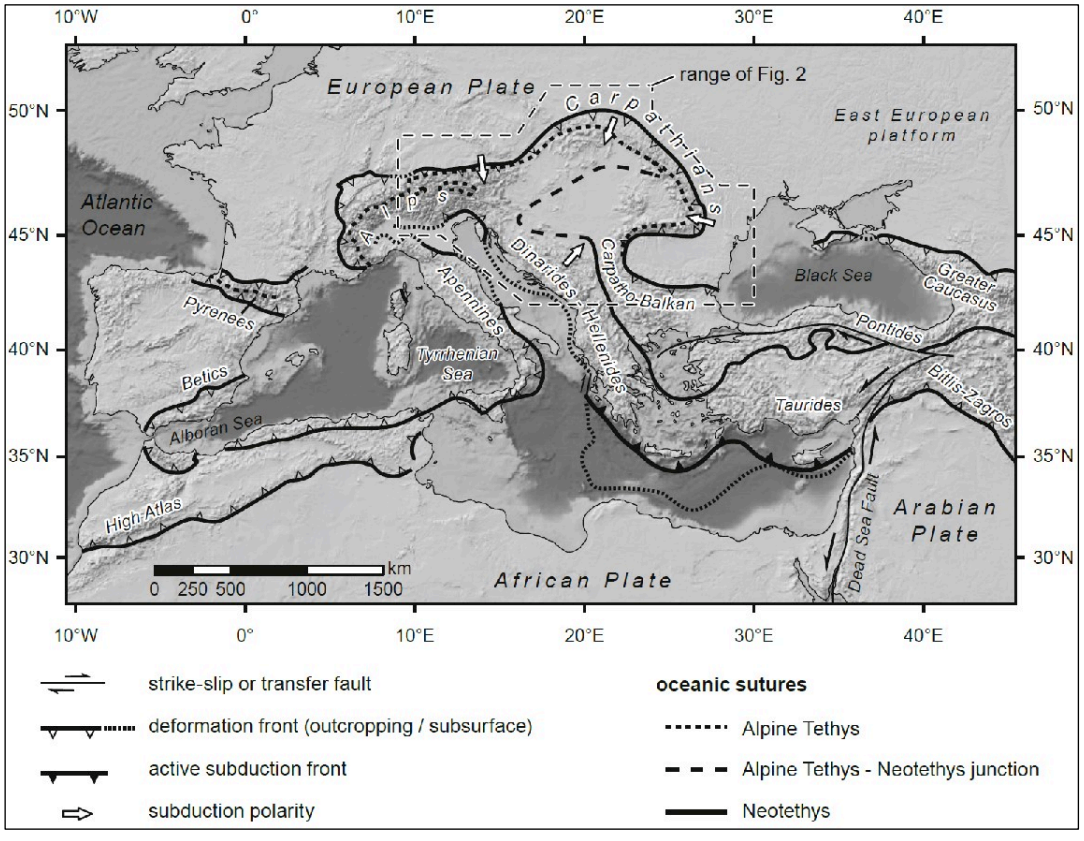


Fig. I-2: Overview of the circum-Mediterranean orogenic belt with the positions of present-day deformation fronts and subduction zones (modified after Cavazza et al. 2004). Traces of oceanic sutures in the Eastern Mediterranean are modified after (Stampfli and Borel, 2004), in the Alps, Carpathians and Dinarides after (Schmid et al., 2004, 2008), in the Pyrenees after (Dewey et al., 1973). Topography and bathymetry are from the ETOPO5 dataset (NOAA, 1988). Continental shelf areas are light grey (less than 2000 m water depth); areas of thinned continental or oceanic crust are dark grey (greater than 2000 m water depth). From (Ustaszewski et al., 2008)

Cette zone a été largement étudiée du point de vue géologique, géochimique et géophysique depuis plus d'un siècle et, il existe donc une quantité d'informations et de données assez importantes. Les bases de la compréhension de la géologie du secteur ont été la reconnaissance par Lugeon (1903) des structures en nappes formant les Carpates et l'interprétation des décrochements cénozoïques des bassins de flysch (flysh carpatique) sur le craton ou la plateforme Est-Européenne par Uhlig (1907). Les termes "diapir" et "diapirisme" sont introduits pour la première fois par Mrazec (1915), pour décrire des plis à noyau salifère perçant (pli-diapir) observés dans les Carpates. La première mise en relation entre le volcanisme Néogène des Carpates de l'Est et la subduction de la croûte continentale fut établis par Stille (1953). Par la suite, Roman (1970) identifia la subduction océanique au Sud des Carpates. Maheľ and Zárubová. (1974) ont réalisés une première carte tectonique des Carpates et des Balkans encore utilisée de nos jours. Burchfiel, (1980) mis en évidence la relation étroite qui lie l'évolution dynamique de l'Est des Alpes, des Carpates et du bassin pannonien. Enfin, toutes ces différentes études ont été synthétisées et publiées sous forme de synthèse de la géologie de la Roumanie par (Săndulescu, 1984).

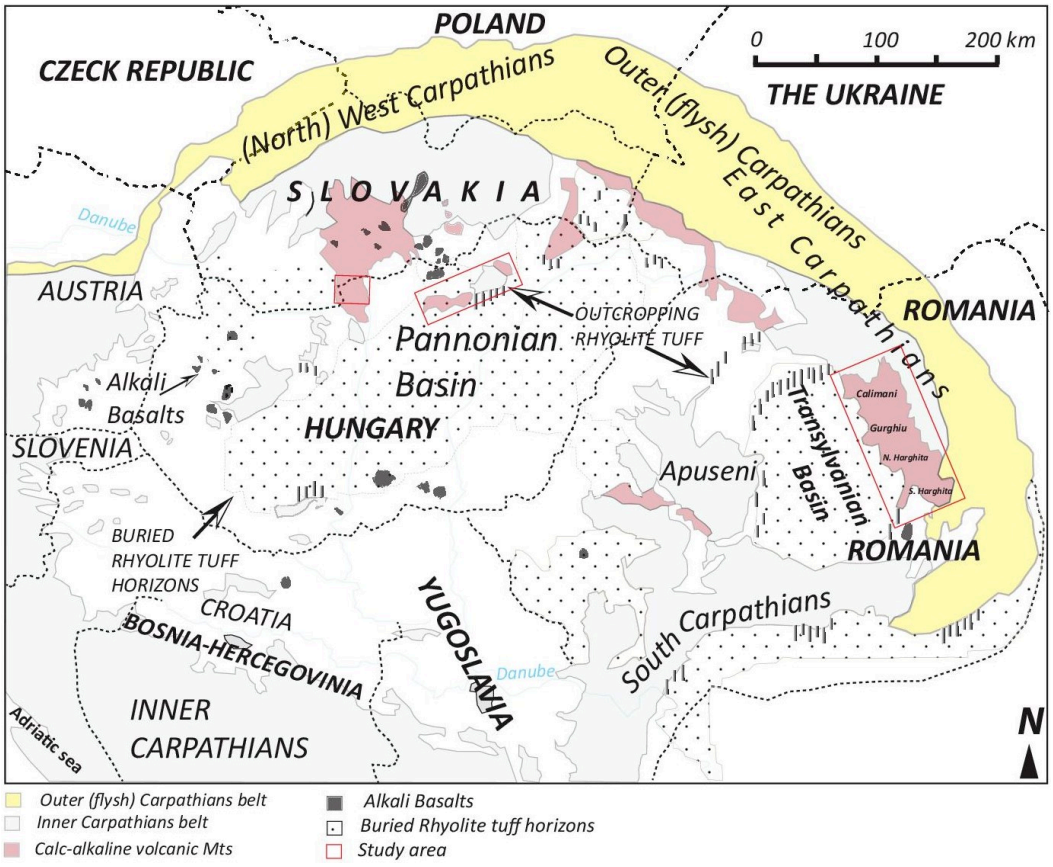


Fig. I-3: vue globale des Carpates pannoniennes. Modifiée selon (Karátson and Németh, 2001)

Au cours des 3 dernières décennies, des études de plus en plus poussées n'ont cessé d'être menées sur ladite chaîne, utilisant d'ailleurs de nouveaux outils (tomographie, modèles numériques de terrains de haute résolution (en utilisant les SIG [Systèmes d'Information Géographiques], nouvelles techniques de datation de plus en plus précises), concepts et techniques pour analyser les évolutions de la chaîne. Malgré les outils de plus en plus sophistiqués, de nombreux modèles concernant l'explication de la géométrie actuelle et l'histoire géologique des Carpates sont encore âprement débattus. Il est néanmoins validé que la géométrie de la région reflète les marges continentales de l'avant-pays Européen préexistant (Zweigel, 1997). Dans l'ensemble, ce système orogénique qui montre une évolution assez complexe est composée de nombreuses unités et des blocs ayant des relations diamétralement complexes et opposées dans l'espace et le temps (Csontos and Vörös, 2004; Schmid et al., 2008; Ustaszewski et al., 2008). Cette évolution au fil du temps peut être brièvement résumée en quatre phases majeures :

— (1) Au début du Miocène (~24 Ma), des mouvements de convexions et de rotations de sens opposé ont eu lieu entre deux petits blocs continentaux. Le bloc Alcapa, situé au nord de la ceinture Hongroise ("MidHugarian lineament") (Fig. I- 4) a subi un mouvement de rotation anti-horaire (Márton and Márton, 1996; Márton et al., 2000), alors que le bloc Tisza (encore appelé Tisza-Dacia) (Csontos et al., 1992; Csontos, 1995) plus au sud subi quant à lui une rotation horaire (Panaiotu et al., 1994; Panaiotu, 1998) (Fig. I- 4).

— (2) Du Miocène inférieur à moyen (24–16,5 Ma), l'évolution tectonique de la chaîne est caractérisée par des mouvements de translation du Nord-Est vers l'Est des deux blocs (Alcapa et Tisza) et par la collision du bloc Alcapa avec le continent Européen, Ce qui a généré des contractions de grande échelle dans la partie Nord des Carpates (Royden, 1988; Sandulescu, 1988; Horváth, 1993) ainsi qu'une extension connexe arrière-arc dans le bassin Pannonien Royden (1988) (Fig. I- 4). D'ailleurs, la genèse des structures complexes dans le bassin Pannonien et dans les Alpes est aussi liée à cet événement.

— (3) Au Miocène moyen (16,5–11 Ma), la chaîne est marquée par un nouveau changement de direction du mouvement de ces deux blocs (Meulenkamp et al., 1996) avec la collision du bloc Tisza et la fin des processus de subduction en raison de l'introduction dans le système de déformation de la plate-forme Est-Européenne (Matenco et al., 1997; Zweigel, 1997) (Fig. I- 4). Cette période coïncide aussi avec un rapide mouvement de rotation du bloc de Tisza d'environ ~70 ° entre 14,5 et 12 Ma (Panaiotu, 1999) tandis que, à cette même période, seule la partie Nord-Est du bloc Alcapa (au niveau de la zone de Zemplin), subit un mouvement de

rotation continue et plus rigide dans le sens antihoraire de 20 ° à 50 ° (Panaiotu, 1998; Márton et al., 2000). Au cours de cette période, on note aussi une progression de la déformation vers l'Est.

— (4) Au cours de la période 11–5 Ma aucun événement tectonique majeur n'est observé si ce n'est la mise en place des structures volcaniques sur la partie orientale des Carpates (à l'est du bassin de Transylvanie). Par contre, au cours du Pliocène (5 Ma), la partie méridionale des Carpates orientales, subi un changement de configuration du champ de contraintes passant d'une configuration de direction NNE – SSW à une compression dorénavant Nord–Sud (Mason et al., 1998; Matenco and Bertotti, 2000). Dans le secteur SSE de sa partie interne, le mouvement des Carpates s'accompagne d'une extension mineure (Gîrbacea, 1997; Ciulavu, 1999).

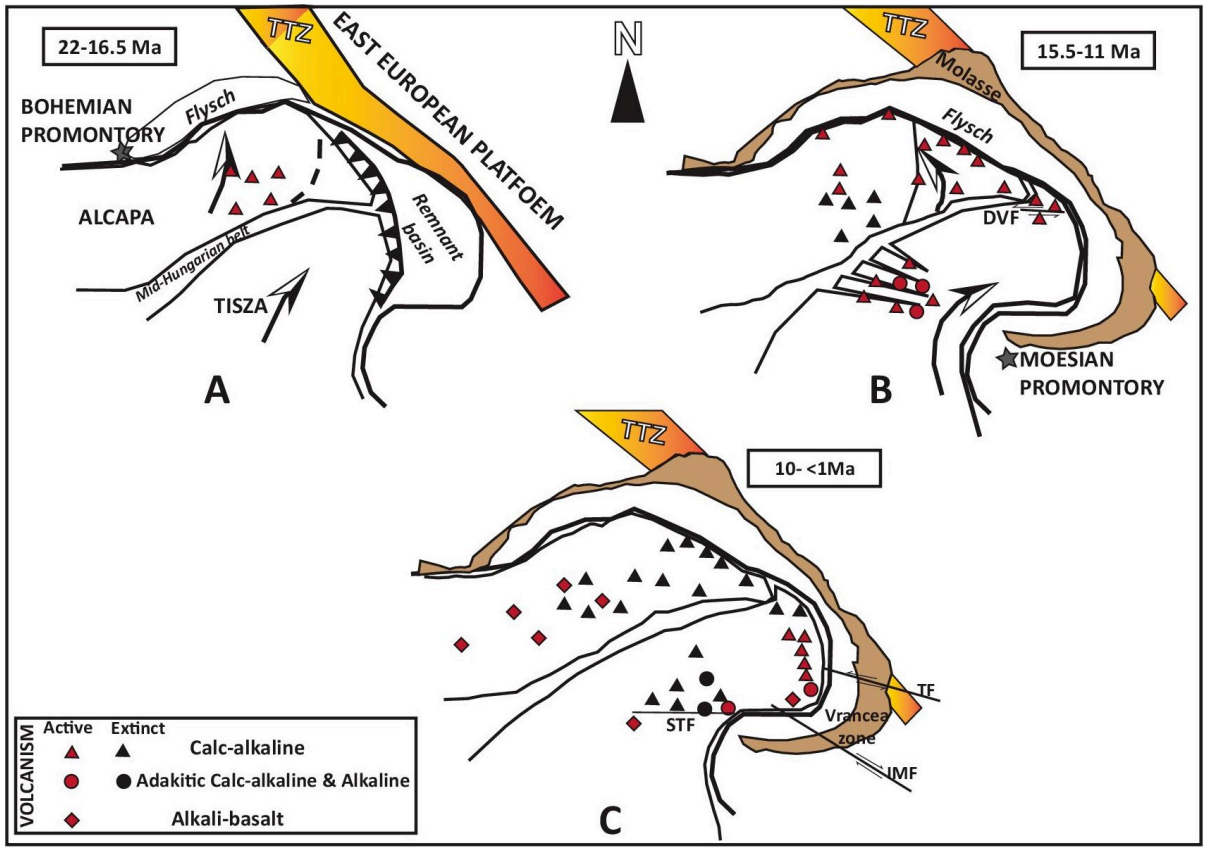


Fig. I- 4: Phases de l'évolution géodynamique de la chaîne des Carpates Pannoniennes : modifié d'après Seghedi et al. (2004a)

Tous ces mouvements et leur cinématique de rotation ont été confirmés par des données paléomagnétiques (Krs et al., 1996; Márton and Márton, 1996; Márton et al., 2000). En règle générale, les phénomènes évoqués, et encore débattus, pour expliquer l'évolution géodynamique et volcanique de cette région sont une subduction classique (Wortel and Spakman, 2000; Gvirtzman, 2002) parfois associée à un retrait et un détachement du slab (Mason et al., 1998; Seghedi and Downes, 2011) et/ou une délamination de croûte continentale (Chalot-Prat and Gîrbacea, 2000; Knapp et al., 2005). Ces auteurs s'appuient sur des données

gravimétriques, sismiques et géochimiques. Par exemple, sur la base des études de géophysique sismique, on a pu observer une anomalie de vitesses lors de la propagation des ondes de type « S » dans le manteau entre 400 et 650 km de profondeur sous la région des Carpates Pannoniennes et, interprétée comme étant la lithosphère subduite qui s'est enfoncée dans le manteau à la suite du détachement du slab le long de l'arc des Carpates (Wortel and Spakman, 2000; Sperner et al., 2001).

Pour synthétiser cette évolution, la Fig. I-5 représente l'ébauche de l'évolution géodynamique du système de la chaîne des Carpates et du bassin Pannonien durant la fin du Cénozoïque. Ce modèle de Cloetingh et al. (2005) fait une synthèse de l'évolution de la chaîne et, représente la subduction et le retrait du slab qui est stoppé au fur et à mesure du détachement et de la fragmentation progressive de la croûte plongeante. On peut ainsi clairement observer sur cette figure (Fig. I-5) la représentation des mouvements verticaux et latéraux de la croûte ainsi que l'amincissement crustal en plein cœur du bassin Pannonien accompagné de remontée asthénosphérique permettant de maintenir un flux thermique relativement important dans le bassin.

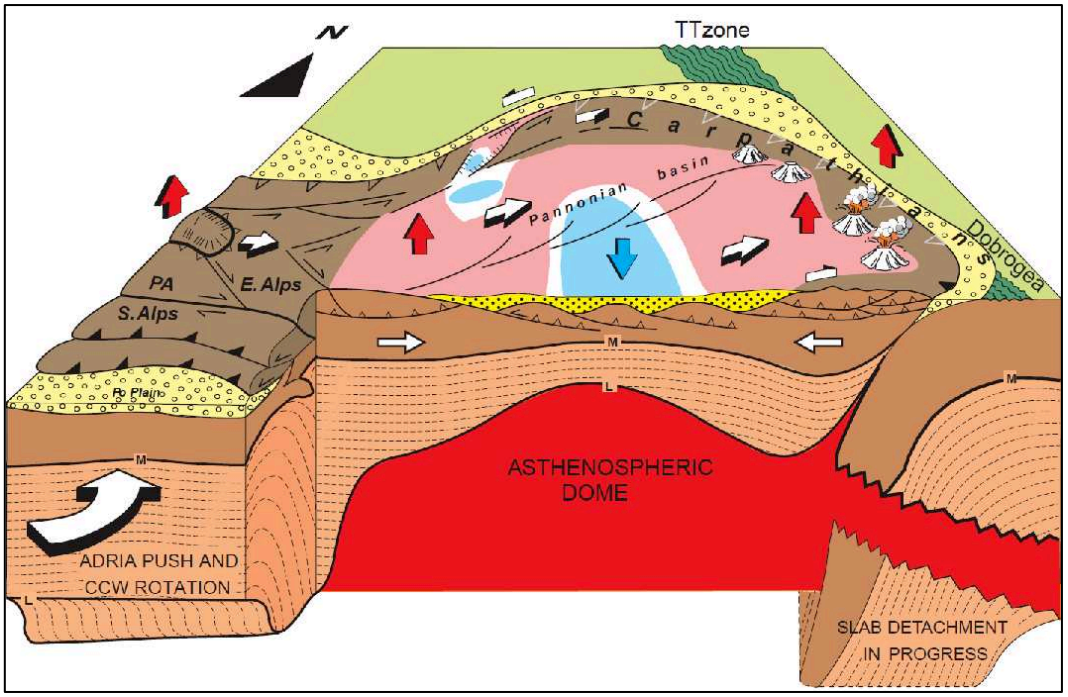


Fig. I-5: Scenario d'évolution de la chaîne et volcanisme à la fin du cénozoïque d'après Cloetingh et al. (2005)

I.1.2 Volcanisme général

Le volcanisme résultant du contexte géodynamique particulier de cette chaîne s'est donc distribué au fil du temps le long de trois principaux segments (occidental, oriental, méridional; Seghedi et al., 2004) soit sous forme de grandes formations volcaniques visibles au sein des segments eux-mêmes (Fig. I-3) ou en bordure des bassins sédimentaires pannoniens (Börzsöny-Visegrád, les monts Bükk et Mátra; Fig. I-3 et I-6A), soit alors enfoui sous les sédiments

ultérieurs (au niveau de la grande plaine de Hongrie). En particulier, sur le segment occidental et sa zone arrière-arc ainsi que sur le segment central (Carpates orientales, bassin de Transylvanie et les Monts Apuseni, Fig. I-3 et I-6A), une importante activité calco-alcaline explosive feldspathique a eu lieu à partir de calderas, désormais en partie comblée, ayant produit de larges horizons de tufs comme les massifs de Mátra et Bükk (Karátson and Németh, 2001; Fig. I-3 et I-6A). Ce volcanisme fut contemporain et/ou suivi d'un volcanisme plus différencié formant un ensemble de volcans composites et de dômes de lave comme les Monts Börzsöny-Visegrád ; Karátson et al., 2000) et par la suite, d'un volcanisme générant des basaltes alcalins, de faible volume.

En général, l'évolution temporelle du volcanisme des Carpates est corrélée aux différentes phases et événements tectoniques ayant été enregistrés dans le secteur (Fig. I-6A et I-6B; Harangi and Lenkey, 2007; Seghedi and Downes, 2011). Il a débuté par la mise en place des tufs calco-alcalin feldspathiques entre 17-11 Ma dans les Carpates Nord-Ouest en partie synchrones des massifs calco-alcalins intermédiaires (17-8 Ma) ; tandis que, dans la partie centrale de la chaîne (des Carpates Nord-Est au Monts Apuseni), s'est mise en place simultanément à la phase de collision, des tufs feldspathiques (~15-14 Ma) et les produits volcaniques intermédiaires (~15-8 Ma). Enfin, dans les Carpates Orientales (Fig. I-3), le volcanisme intermédiaire (post-collision) montre une progression spatiale bien définie de 10.6 à < 1 Ma du Nord-Ouest au Sud-Est avec un magmatisme semblant être dans une phase de déclin. Cependant, les éruptions volcaniques récentes (< 200 ka) indiquent que ce dernier secteur reste actif ; d'ailleurs, l'activité volcanique la plus récente a été mise en évidence dans ce secteur au niveau du complexe volcanique de Ciomadul (Csomád) (c sur la Fig. I-6A) par les études antérieures (Pécskay et al., 1995, 2006; Karátson et al., 2013) et plus récemment dans le cadre de ce travail (Karátson et al., 2019; Lahitte et al., 2019).

La chaîne volcanique des Carpates Pannoniennes présente donc de fait une large variation compositionnelle de roches allant des termes acides jusqu'aux termes ultrabasiques selon leur disposition géographique le long des différents secteurs de cette chaîne (Fig. I-6A et Fig. I-7).

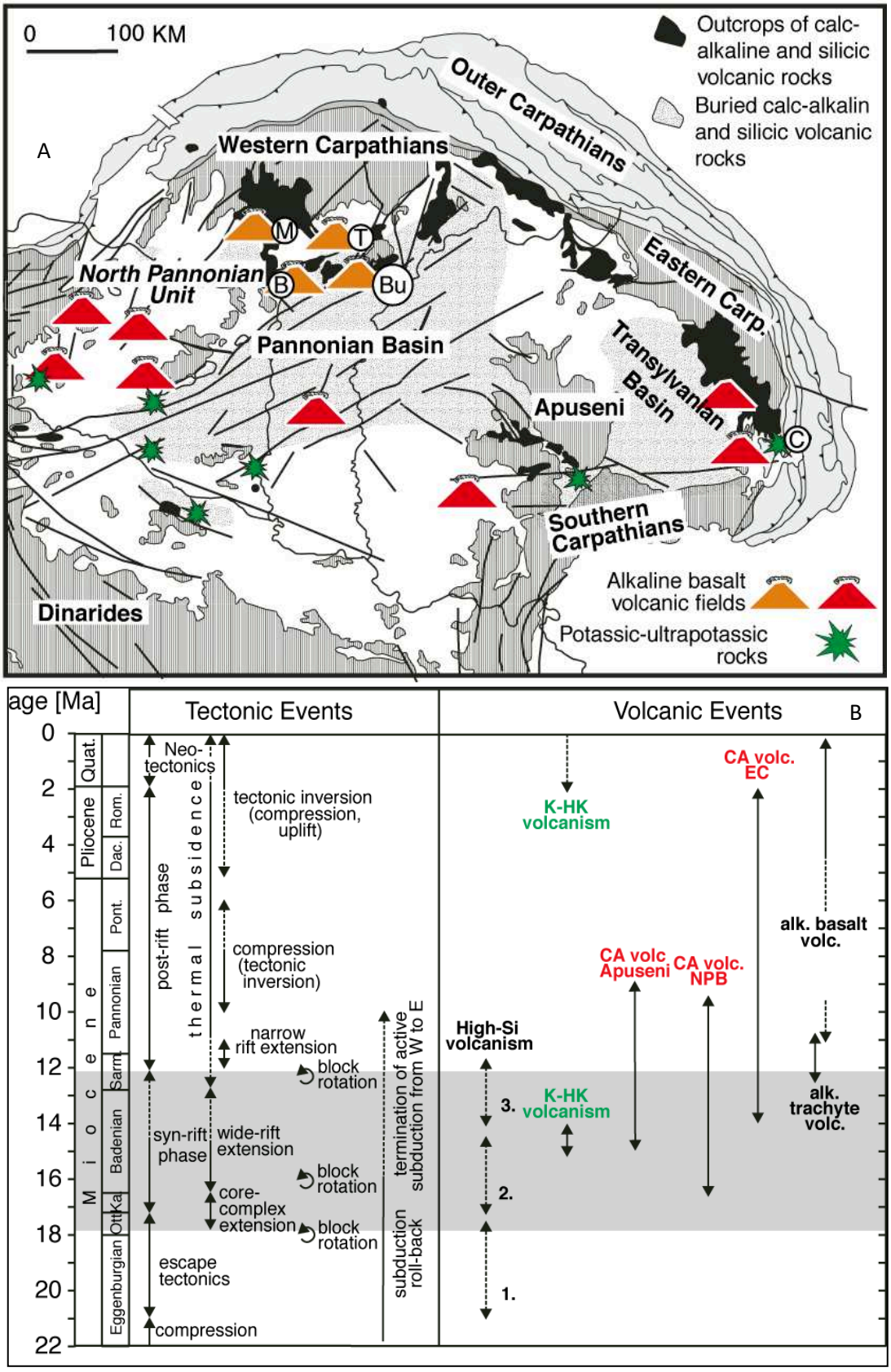


Fig. I-6: A : volcanisme et affinité le long de la chaîne ; B: corrélation volcanisme et évènements tectoniques majeurs selon (Harangi and Lenkey, 2007)

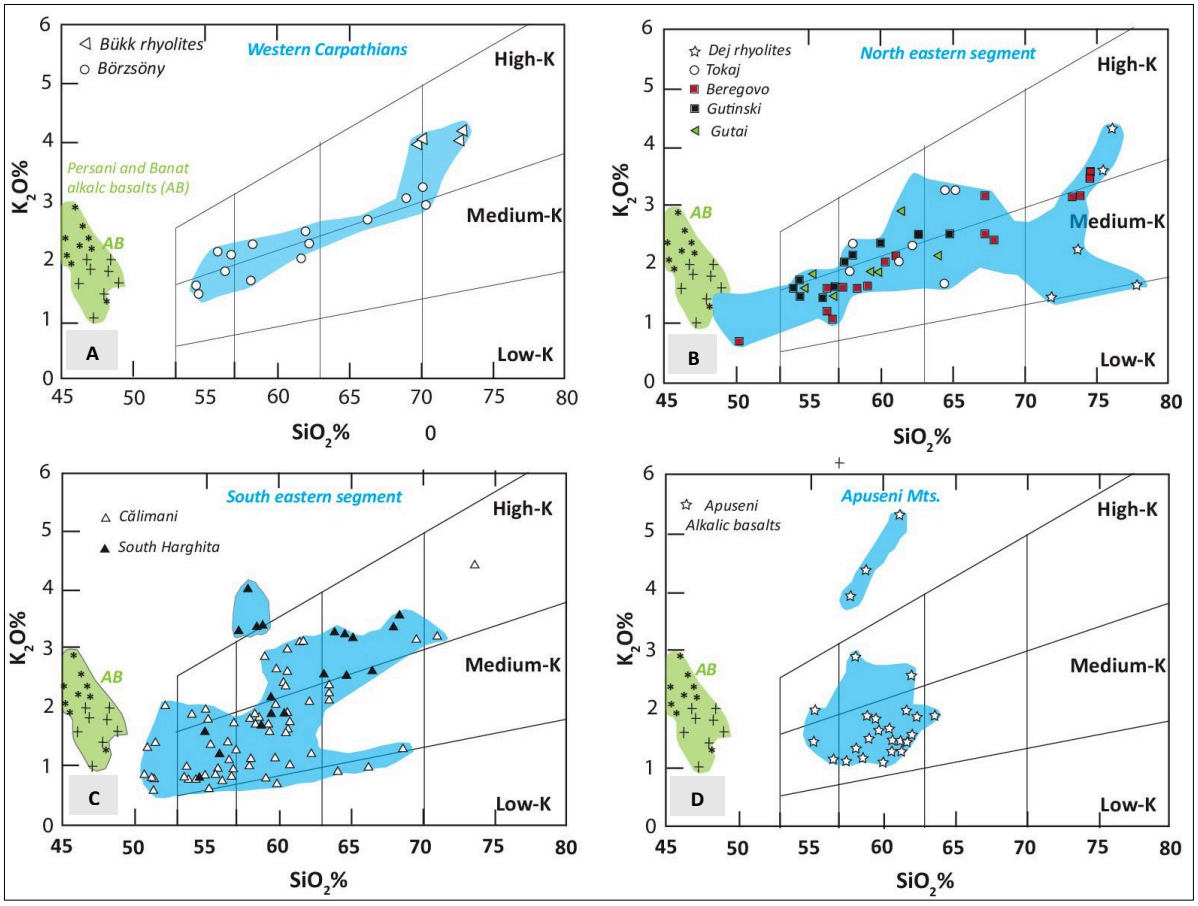


Fig. I-7: A, B, C, D ; diagramme SiO_2 vs K_2O données modifiés d'après (Seghedi, 2004) for Carpathians–Pannonian region volcanic rocks; Symbols: A: Western Carpathians: 1—Bükk rhyolites; 2—Börzsöny; B : North Eastern Segment: Dej rhyolites; Tokaj; Beregovo; Gutinski; Gutâi; C : South-Eastern Segment: Călimani; South Harghita; d : Apuseni Mts: Apuseni; Alkalic basalts (AB): [Perşani and Banat alkalic basalts; Little Hungarian Plain, Balaton and Nógrád –Novohrad alkalic basalts]. Data from Salters et al. (1988), Embey-Isztin et al. (1993), Dobosi et al. (1995), Downes et al. (1995a, b), Harangi et al. (1995, 2001), Mason et al. (1996), Seghedi et al. (2001)

I.2 Le segment oriental des Carpates Pannoniennes

Le premier modèle d'évolution spatio-temporelle du volcanisme Néogène-Quaternaire dans la région des Carpates Pannoniennes orientale (Roumanie) a été présenté par (Pécskay et al. (1995a, b) et mis à jour ultérieurement par (Seghedi et al., 2004b; Seghedi et al., 2005; Pécskay et al., 2006). Depuis lors, la base de données géochronologiques a été continuellement enrichie de nouvelles données avec des chronomètres différents tels que : la thermoluminescence, paléomagnétisme, radiocarbone, K-Ar, $^{40}Ar/^{39}Ar$ et (U-Th) /He (Panaiotu et al., 2012; Karátson et al., 2013; Molnar et al., 2018, 2019). Alors que les premières activités volcaniques Néogènes dans les Carpates orientales (Fig. I-8) datent d'environ 15 Ma (au niveau des bassins de Gutâi et de la Transylvanie Fig. I-3), la majeure partie de l'activité magmatique de la région a eu lieu entre 14 Ma et < 1Ma respectivement dans les secteurs volcaniques des monts Apuseni, Gutâi jusqu'au niveau du secteur Harghita du Sud (Fig. I-8) montrant une migration globale du volcanisme du Nord vers le Sud comme observé à grande échelle sur toute la chaîne des Carpates Pannoniennes. La progression d'âge la plus importante des Carpates s'est

produite le long de ce segment volcanique (Carpates orientales) où l'on rencontre l'activité volcanique la plus récente (au niveau du segment volcanique de Calimani-Gurghiu-Harghita ; CGH).

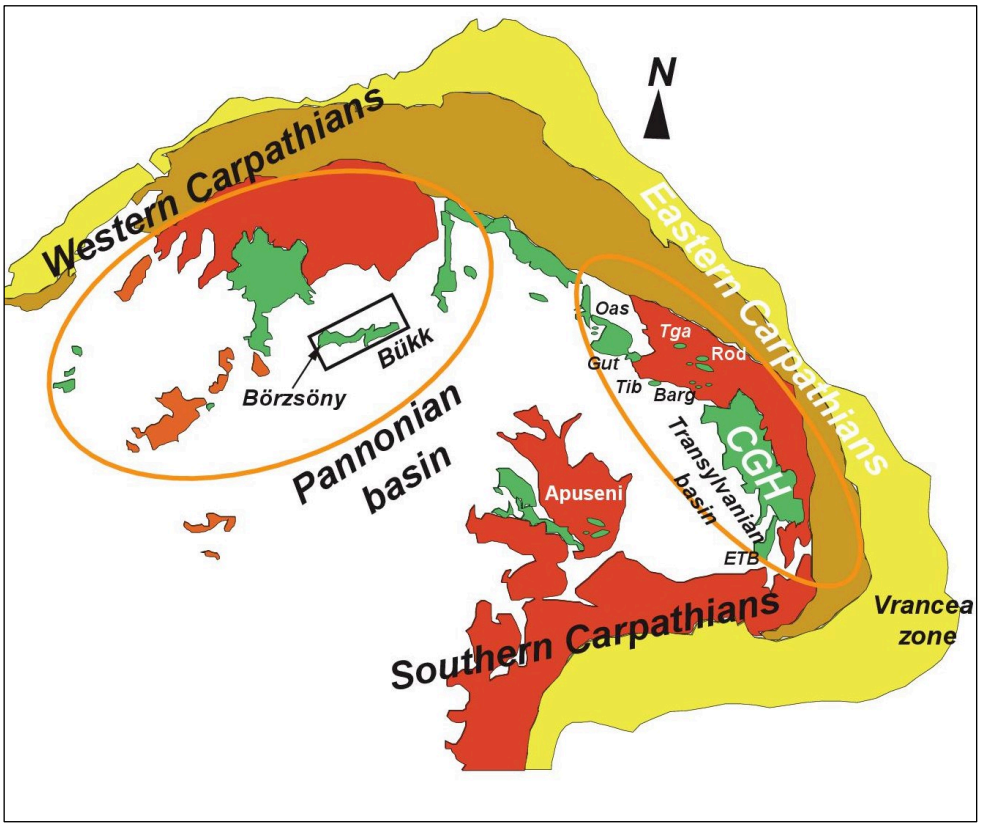


Fig. I-8: Carpathian range with available volcanic areas modified after Lillie et al. (1994). Legend is the same as (Fig. I-1)

I.2.1 Pétrographie

Les formes volcaniques calco-alcalines dominées par les andésites (volcans composites, volcans-boucliers, dômes et complexes de dômes générés dans des conditions subaériennes) se rencontrent au niveau de plusieurs zones discontinues le long des Carpates orientales : (1) le segment Oas-Gutâi (Oas-Gut; Fig. I-8) dans le bassin de Transcarpathie, (2) le segment Toroiaga-Tibles-Rodna-Bargau (Tga-Tib-Rod-Barg ; Fig. I-8), dans la partie nord du bassin de Transylvanie, et, (3) le segment Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH), dans la partie orientale du bassin de Transylvanie (Seghedi et al., 2004b; Seghedi and Downes, 2011) représentant le segment volcanique le plus long de toute la chaîne des Carpates Pannoniennes (Fig. I-8). Quelques kilomètres au sud de Harghita du sud (SH), Deux petits corps magmatiques shoshonitique (K-alcalin) se trouvent à Bixad (Murgul Mic Hill) et à Malnaş (Luget Hill) (Seghedi et al. (1987) ; au niveau de ETB sur la Fig. I-8).

Dans les diagrammes classiques SiO_2 vs K_2O ou TAS (Peccerillo and Taylor, 1976; Bas et al., 1986), on distingue donc 5 groupes pétrographiquement et géochimiquement différents le long

de ce segment (Fig. I-9), associés à des types d'activités volcaniques différents à grande échelle allant du Néogène au Quaternaire à savoir :

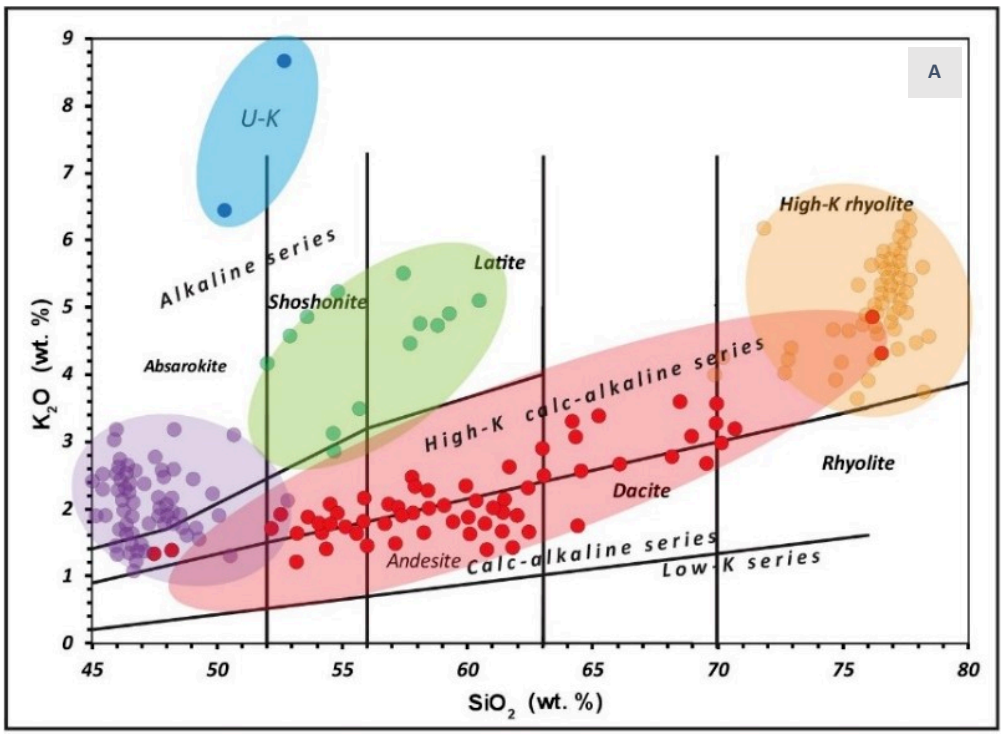
— 1) un volcanisme explosif calco-alcalin feldspathique au Miocène caractérisé par des séquences de tuf rhyolitiques primaires réparties sur de vastes zones du bassin de Transylvanie et des bassins extérieurs de Molasse du Miocène des Carpates (secteur orange sur la Fig. I-9A & B). Leur origine reste encore jusqu'ici inconnue, mais des lithologies plus proches de la source, telles que les tabliers volcanoclastiques (dépôts de débris d'avalanche) et des dépôts ignimbritiques, sont rencontrées dans le Nord-Ouest de la Transylvanie (Szakács et al., 2012).

— 2) un volcanisme calco-alcalin intermédiaire du Miocène au Pléistocène (secteur rouge sur la Fig. I-9A & B) caractérisé quant à lui par diverses formes et structures volcaniques (Szakács and Seghedi, 1995, 2000; Seghedi Ioan et al., 2010).

— 3) un volcanisme shoshonitique (K-alcalin ; secteur vert Fig. I-9A & B) Pliocène développé à quelques kilomètres au sud de Harghita du sud (SH) Seghedi et al. (1987).

— 4) un volcanisme effusif générant des basaltes alcalins (Na-alcalin ; secteur violet sur Fig. I-9A & B) au Pliocène/Pléistocène au niveau de Perşani (ETB) et représenté par les maars, les cônes de scories et les laves associées (Seghedi et al., 2016).

— 5) un volcanisme ultra-potassique Pléistocène (secteur bleu Fig. I-9A & B) caractérisé par des laves ultra potassiques isolées provenant d'un volcan bouclier de petite taille (Banat) au Sud-ouest de Perşani (Seghedi et al., 2010).



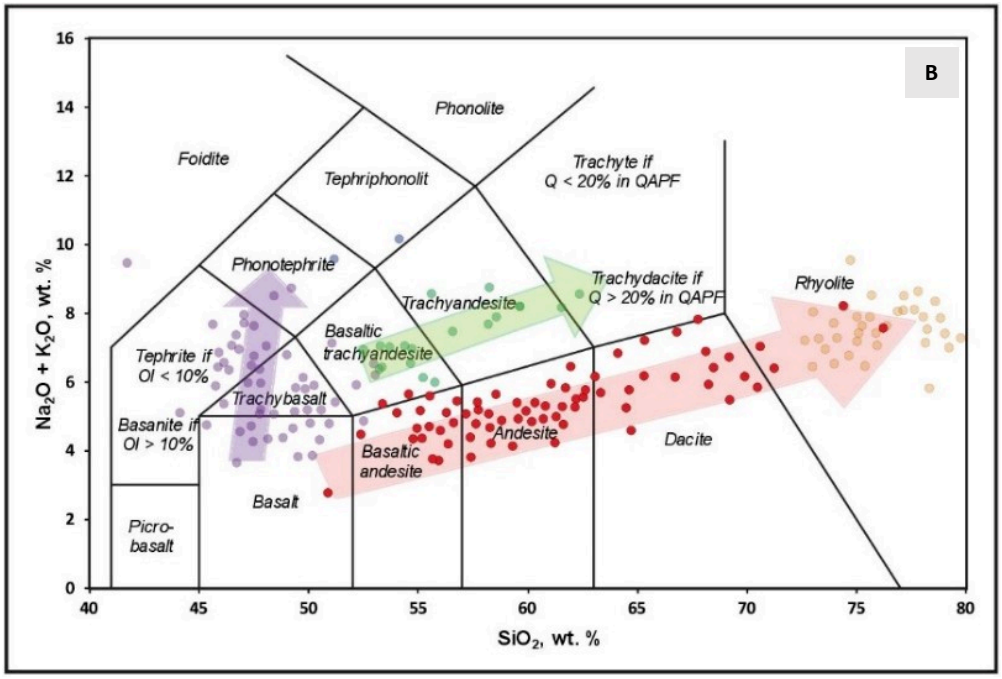


Fig. I-9: A ; diagramme SiO_2 vs. K_2O (Peccerillo and Taylor, 1976) des roches des Carpates orientales, B; SiO_2 vs K_20+Na_2O (Bas et al., 1986) modifiés d'après (Seghedi and Downes, 2011)

I.2.2 La chaîne volcanique Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH): aspects géodynamiques, caractéristiques générales et volcanologiques

I.2.2.1 Aspects géodynamiques

Le segment volcanique de Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH) est une chaîne volcanique post-collision typique qui s'élève morphologiquement au-dessus du bassin Transylvanien oriental et, à l'exception de sa terminaison sud (Szakács et al., 1993), elle est presque parallèle à la ceinture orogénique des Carpates orientales (Fig. I-10a). Sa génération découle de la poussée vers l'Est du bloc Tisza, qui s'est amarrée à l'intérieur des plateformes Européennes au cours du Miocène (Matenco et al., 2010; Fig. I-10b) par un empilement du système de nappes des Carpates orientales lié à la collision (Matenco and Bertotti, 2000). Après la collision et la propagation progressive de ce magmatisme, les limites de plaques ont été plus ou moins scellées. Après le principal événement de collision, les déformations se poursuivent en raison d'un plissement crustal et/ou lithosphérique (Cloetingh and Burov, 2011), d'une rééquilibration thermique (Toussaint et al., 2004) ou d'une destruction par érosion (Sanders et al., 2001). Une carte simplifiée (Fig. I-10a) et une coupe transversale de la lithosphère Fig. I-10a, b) montrent l'emplacement où le magmatisme post-collisionnel traverse à la fois la plaque inférieure et la plaque supérieure. Ainsi, un soulèvement de surface sur la plaque dominante est observé ; par exemple, dans le bassin Tisza-Dacia Transylvanien (Matenco et al., 2010). Cela suggère la subduction d'un matériau continental flottant et sa compensation isostatique (Bottrill et al., 2012). Au nord donc, la collision oblique a été compensée par une exhumation orogénique d'environ 6 km (Gröger et al., 2008), tandis qu'au sud de la chaîne, elle a été associée à un

faible soulèvement (Sanders et al., 1999) et à un affaissement d'avant-arc (subsidence) permettant l'accumulation des sédiments Quaternaires d'une épaisseur pouvant atteindre jusqu'à 6 km dans le bassin de Focşani (Tărăpoancă et al., 2003).

Ce magmatisme est en partie supposé être associé à une remontée asthénosphérique, expliquée par une rupture progressive du slab au Miocène (Fig. I-5 et Fig. I-10a, b) (Mason et al., 1998; Seghedi et al., 1998), comme suggéré par le flux de chaleur actuel assez élevé dans la zone volcanique (Tari et al., 1999; Demetrescu et al., 2001). La migration le long du segment du volcanisme serait la conséquence du détachement progressif du slab après la phase de subduction oblique (Mason et al., 1998; Seghedi et al., 1998; Wortel and Spakman, 2000). Les variations pétrologiques observées le long de ce segment volcanique (Szakács et al., 1993; Seghedi et al., 2004b; Seghedi et al., 2005a) ont été expliquées par des différences de rhéologie de l'avant-pays entre les plates-formes Est-Européenne et Scythienne au nord, et au sud, par la plate-forme Moesienne, séparée par la faille de Trotuş (TF ; Fig. I-10a; Cloetingh et al., 2004).

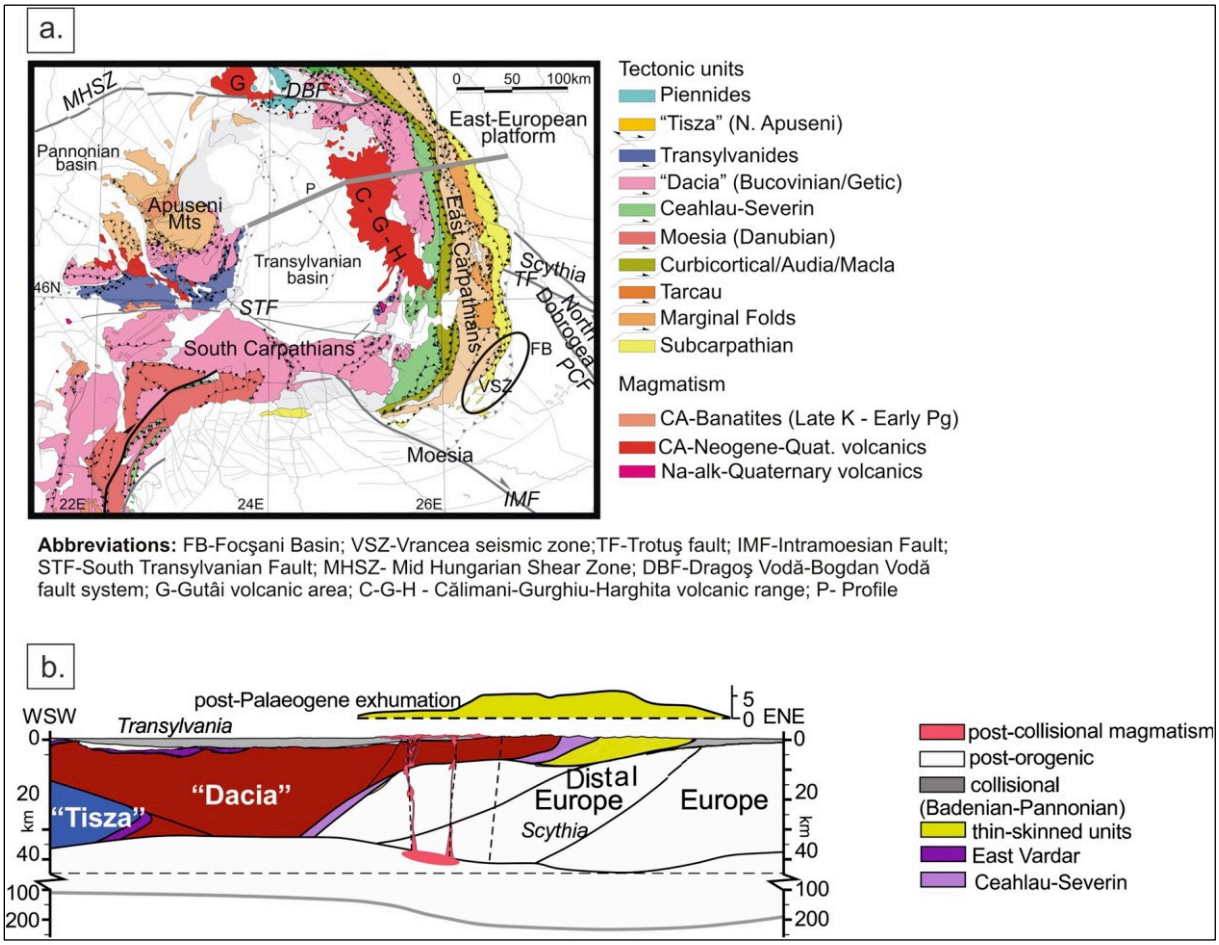


Fig. I-10: (a) Location of the Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH) volcanic range within the tectonic map of the Eastern Carpathians (compiled from Matenco et al., 2010; Săndulescu, 1984; Schmid et al., 2008). (b) Interpretative cross-sections through the post-collisional environment of the CGH, including magmatic system (after Seghedi et al.,2019).

I.2.2.2 Caractéristiques générales

Le segment volcanique CGH est le plus jeune et le plus méridional de toutes les Carpates. Long d'environ 160 km, il se subdivise géographiquement en quatre secteurs : Călimani, Gurghiu, Harghita du Nord et Harghita du Sud (Fig. I-11). L'histoire volcanique du segment dure depuis environ 11 Ma, du Pannonien au Pléistocène supérieur, depuis les premières activités magmatiques dans le secteur de Călimani aux plus récentes à l'extrémité sud du secteur Harghita. Il est formé par une vingtaine de volcans composites axiaux majoritairement adjacents les uns aux autres mais qui parfois se chevauchent partiellement (Fig. I-11). Leurs parties centrales sont entourés le plus souvent de tabliers volcanoclastiques (aprons en anglais) bien développés représentant les faciès médiaux à distaux de ces édifices (Fig. I-15). Les produits résultant de ce volcanisme, se trouvent soit à la frontière soit pris en sandwich entre deux unités structurelles majeures que sont, d'un côté, les Carpates orientales (avec le flysch carpatique) et de l'autre, le bassin de Transylvanie (Fig. I-11).

Pétrographiquement, la plupart des roches se répartissent parmi les andésites basaltiques, les andésites et les dacites, les andésites étant le type le plus commun (Fig. I-12). La composition minéralogique typique des roches de ce segment volcanique est matérialisée par la présence d'olivines, de pyroxènes, d'amphiboles, de biotites, du quartz, feldspaths ; on y retrouve en plus de ces minéraux et notamment à l'extrême sud de Harghita (caractérisé par des roches majoritairement à affinité shoshonitique), de nombreuses xénolites et autres phases minéralogiques pluri centimétriques donnant des textures parfois glomérophyriques à ces roches (voir chapitre III et IV).

Dans les diagrammes SiO_2 vs K_2O ($+Na_2O$) (Peccerillo and Taylor, 1976; Bas et al., 1986; Fig. I-12), les roches volcaniques de CGH correspondent majoritairement à des séries calco-alcalines et alcalines (shoshonitiques) montrant des signatures typiques allant des roches mafiques (basaltes) aux roches felsiques (rhyolites). Les roches de Călimani (points rouges sur la Fig. I-12) montrent une dispersion de composition nettement plus grande que celles des secteurs de Gurghiu et Harghita (points verts et jaunes ; Fig. I-12).

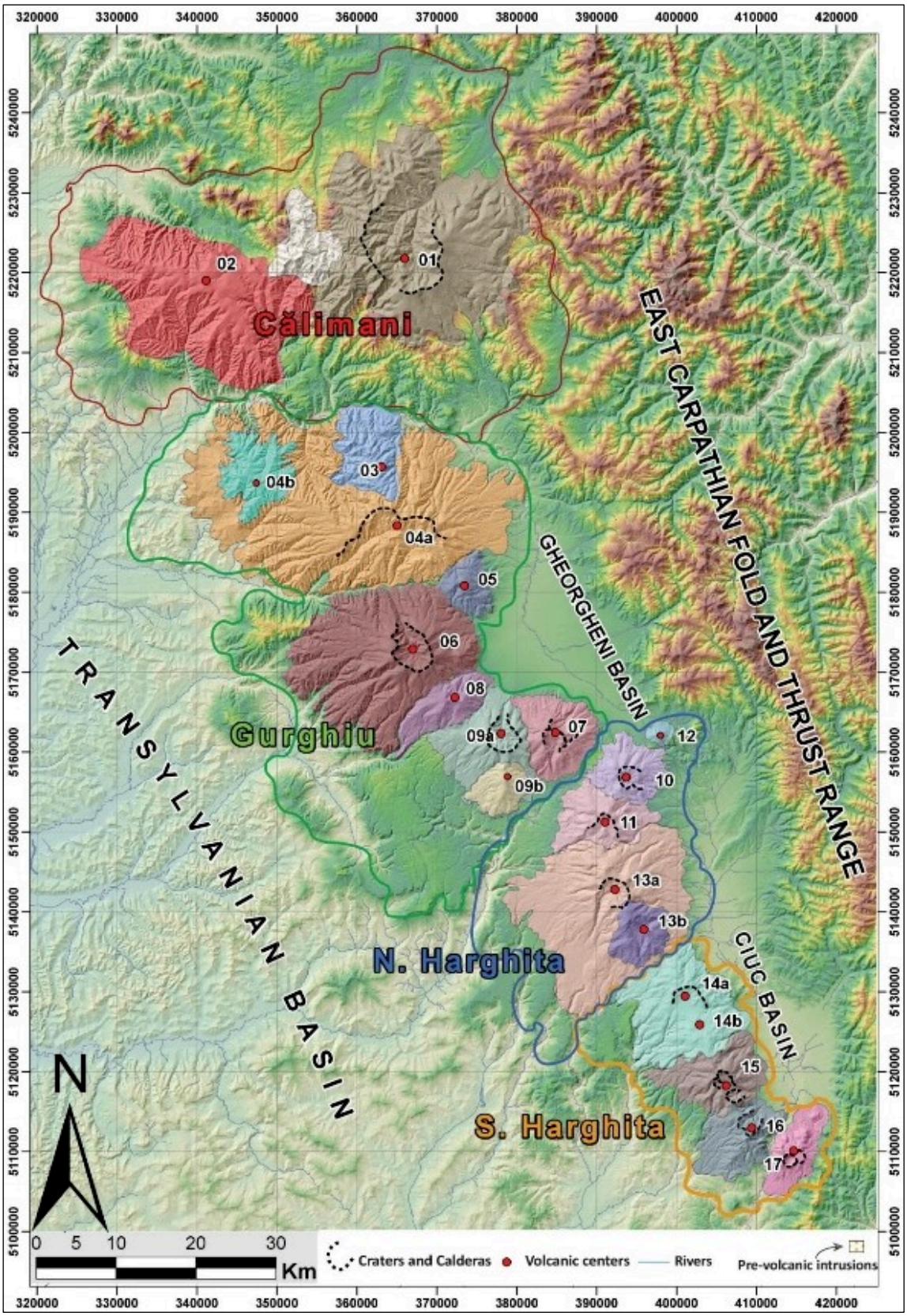


Fig. I-11: 01 – Central Călimani including Rusca-Tihu cones Lucaciul, Tămăul and Călimani caldera; 02 – Moldovanul. Gurghiu sector (green outline): 03 - Jirca; 04 – Fâncel-Lăpuşna, including cones Fâncel (04a) and Obarsia (04b); 05 –Bacta; 06 – Seaca-Tătarca; 07 – Ciumani; 08 – Borzont; 09 – Şumuleu including cone Şumuleu (09a) and Vf. Ascuţit (09b). North Harghita) sector (blue outline): 10 – Ostoroş; 11 – Ivo-Cocoizaş; 12 – Râchitis; 13a – Vârghiş and 13b – Szeles Vésze cone. South Harghita sector (yellow outline): 14 – Luci-Lazu (14a and 14b); 15 – Cucu; 16 – Pilişca; 17 –Ciomadul lavas domes (Dibacto et al., 2020)

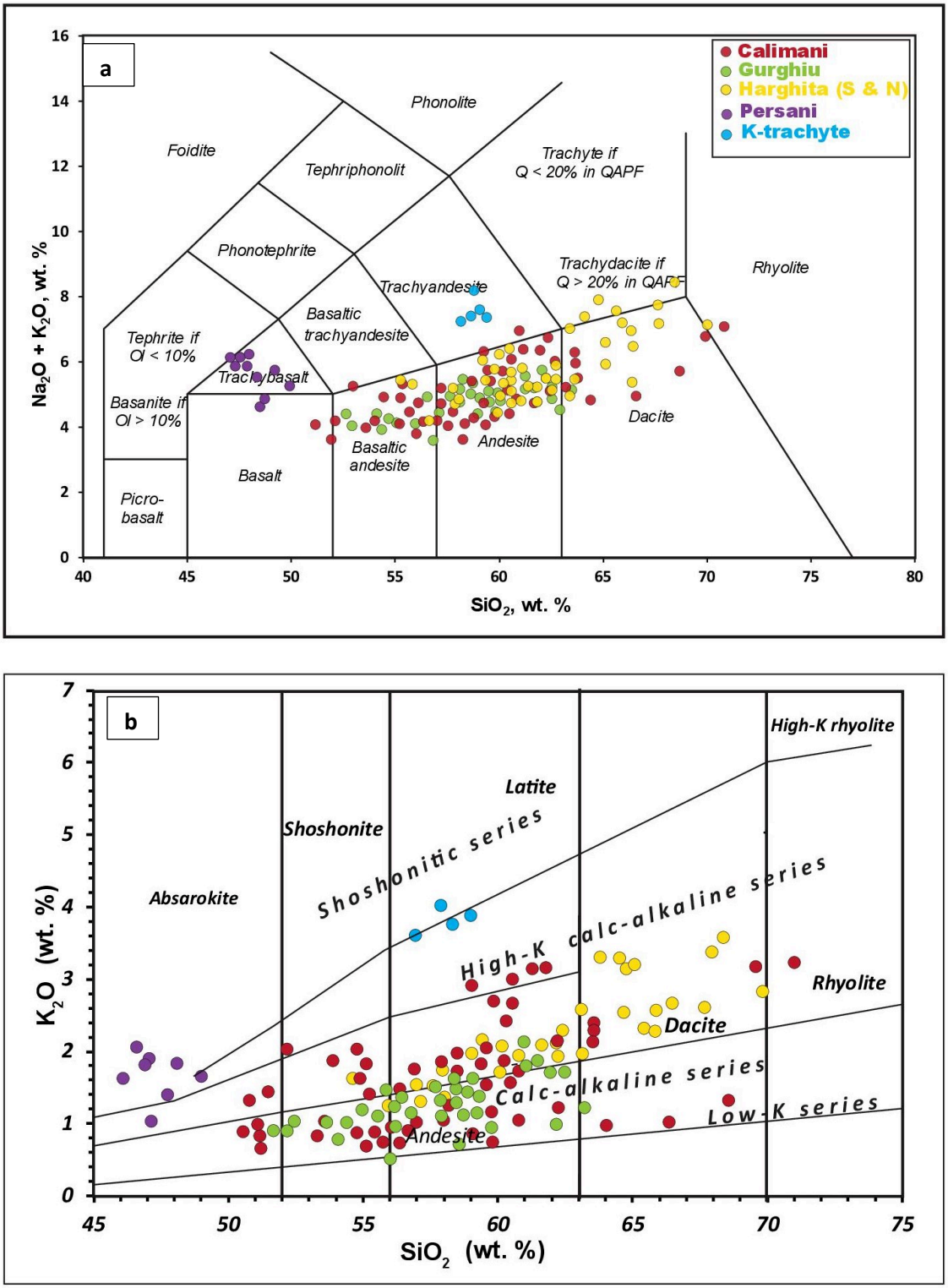


Fig. I-12: a) diagrame SiO_2 vs K_20+Na_2O des roches de CGH, b) SiO_2 vs. K_2O. Modifié d'après (Seghedi and Downes, 2011)

L'analyse des spectres des éléments traces normalisés du manteau primitif indiquent des similitudes entre les secteurs de Călimani et Gurghiu (Fig. I-13) tandis que, ceux des secteurs d'Harghita, (en particulier ceux du sud) sont différents et caractérisées par des concentrations de LILE (Rb, Ba, Th), de LREE (Low Rare Earth Element) et de Sr légèrement plus élevées et par des concentrations de HREE légèrement inférieures à ceux des deux autres zones.

En règle générale, le volcanisme de CGH présente dans un premier temps, une activité calco-alcaline classique de ~11 Ma jusqu'à 3.9 Ma (allant des structures volcaniques de Călimani, Gurghiu, Harghita du nord jusqu'au volcan Luci-Lazu, Mason et al. (1996) ; Seghedi and Downes (2011). Dans un second temps au niveau du secteur de Harghita du Sud (~3 Ma), les compositions de magma changent pour devenir calco-alcaline de type adakitique jusqu'à l'actuelle (Seghedi et al., 2011), interrompues partiellement entre 1,6–1,2 Ma par la génération des magmas alcalins (shoshonitiques). Ces variations compositionnelles traduisent sans doute des modifications de la source de ces magmas (Seghedi et al., 2011).

Dans le détails, le type calco-alcalin du secteur Harghita Sud est géochimiquement différent des magmas calco-alcalins des secteurs plus anciens Călimani-Gurghiu-North Harghita en raison de leur concentration élevée de Ba (1000-2000 ppm) et Sr (1000-1600 ppm) et de faible concentration en Y (5-15 ppm) et B (10-30 ppm) suggérant un caractère semblable proche des adakites (Fig. I-13) (Seghedi et al., 1987; Szakács et al., 1993; Mason et al., 1996, 1998). Ainsi, Seghedi et al. (2011) suggèrent que le volcanisme de type calco-alcalin proches des adakites proviendrait d'une lithosphère métasomatisée à proximité du bloc de Vrancea.

Pour le magmatisme shoshonitique (K-alcalin), une origine à partir d'une lithosphère supérieure a été proposée. Les principaux processus pétro-génétiques responsables des caractéristiques pétrographiques et pétrochimiques observées incluent aussi les processus de cristallisation fractionnée, l'assimilation crustale et le mélange de magma opérant dans des chambres magmatiques crustales à plusieurs niveaux (Mason et al., 1996, 1998; Seghedi et al., 2004b, 2005a; Kiss et al., 2014).

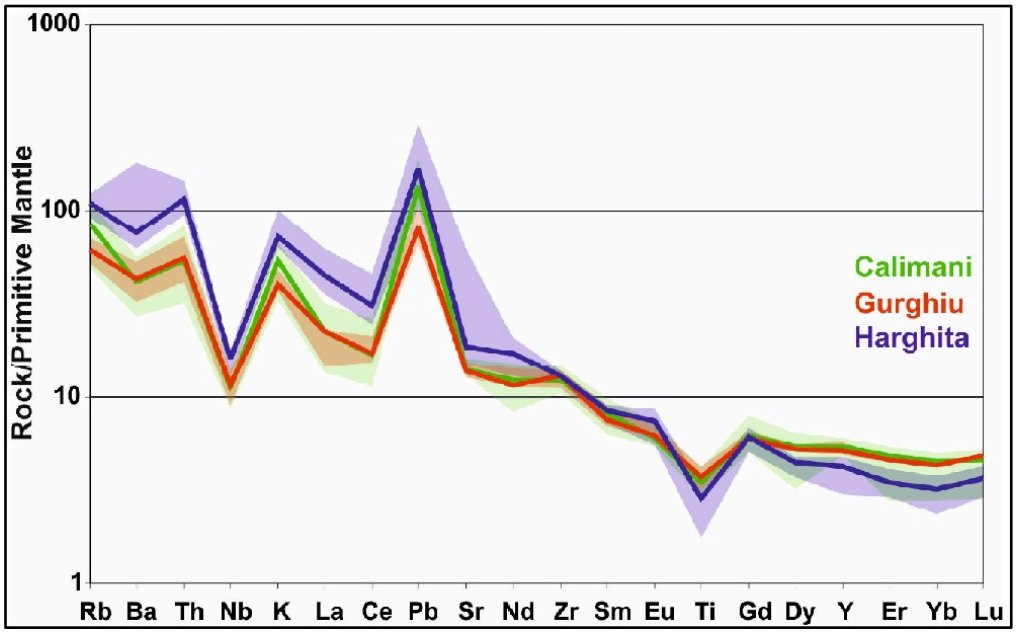


Fig. I-13 : Trace element spectra of the Calimani-Gurghiu-Harghita range normalized to primitive mantle values (Sun and Donough, 1989). Median values and IQR = 0.25-0.75 intervals are shown for each volcanic area (acc. to Seghedi et al., 2017).

I.2.2.3 Caractéristiques volcanologiques

D'un point de vue général, les structures volcaniques dominantes de ce segment sont principalement des volcans composites associés à des dômes soit isolés soit organisés en complexes (Fig. I-11).

Dans les secteurs volcaniques de Gurghiu et Harghita (Fig. I-11), les volcans composites présentent des morphologies typiques, généralement symétriques, en forme de cône. Ils sont alignés suivant les directions d'accidents tectoniques majeures (fractures, failles normales associées aux paléo-bassins, etc. ; Fig. I-14e). Ces édifices volcaniques situés majoritairement à l'intersection des éléments tectoniques régionaux (les failles obliques et normales), sont révélateurs d'un substratum fragmenté. Ainsi, leur emplacement (alignement des centres volcaniques) serait tout simplement une conséquence de l'interaction de toutes ces structures tectoniques ainsi que leur géométrie particulière qui ont facilité l'ascension de magmas en créant de fait des zones de faibles résistances, favorisant la pénétration et la remontée du magma en surface.

Sur la base d'études sismiques et gravimétriques, l'anomalie de Bouguer et la carte de gravité résiduelle de ce segment montrent une dichotomie nord-sud des structures. En effet, les relevés d'anomalies de Bouguer et des anomalies magnétiques (Seghedi et al., 2019) signalent des anomalies résiduelles positives dans la partie nord et axiale de la chaîne (Călimani, Gurghiu), indiquant la présence de corps sub-volcaniques de grande densité et de grande taille. Inversement, dans le sud de Harghita, les anomalies magnétiques résiduelles sont négatives, ce qui indique la présence de structures de faible densité en cohérence avec la diminution de taille moyenne des édifices du nord vers le sud du segment ainsi que la diminution des volumes des édifices (Szakacs et al., 1997; Karátson and Timar, 2005; Dibacto et al., 2020; Fig. I-14).

La plupart de ces volcans composites sont de taille moyenne, sévèrement à modérément érodés au nord et mieux préservés vers le sud (Fig. I-11). Leurs zones centrales actuelles consistent en des dépressions élargies par l'érosion (Karátson et al., 1999; Szakács and Ort, 2001), contenant dans certains cas des intrusions peu profondes, dont la plupart est associée à divers produits d'altération hydrothermaux. Les édifices les plus anciens et les plus grands (Călimani caldera /Rusca-Tihu dans le secteur de Călimani et Făncel-Lâpuşna à Gurghiu) sont les plus complexes et les seuls à avoir atteint le stade de caldera au cours de leur évolution. Ces deux calderas se sont formées entre 6,8 et 7,0 Ma (Seghedi et al., 2004b; Seghedi et al., 2005b). Leur effondrement caldérique a été causé par différents types d'activités volcaniques : des éruptions effusives de magma andésitique de grand volume dans le cas de Călimani et une série d'éruptions pliniennes pour le complexe volcanique de Făncel-Lâpuşna (Fig. I-15).

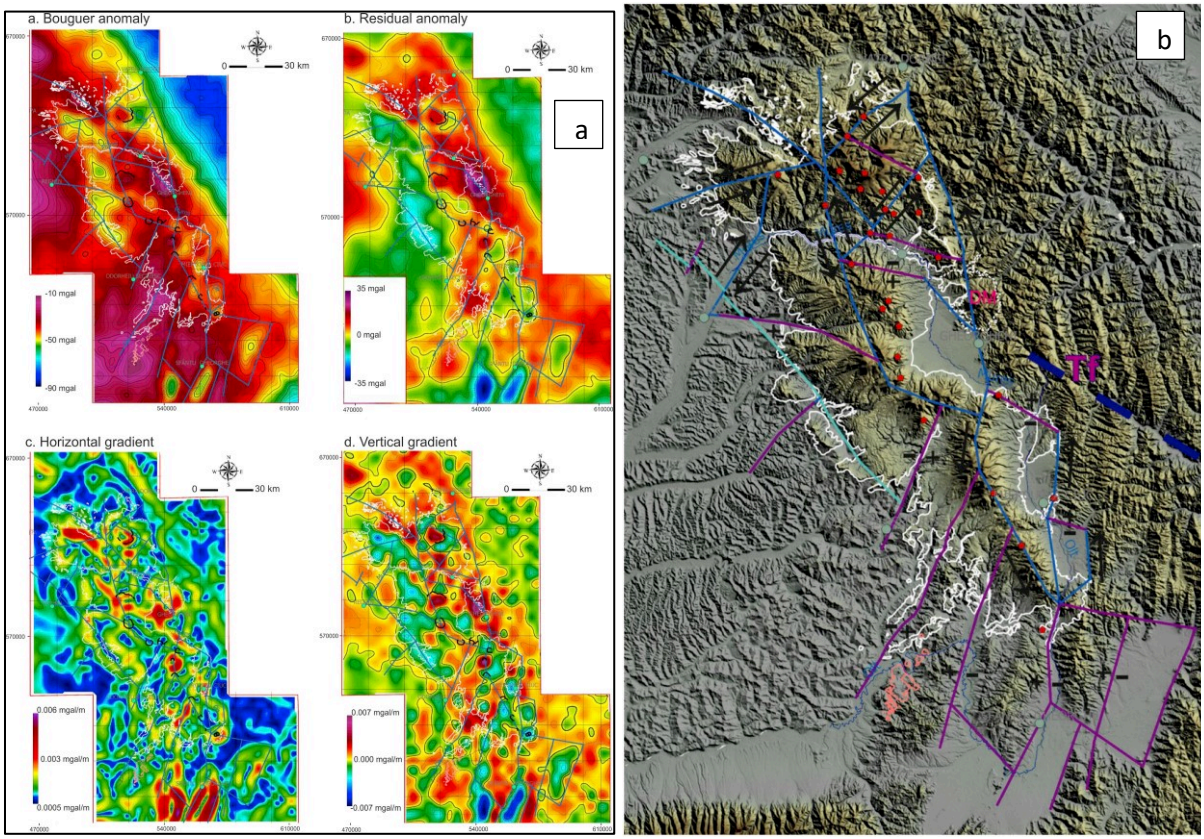


Fig. I-14: Geophysical gravity maps: (a) Bouguer anomaly, (b) residual gravity anomaly, (c) horizontal gradient of the residual gravity anomaly, (d) vertical gradient of the residual gravity anomaly. Bouguer correction radius is 20 km, Kriging interpolator with cell size of 5×5 km, DTM map scale 1:100000, projection system Stereo 1970, altitude datum Black Sea 1975, (e) Tectonic features of the CGH (compiled after Seghedi et al., 1994; Fielitz and Seghedi, 2005; Krézsek and Bally, 2006; Szakács and Krézsek, 2006). The fault represented in light blue is associated with salt diapirs; deep blue colour corresponds to strike slip faults; violet corresponds to normal faults after Seghedi et al., 2019.

La conséquence de telles activités est qu'elles ont généré la formation de vastes étendues volcanoclastiques (dépôts de débris d'avalanches [DAD]) notamment ceux de Făncel-Lâpuşna, de Rusca-Tihu et de Varghiş (Szakács and Seghedi, 1996) et plus récemment identifiés, ceux de Luci (partie nord de l'édifice volcanique Luci-Lazu) et Pilisça (Seghedi et al., 2019). Dans les deux (Călimani et Făncel-Lâpuşna), des roches effusives et intrusives post-caldera ont été générées. Ces dépôts d'avalanches de débris dominent la partie occidentale du segment volcanique. Des effondrements sectoriels d'édifices se sont également produits sur plusieurs volcans composites (Szakács and Seghedi, 2000).

Les zones centrales des édifices volcaniques (attribuées aux faciès proximaux) sont constituées quant à elles, d'épais empilements de coulées de lave de nature basalto-andésitique à andésitique parfois associée à des dômes de lave andésitique et dacitique et, avec quelque fois de rares dépôts pyroclastiques intercalés (Fig. I-15). Le complexe volcanique de Ciomadul (Harghita du sud), à l'extrême sud, est une exception, car il est entièrement constitué d'un groupe central de dômes extrusifs entourés de plusieurs dômes périphériques isolés; ici, des

éruptions phréatomagmatiques et pliniennes à des stades avancés sont les dernières phases volcaniques de ce segment (Szakács et al., 2015).

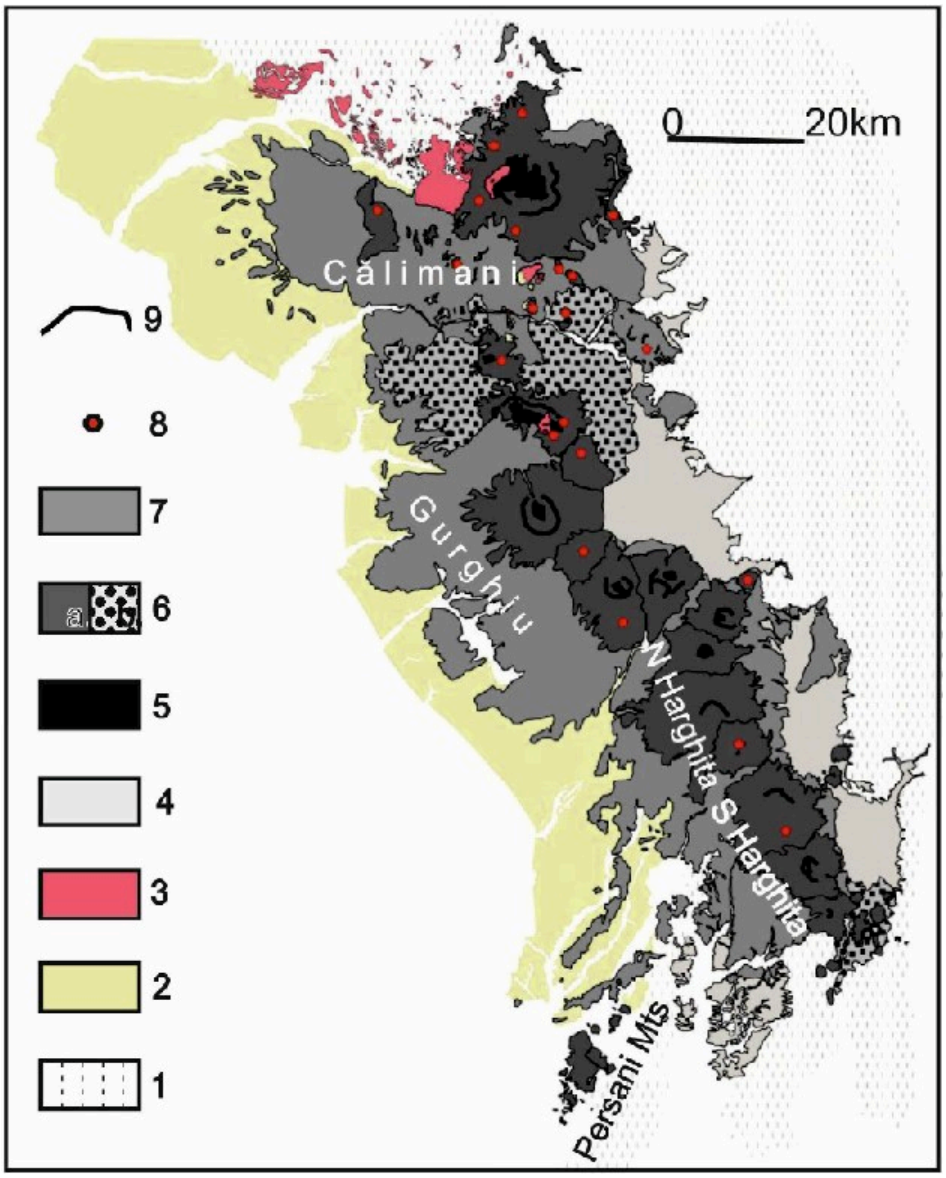


Fig. I-15: Simplified volcanic facies map of the Calimani-Gurghiu-Harghita volcanic range (acc.to Szakacs & Seghedi, 1995). Legend: 1: East Carpathians basement; 2: Transylvanian basin formations; 3: Subvolcanic intrusions;4: intra-mountain basins; volcanic edifice; 5: central facies; 6: proximal facies; a: dominantly effusive; b: dominantly explosive 7: Medial distal facies; 8: volcanic center; 9: caldera/crater rim.

Le secteur de Gurghiu et le nord du secteur d'Harghita représentent la partie axiale du segment volcanique CGH et, les édifices volcaniques présentent des formes et morphologies liées à l'interaction avec le substratum (le socle pré-volcanique). Plusieurs études ont établi le lien qui pouvait exister entre la forme de certains volcans et leur substratum (Delaney, 1992; Borgia, 1994; Merle and Borgia, 1996; Lagabrielle et al., 2000; Grosse et al., 2012). En effet, le socle anté-volcanique de ce segment est représenté par deux unités tectoniques majeures différentes de part et d'autre :

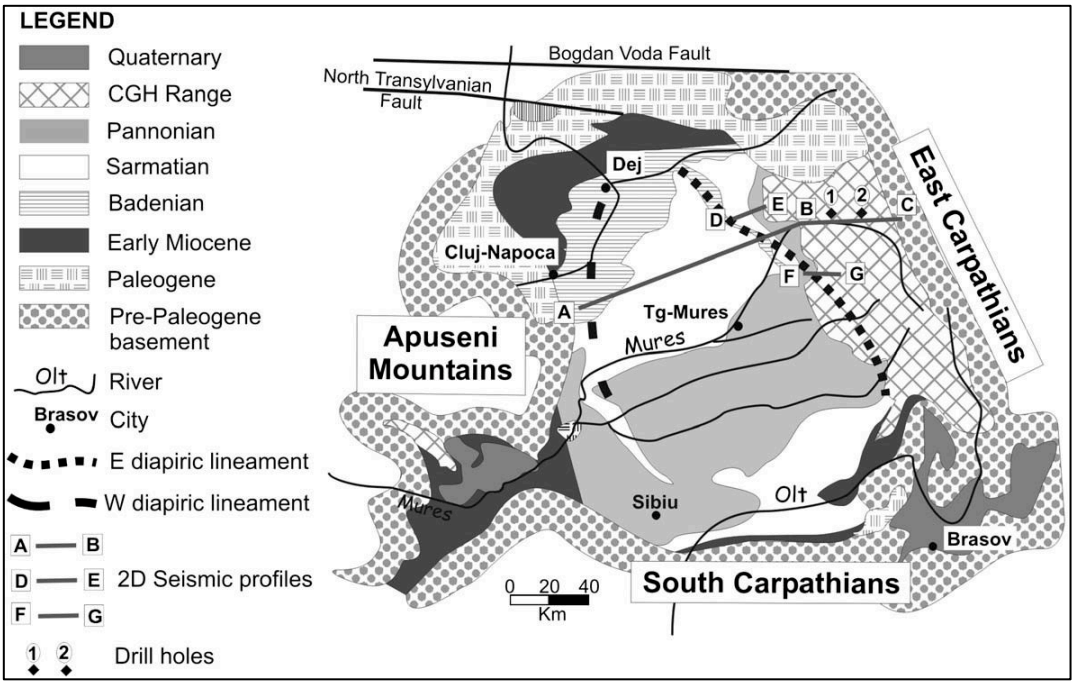


Fig. I-16: Geologic sketch map of the Transylvanian Basin (compiled after Ciupagea et al., 1970) with location of 2D travel-time seismic profiles (A–B, D–E, F–G) after Szakács and Krézsek, 2006.

1) A l'Est, le substratum sur lequel s'est construit les volcans est caractérisé lithologiquement par les roches métamorphiques du Protérozoïque-Paléozoïque inférieur, recouverts par les roches sédimentaires majoritairement carbonatiques du Mésozoïque (Sandulescu, 1988); alors que, 2) dans la partie occidentale du bassin Transylvanien, le socle est représenté par une épaisse pile sédimentaire qui recouvre les roches ductiles du Paléogène et Néogène, formées d'argiles et de formations salifères (Fig. I-17), sujet aux déformations plastiques (Ciupagea et al., 1970; Szakács and Krézsek, 2006). Cette différence de nature de substratum sous les secteurs occidental et oriental des édifices volcaniques a largement influencé la morphologie des volcans de la partie axiale (cas des volcans Făncel-Lâpuşna et Seaca-Tătarca à Gurghiu ; volcan de Vârghiş de Harghita du Nord), par un étalement unidirectionnel vers l'ouest c'est-à-dire du côté supporté par le substratum ductile (Fig. I-17; Szakács and Krézsek, 2006).

Ce mécanisme d'étalement ou « spreading » (en anglais), est dû à une double interaction (Szakács and Krézsek, 2006) : (1) la proximité de la chambre magmatique qui contribue à diminuer la viscosité des formations salifères, a causé leur fluage (« couche savon ») et par la suite, l'édification des volcans a entrainé des contraintes compressives verticales dues essentiellement à la charge induite par ces structures ; et en conséquence, les formations salifères ont été tassées et ont fluées en formant des plis-diapirs (des structures anticlinales; Fig. I-17b) au cœur du matériau ductile et le niveau salifère a agi comme une surface de décollement à partir de laquelle le fluage s'est propagé.

C'est donc cette double action, genèse des diapirs et fluage, qui a favorisé un étalement unidirectionnel des édifices vers l'ouest (Szakács and Krézsek, 2006) générant par la suite une dissymétrie des flancs externes au niveau de certains volcans de la chaîne (Fig. I-17).

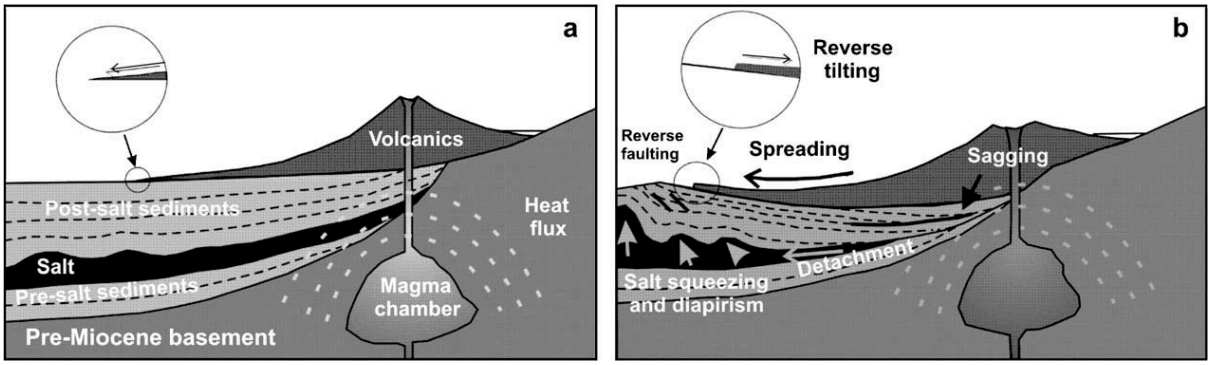


Fig. I-17: Cartoons showing a model of geological evolution with snapshots before (a) and after (b) volcano–basement interaction in the eastern Transylvanian Basin after Szakács and Krézsek, 2006

I.2.2.3.1 Edifices Volcaniques majeurs par secteur :

I.2.2.3.1.1 Secteur de Călimani

Le magmatisme du secteur de Călimani (~10.6-6.7 Ma), comprenait à la fois des processus intrusifs (prolongement de la « zone sub-volcanique » au nord) et une activité volcanique naissante isolée (Pécskay et al., 2006, 1995; Szakács and Seghedi, 1996; Seghedi et al., 2005; Fig. I-18 et Fig. I-23). Il constitue par ailleurs le premier événement majeur de l'évolution volcanique du segment CGH et coïncide avec le changement de régime tectonique régional, marqué par l'initiation de failles normales dans la région (Fielitz and Seghedi, 2005; Fig. I-14e). Le secteur de Călimani représente la zone volcanique la plus vaste de CGH (Fig. I-11) où des structures sub-volcaniques se sont mis en place sur un substratum assez complexe (Fig. I-15) caractérisé par: (1) des roches métamorphiques appartenant à la zone cristalline-Mésozoïque des Carpates orientales à l'Est, (2) des sédiments Crétacés-Paléogènes au Nord, et (3) des sédiments-Néogène du Molasse du bassin de Transylvanie à l'ouest (Seghedi 1982, 1987). La structure volcanique la plus importante actuellement est la caldera de Călimani situé au nord de la région et qui couvre près du tiers de tout le secteur.

Les plus grands stratovolcans identifiables sont représentés par Rusca-Tihu (01) et Moldovanul (02) et sont constitués principalement d'andésites basaltiques (Fig. I-11). Ils ont fourni d'énormes volumes (~420 km^3 pour tous les édifices du secteur) de dépôts volcaniques (Szakács et al., 1997; Karátson and Timar, 2005). Une étude volcanologique détaillée confirme la présence de larges dépôts d'avalanches de débris appartenant au volcan Rusca-Tihu (26 km^3; Szakács and Seghedi, 1996, 2000). Ces preuves de larges dépôts impliquent qu'au cours de son édification, le volcan Rusca-Tihu était beaucoup plus imposant qu'aujourd'hui avec une hauteur estimée à ~3000 m a.s.l (Szakács and Seghedi, 2000).

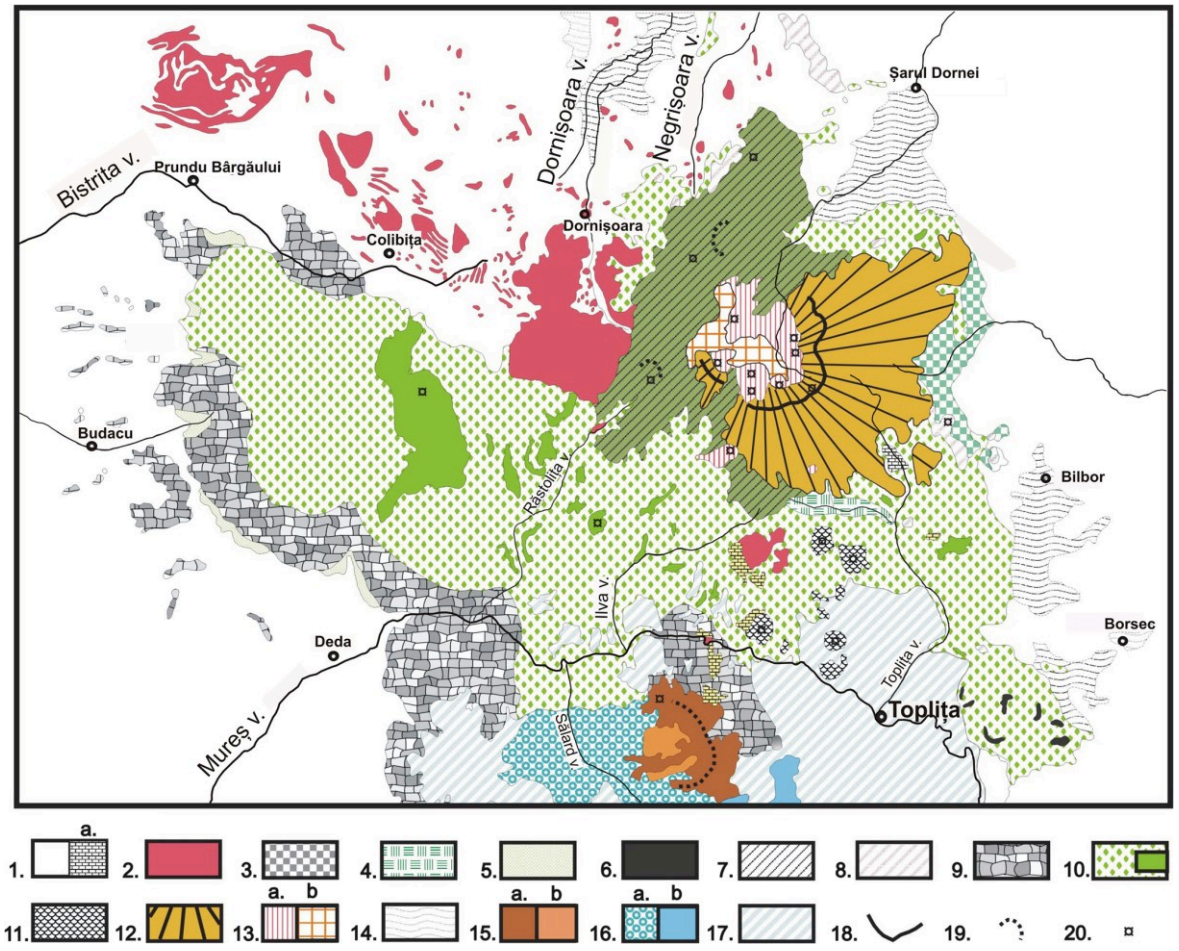


Fig. I-18: Simplified volcanological sketch map of the Călimani and northernmost Gurghiu Mountains (according to Seghedi & Szakács in Szakács & Seghedi 1996) 1 — Pre-volcanic basement (a — in the interior of the volcanic area); 2 — Early intrusions (basaltic-andesites, andesites, microdiorites); 3 — Drăgoiasa Formation (dacites, rhyolites); 4 — Lomaş Formation (low-K andesites and dacites); 5 — Budacu Formation (andesites); 6 — Sărmaş basalt lavas; 7 — Rusca-Tihu stratovolcanic edifice (basaltic andesites and andesites); 8 — Aphyric andesite lavas; 9 — Rusca-Tihu debris avalanche deposit; 10 — Rusca-Tihu Volcaniclastic Formation with lava intercalations (andesites, basaltic andesites); 11 — Peripheral Domes (andesites and dacites); 12 — Călimani Caldera lava flows (andesites); 13 — Post-Călimani-Caldera rocks: a — monzodiorites, diorites, b — andesites, dacites; 14 — Upper Pliocene-Qua- ternary sedimentary basins; 15 — Jirca volcanic edifice: a — andesites, b — diorites; 16 — Fâncel-Lăpuşna pre-Caldera rocks: a — volcaniclastics, b — andesite and basaltic andesite lavas; 17 — Fâncel-Lăpuşna Volcaniclastic Formation (andesites, dacites); 18 — a — Caldera rim according to present topography, b — Crater rim according to present topography; 19 — Volcanic vent

L'un des vestiges du volcan Rusca-Tihu après effondrement est « Călimani caldera » qui représente le dernier épisode volcanique majeur de ce secteur. Il présente une altitude actuelle de sommet d'environ ~2000 m a.s.l. Certaines des roches volcaniques les plus anciennes, telles que les dacites de Drăgoiasa et les rhyolites se trouvant à la périphérie Est de « Călimani caldera » (~ 9,3 à 8,7 Ma, Peltz et al., 1987; Pécskay et al., 1995) se sont formés au cours de cette période. Les âges radiométriques de certaines coulées de lave et de certains clastes trouvés dans les dépôts d'avalanches de débris appartenant au volcan Rusca-Tihu (10,2-9,3 Ma) suggèrent que l'initiation de ce volcanisme était à peu près contemporaine avec la fin des intrusions sub-volcaniques (Seghedi et al., 2005; Fig. I-23).

I.2.2.3.1.2 Secteur de Gurghiu

Ce secteur représente la partie axiale de cette chaîne où l'on retrouve le plus grand nombre d'édifices volcaniques de grandes tailles. Ces volcans composites présentent des morphologies diverses (caldera (volcan Fâncel-Lăpuşna), des cratères, des volcans-boucliers, des dômes de lave et des corps intrusifs individuels ou complexes) présents au centre ou à la périphérie des édifices (Fig. I-11 et Fig. I-15).

Du nord au sud, on distingue cinq édifices volcaniques majeurs : Jirca, le complexe volcanique de Fâncel-Lăpuşna, Seaca-Tatarca, Şumuleu et Ciumani-Fierăstraie. A ceux-ci, s'ajoute 2 dômes de lave (Bacta et Borzont ; Fig. I-19). À l'exception du stade tardif du complexe volcanique de Fâncel-Lăpuşna, tous sont essentiellement dominés par des coulées de lave. Ce secteur fut daté pour la toute première fois par Rădulescu et al. (1972) et plus tard par Michailova et al. (1983) et (Pécskay et al., 2006, 1995a; Seghedi et al., 2004b) avec une activité volcanique comprise entre 9.4-5.4 Ma.

De façon global, cette activité volcanique a débuté dans sa partie Nord au niveau du volcan Jirca avec une durée d'activité volcanique allant de 9.4-7 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b). Ce volcan assez érodé (Fig. I-12) dont les restes (~3/4), sont recouverts par les produits plus récents du volcan Fâncel-Lăpuşna au sud et les produits volcaniques du secteur de Călimani (Rusca-Tihu), situé à proximité du côté nord, s'est construit par des coulées de lave andésitiques à basaltiques.

Le complexe volcanique de Fâncel-Lăpuşna représenté par l'édifice centrale Fâncel-Lăpuşna (04a) à proximité du cône adjacent Obarsia (04b) est le plus grand volcan de ce secteur. Il est caractérisé par une ouverture vers le sud de sa caldera au centre de laquelle se trouve des complexes intrusifs microdioritiques à andésitiques (Fig. I-19). L'activité volcanique a eu lieu entre 9.2-5.4 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b).

Le volcan Bacta (05) jouxte Fâncel-Lăpuşna au SE de la caldera. Il s'agit du plus petit édifice andésitique construit entre 7,5 et 6,6 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b).

Le volcan Seaca-Tătarca quant à lui présente un diamètre basal d'environ 16 km, avec une dépression topographique sommitale centrale régulière, symétrique et quasi circulaire (~5 km de diamètre), ouverte vers le nord (Fig. I-11). Sa structure simple consiste en un empilement de coulées de lave, principalement andésitique. Compte tenu de sa position centrale le long de la chaîne et de sa belle régularité géométrique, ce volcan a bénéficié d'études détaillées. Par exemple, il est au centre d'un débat au sujet de la définition de sa dépression sommitale ; s'agit-il d'une caldera, ou alors d'un cratère ? Selon (Karátson, 1999), il décrit la dépression

sommitale comme étant une caldera d'érosion sur une base purement morphologique. Cependant, selon les travaux de (Szakács and Ort, 2001), il s'agirait tout simplement d'un cratère d'érosion formée plus tard suite aux processus érosifs ayant impactés la structure primaire. De plus, aucun dépôt pyroclastique de volume important n'est associé à cet édifice, et encore moins de volumineux produits effusifs à associer à un événement éruptif particulier pour justifier d'une nomenclature de caldera. Elle serait dès lors, plus en adéquation avec une définition de cratère d'érosion comme soutenus par (Szakács and Ort, 2001). La partie la plus méridionale de ce secteur est constituée d'un groupe d'édifices de plus petits volumes se chevauchant les uns les autres et faits majoritairement de coulées de lave andésitiques.

Le dôme volcanique de Borzont (08) est un volcan bouclier effusif monogénétique, qui représente l'un des plus petits édifices du segment. Il s'est construit par une seule éruption effusive autour de 6,8 ± 0,5 Ma (Pécskay et al., 1995).

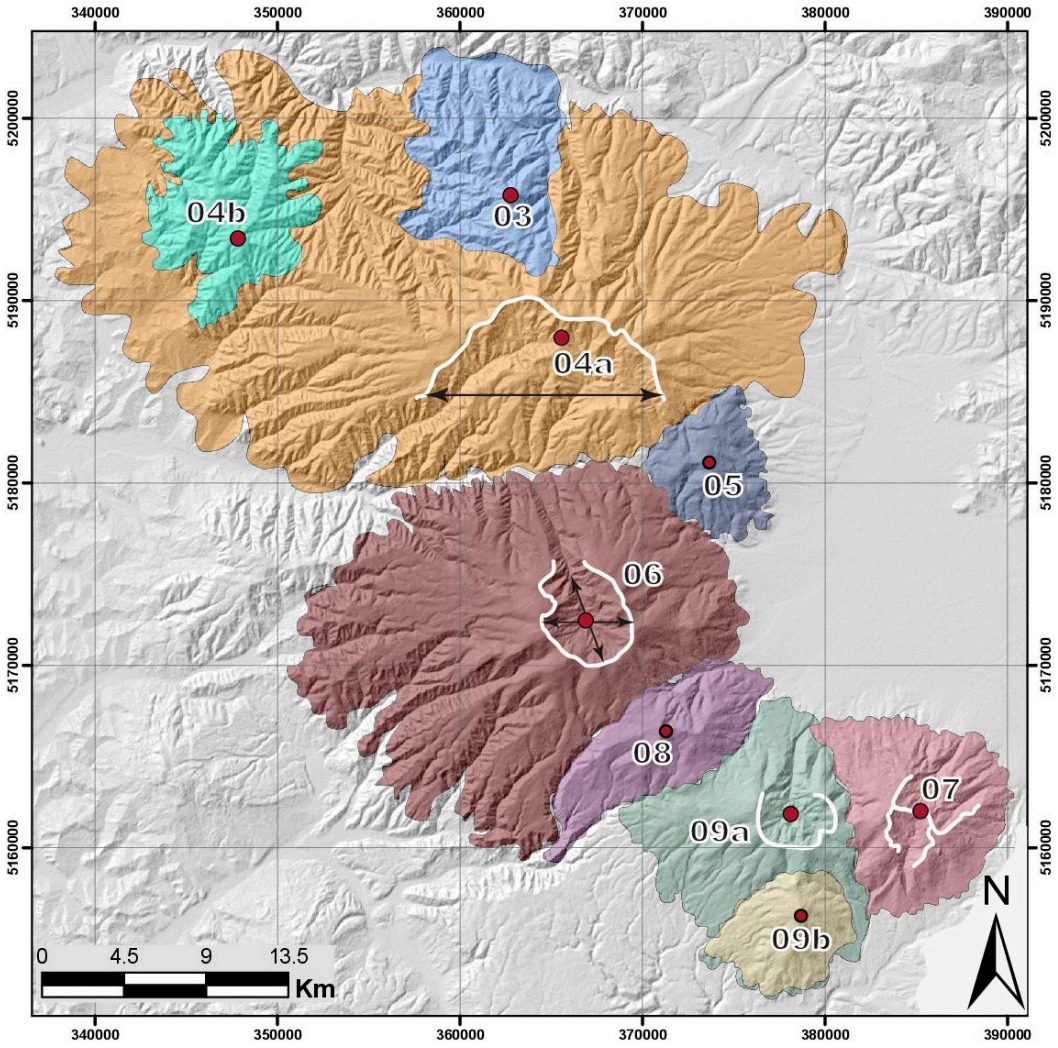


Fig. I-19: Gurghiu : 03 - Jirca ; 04 – Fâncel-Lăpuşna, including cones Fâncel (04a) and Obarsia (04b); 05 –Bacta; 06 – Seaca-Tătarca; 07 – Ciumani; 08 – Borzont; 09 – Şumuleu including cone Şumuleu (09a) and Vf. Ascuţit (09b)

Şumuleu est un édifice volcanique composite construit entre 6,7 et 6,2 Ma (Pécskay et al., 1995 ; Seghedi et al., 2004b), présentant un diamètre basal d'environ 12 km disposant d'une dépression centrale d'environ 4 km de diamètre (09a ; Fig. I-19) avec un complexe intrusif bien développé et peu profond.

Ciumani-Fierăstraie (07 ; Fig. I-19) est un édifice composite à double cratère avec des laves andésitiques dominant ses pentes inférieures qui sont renforcées vers l'ouest par des laves du volcan voisin de Şumuleu (Fig. I-11). Le cratère de Ciumani est ouvert au sud et celui de Fierăstraie au nord. Ces deux cratères ont des complexes centraux intrusifs modifiés par l'érosion.

I.2.2.3.1.3 Secteur Harghita du Nord

Les volcans d'Harghita du Nord forment un alignement d'édifices orientés NNE-SSW. Le plus au nord (Râchitis [12] ; Fig. I-11 et Fig. I- 20) est le plus petit édifice de ce secteur et même de toute la chaîne des Carpates orientales pannonienne et correspond à un dôme dacitique simple (Seghedi et al., 2004b).

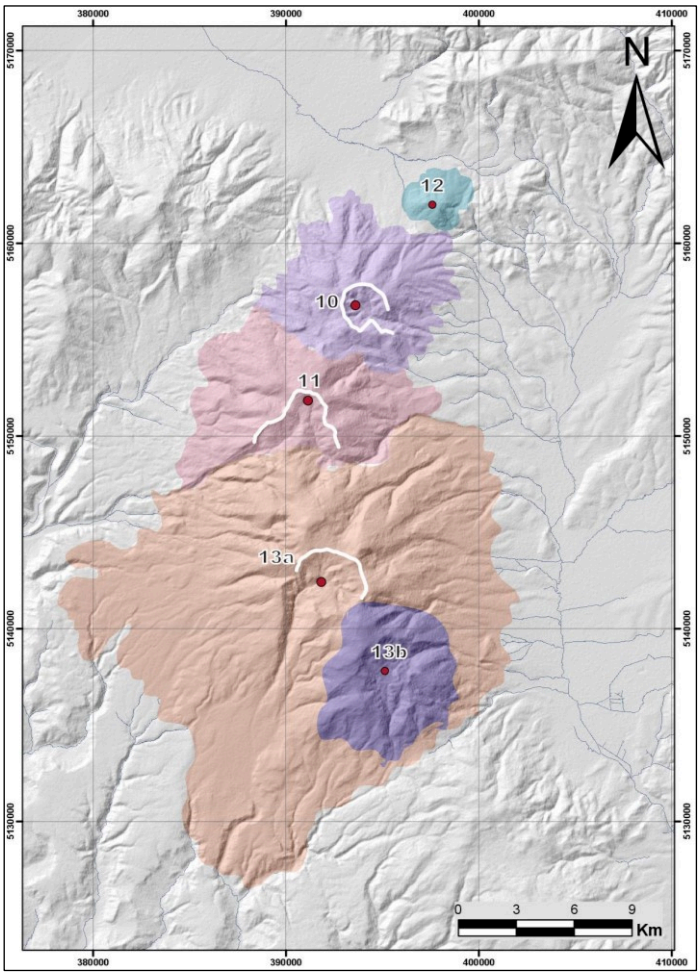


Fig. I- 20: North Harghita Sector: 10 – Ostoroş; 11 – Ivo-Cocoizaş; 12 – Râchitis; 13a – Vârghiş and 13b – Szeles Vésze cone

Ostoroş (10 et Fig. I- 20), le suivant, est un édifice typique des Carpates orientales, disposant d'un "cratère" dans sa partie sommitale et constitué de laves andésitiques et de faibles dépôts pyroclastiques. L'édifice Ivo-Cocoizaş (11) est plus érodé avec un cratère en forme d'amphithéâtre. Ses laves vont des andésites basaltiques aux andésites acides, mais on trouve aussi des roches rhyodacitiques (Stanciu et al., 1985).

Toute la moitié sud de ce secteur est recouverte par les laves du complexe volcanique de Vârghiş dont les parties les plus anciennes sont exposées à l'intérieur du cratère (13a ; Fig. I- 20) et dans la région de Harghita Bái (au SE du sommet principal ; le cône de Szeles Vésze (13b)). Il est caractérisé par un grand cône, présentant une large dépression centrale (~4 km de diamètre) et ouverte vers le sud. Des coulées de lave andésitiques-dacitiques sont enregistrées sur le flanc Est.

I.2.2.3.1.4 Secteur Harghita du Sud

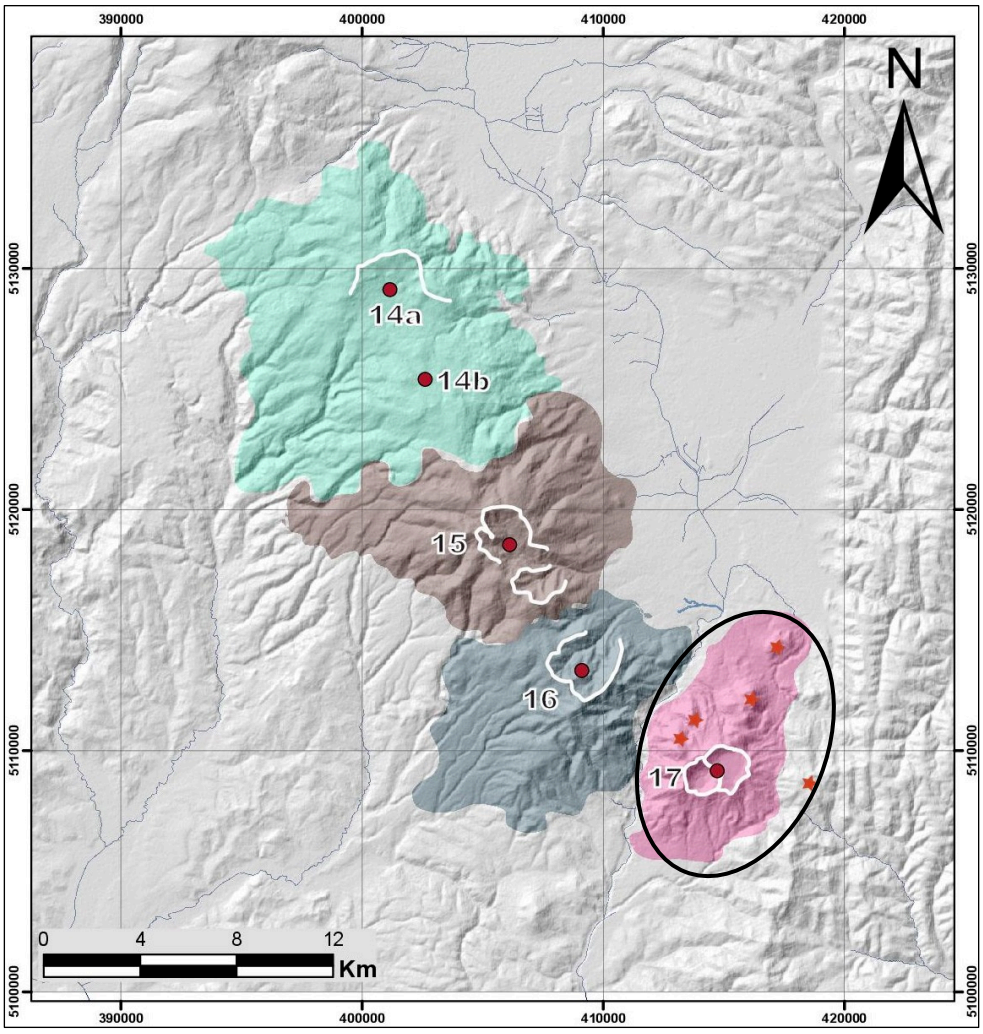


Fig. I-21: South Harghita sector: 14 – Luci-Lazu (14a and 14b); 15 – Cucu; 16 – Pilişca; 17 –Ciomadul lavas domes

Le secteur de Harghita du Sud est la partie la plus récente (< 1 Ma) de la chaîne CGH dans les Carpates orientales. La majeure partie de la chaîne est située entre le bassin de Transylvanie et les unités des Carpates orientales. Mais, Harghita est différente des autres secteurs, car les édifices volcaniques présents ici, recoupent la pointe la plus orientale des unités de flysch de Dacia (Szakács et al., 1993; Szakács and Seghedi, 1995). Le secteur est caractérisé par une série de centres volcaniques tous concentrés le long de failles individuelles et/ou à l'intersection de ces failles. L'âge du volcanisme est progressivement plus jeune vers le sud, allant de 5,1 à 0,027 Ma (Pécskay et al., 1995b; Fielitz and Seghedi, 2005; Karátson et al., 2019; Lahitte et al., 2019). Les principaux édifices volcaniques identifiés dans ce secteur sont (Fig. I-21) : Luci-Lazu (14a-b), Cucu (15), Pilişca (16) et le complexe volcanique de Ciomadul (17) formé d'une douzaine de dôme de laves dont nous présenterons un peu plus en détail ci-dessous.

Le complexe volcanique de Ciomadul (Fig. I-22) représente le plus jeune complexe volcanique de toute la chaîne des Carpates. Avant cette étude le complexe volcanique de Ciomadul était considéré comme un ensemble de dômes de lave composé d'environ 8 à 14 km^3 de produit volcanique dacitique à forte teneur en K (Karátson and Timar, 2005; Szakács et al., 2015) à andésitique.

Sa structure volcanique consiste en un amas central de dômes de lave abritant deux cratères explosifs celui de Mohos et de St. Ana et, entourée de dômes de lave périphériques isolés plus anciens (Haramul Mic, Bálványos, Büdös-Puturosul, Nagy- Hegyes et Dealul Mare). La plupart des dômes de lave ont bien conservé leur morphologie d'origine, tandis que certains d'entre eux (par exemple, les dômes Bálványos et Büdös-Puturosul) présentent des caractéristiques d'altération érosive et fumeroliennes intensives (Szakács and Seghedi, 1995; Karátson et al., 2013; Szakács et al., 2015).

Ce volcanisme a débuté il y'a environ 1 Ma, tandis que le volcan Ciomadul lui-même a été construit depuis 200 à 300 ka avec extrusion de lave initiale suivie d'une période de repos relativement longue d'environ 100 ka à 57 ka (Harangi et al., 2015a). Le plus jeune stade actif (de 57 à 32 ka) de l'activité volcanique a été plus explosif et a impliqué plusieurs événements d'effondrement des dômes de lave extrudés accompagnés d'éruptions pliniennes et sub-pliniennes (Harangi et al., 2015; Karátson et al., 2016). Les dernières éruptions se sont produites il y'a environ 32 ka (Vinkler et al., 2007; Harangi et al., 2010, 2015a), et depuis lors, le volcan est entré dans sa phase de repos. Néanmoins, malgré cette dormance relativement longue, des preuves venant de plusieurs disciplines comme de la géologie, de la pétrologie et de la géophysique (Demetrescu and Andreescu, 1994; Harangi and Lenkey, 2007; Popa et al., 2012;

Szakacs and Seghedi, 2013; Harangi et al., 2015a, 2015b) indiquent qu'il pourrait y avoir encore un corps magmatique fondant en dessous.

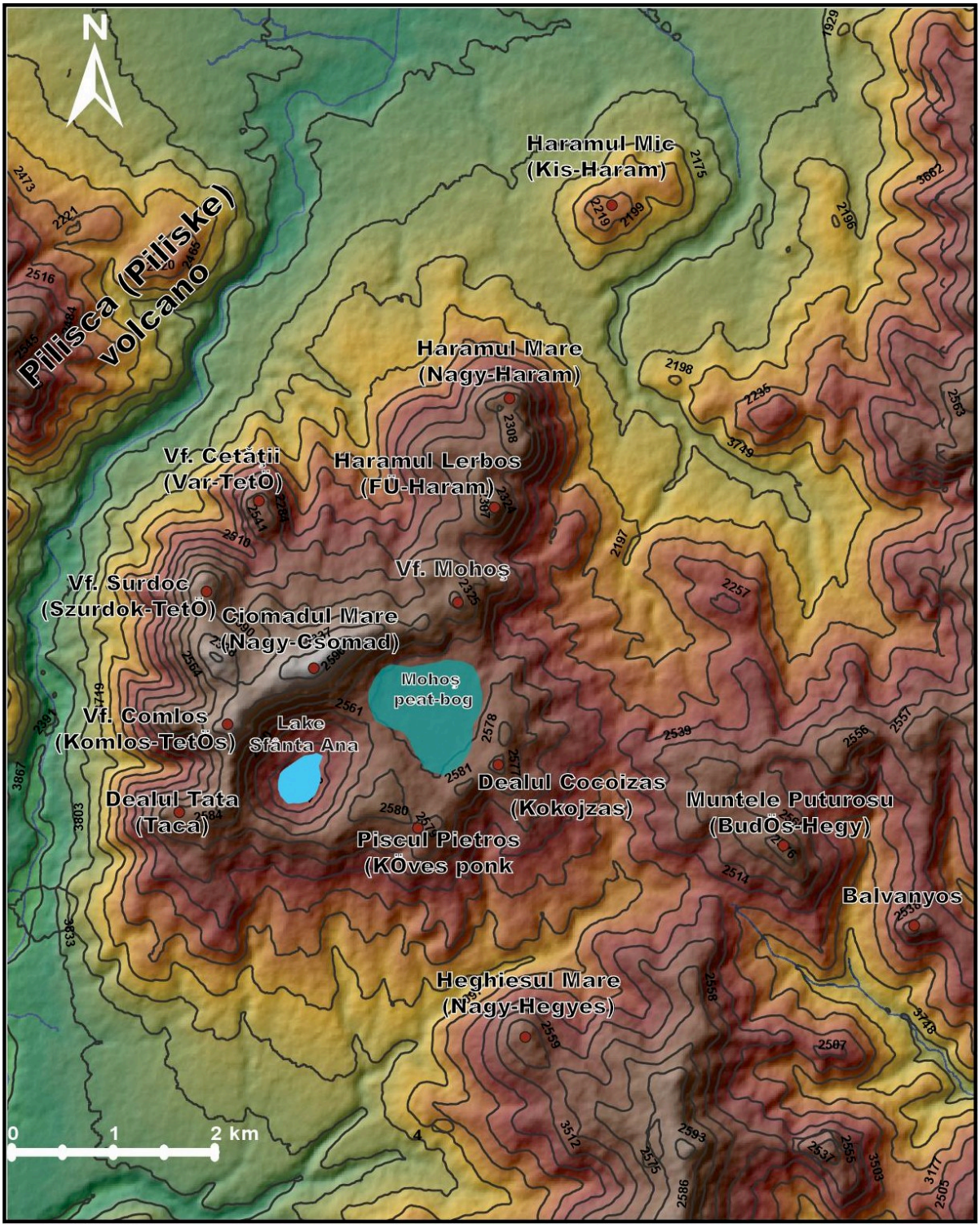


Fig. I-22 : Complexe volcanique de Ciomadul avec les différents domes de laves

Ainsi donc, la chaîne des Carpates Pannoniennes en particulier le segment volcanique de CGH montre encore tout son caractère actif (bouillonnant) tant sur le plan sismique, volcanique et tectonique ; ce qui justifie amplement la recrudescence d'études menées jusqu'à présent pour mieux la décrypter.

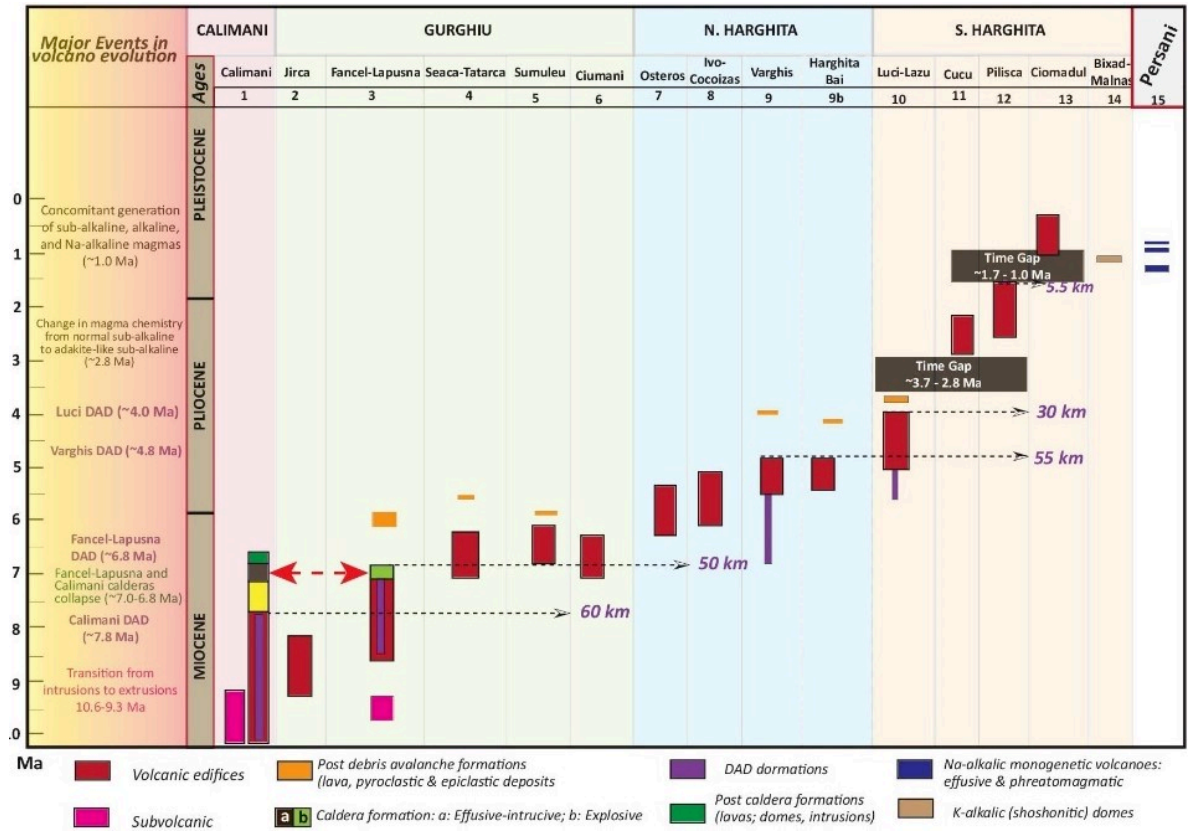


Fig. I-23: Simplified time sequence of the main volcanic edifices and major events in the evolution of the CGH range (DAD runout distance are shown by dashed arrows). Modified after Seghedi et al., 2017

I.3 Le segment occidental des Carpates Pannonienne

Au niveau de ce segment, les premiers produits volcaniques de la microplaque Alcapa étaient représentés par des téphra siliciques au Miocène supérieur (Szabó et al., 1992; Seghedi et al., 2004a ; Fig. I-3, 4, 6,8). Plus tard, des dépôts de retombées pyroclastiques du Miocène ont été identifiés dans les monts de Börzsöny (Karátson et al., 2000; Karátson and Németh, 2001), de Mátra (Varga 1962) et dans la région volcanique du nord et du sud du champ volcanique de Bükk (Seghedi et al., 1998; Márton and Márton, 1996; Márton et al., 2007).

Ces dépôts pyroclastiques de nature siliciques du Miocène du nord de la Hongrie (Börzsöny, Mátra et Bükk) ont été subdivisés pour la toute première fois par Noszky. (1930) en trois unités principales en se basant sur l'analyse des sédiments sous-jacents. Il distingue donc : (1) des bassins dits « inférieurs » (tufs supérieurs), (2) des bassins « moyens » (tufs intermédiaires) et (3) des « tufs de rhyolite supérieurs ».

Cette subdivision en trois unités est devenue largement acceptée lorsque des premiers âges K-Ar (Hámor et al., 1979) statistiquement distincts ont été obtenus sur ces tufs avec :

— Un âge moyen de 19,6 ± 1,4 Ma pour le niveau inférieur,

— Un âge moyen de 16,4 ± 0,8 Ma pour le niveau intermédiaire

— Un âge de 13,7 ± 0,8 Ma pour le tuf supérieur.

Malgré les fortes incertitudes de ces âges impliquant des incertitudes temporelles importantes, cette première classification a eu le mérite de poser les jalons des contraintes temporelles et de la compréhension de ces dépôts.

Plus tard, les mesures de déclinaisons paléomagnétiques et les rotations magnétiques déduites se sont révélées être des outils efficaces pour discriminer les principales unités de tuf du nord de la Hongrie. Ainsi, elles ont montré que toutes les formations sédimentaires et ignées du Cénozoïque plus anciennes que le Miocène supérieur (i.e. > 16.8 Ma) sont caractérisées par une rotation magnétique de 80 -110 ° (Márton and Márton, 1996).

Les combinaisons de données paléomagnétiques aux résultats géochronologiques de ces dépôts pyroclastiques ont montré une rotation de ~ 80 ° encore mal définie pour des formations comprises entre 18,5 et 17,5 Ma, et une rotation supplémentaire de 30 ° beaucoup mieux contrainte entre 16,0 et 14,7 Ma (Márton and Pécskay, 1998), 15,5-15,3 (± 0,5) Ma (Karátson et al., 2007), ou 16,0-15,0 Ma (Lukács et al., 2018). Les plus jeunes ignimbrites de 13-14 Ma signalés dans le nord-ouest et ouest du champ volcanique de Bükk (Márton and Pécskay, 1998; Lukács et al., 2007, 2018) indiquent une rotation de 0 à 10 ° (< 30°).

I.3.1 Champ volcanique de Bükkalja (les monts Bükk et Mátra)

I.3.1.1 Contexte géologique

Le champ volcanique de Bükkalja (BVF) est situé dans le bloc d'Alcapa, juste au nord de la zone de cisaillement mi-hongroise. Des étendus pyroclastiques bien conservés se trouvent dans une zone d'environ 50 km de long sur 10 km de large (Fig. I-24) et offrent une excellente occasion d'examiner la nature du volcanisme silicique du début au mi-Miocène du bassin pannonien. La succession volcanique contient principalement des ignimbrites et des dépôts de retombées pyroclastiques (Pantó, 1963; Capaccioni et al., 1995; Seghedi et al., 1998, 2005a; Czuppon et al., 2012; Lukács et al., 2015). Au cours de la formation du bassin pannonien, de vastes éruptions volcaniques siliciques se sont produites générant plusieurs dépôts pyroclastiques, pouvant atteindre des épaisseurs moyennes de près de 100 m (Szabó et al., 1992; Márton and Pécskay, 1998; Pécskay et al., 2006; Harangi and Lenkey, 2007; Fig. I-24).

Bien que la plupart de ces produits volcaniques soient enfouis sous des sédiments plus jeunes, ils peuvent être très bien étudiés dans le secteur des monts Bükk (Champ volcanique de Bükkalja ; Fig. I-24 ; Fig. I-25). Les précédentes datations au K-Ar suggéraient que ce volcanisme s'était produit de 21 à 13 Ma (Márton and Pécskay, 1998; Pécskay et al., 2006; Lukács et al., 2007), tandis que, les récentes datations sur zircon par U-Pb et (U-Th)/He (Lukács

et al., 2015) ont suggéré une durée plus courte du volcanisme (~14,3 Ma). Dans le but d'affiner cette chronologie, des datations supplémentaires ont été effectué pour mieux contraindre la période d'activité volcanique de ce champ (Chapitre VI).

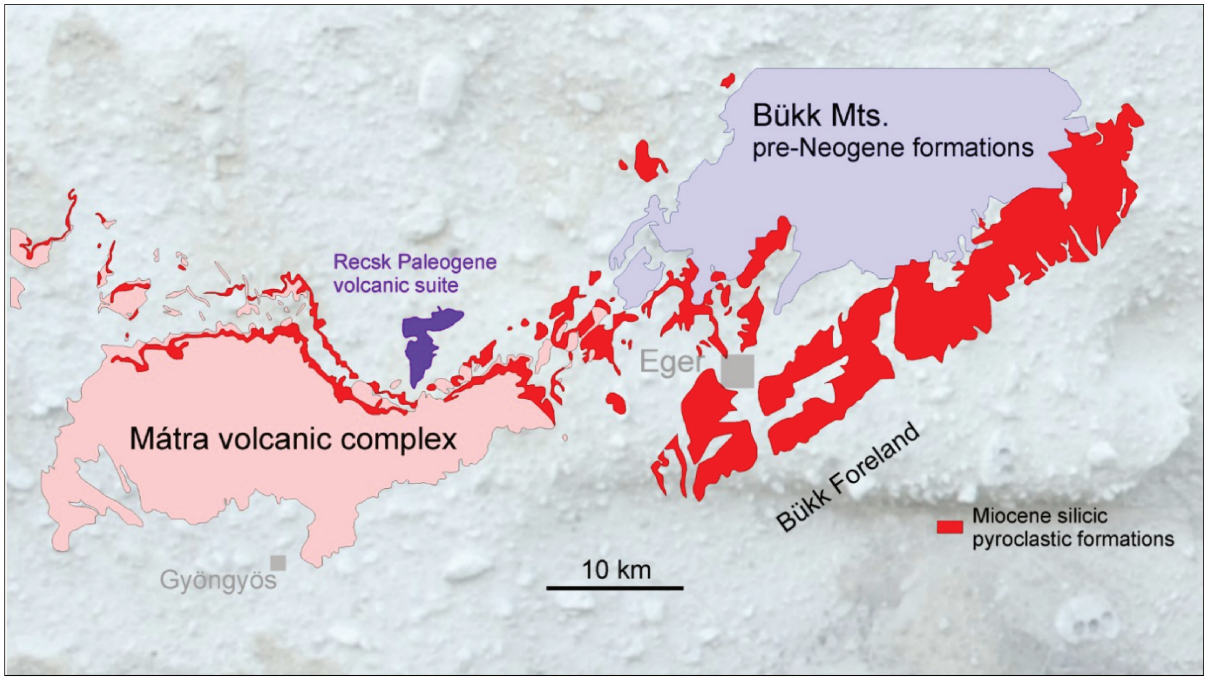


Fig. I-24:Carte géologique à l'échelle 1/100 000 des dépôts pyroclastiques siliciques du Miocène des secteurs de Bükkalja et Mátra du nord de la Hongrie simplifié ; carte de base : maps.mbfsz.gov.hu. (D'après Márton et al.,2018)

Par ailleurs, sur la base de solides données paléomagnétiques, deux événements majeurs de rotation de blocs syn-volcaniques divisent ce champ volcanique en trois unité majeures (Márton and Fodor, 1995; Márton and Pécskay, 1998; Márton et al., 2007; Fig. I-25):

— Une unité inférieure (complexe de tuf inférieur) présentant une rotation de 80 °.

— Une unité intermédiaire (complexe de tuf moyen) caractérisée par une rotation de 30 °.

— Une unité supérieure (complexe de tuf supérieur) caractérisé par l'unité ne présentant aucune rotation magnétique significative (~10°).

La stratigraphie des dépôts volcaniques et la corrélation avec les formations sédimentaires sont difficiles en raison des affleurements dispersés et du manque de sédiments datables associés. Aussi, ces ignimbrites sont pour la plupart pauvres en cristaux (~10 à 15% en volume (Fig. I-26), Seuls l'unité de Bogács comprend principalement des produits volcaniques riches en cristaux (~30 à 40% en volume ; Czuppon et al., 2012). La stratigraphie relative des dépôts volcaniques successifs dans le champ volcanique de Bükk est résumée sur la Fig. I-26 (des photos représentatives des unités principales sont présentées) et, est basée sur la compilation de nouvelles études volcanologiques, pétrologiques et géochimiques détaillées et les

interprétations de Seghedi et al. (1998) ; Lukács et al. (2005, 2009, 2015, 2018) ; Czuppon et al. (2012) ; (Fig.1).

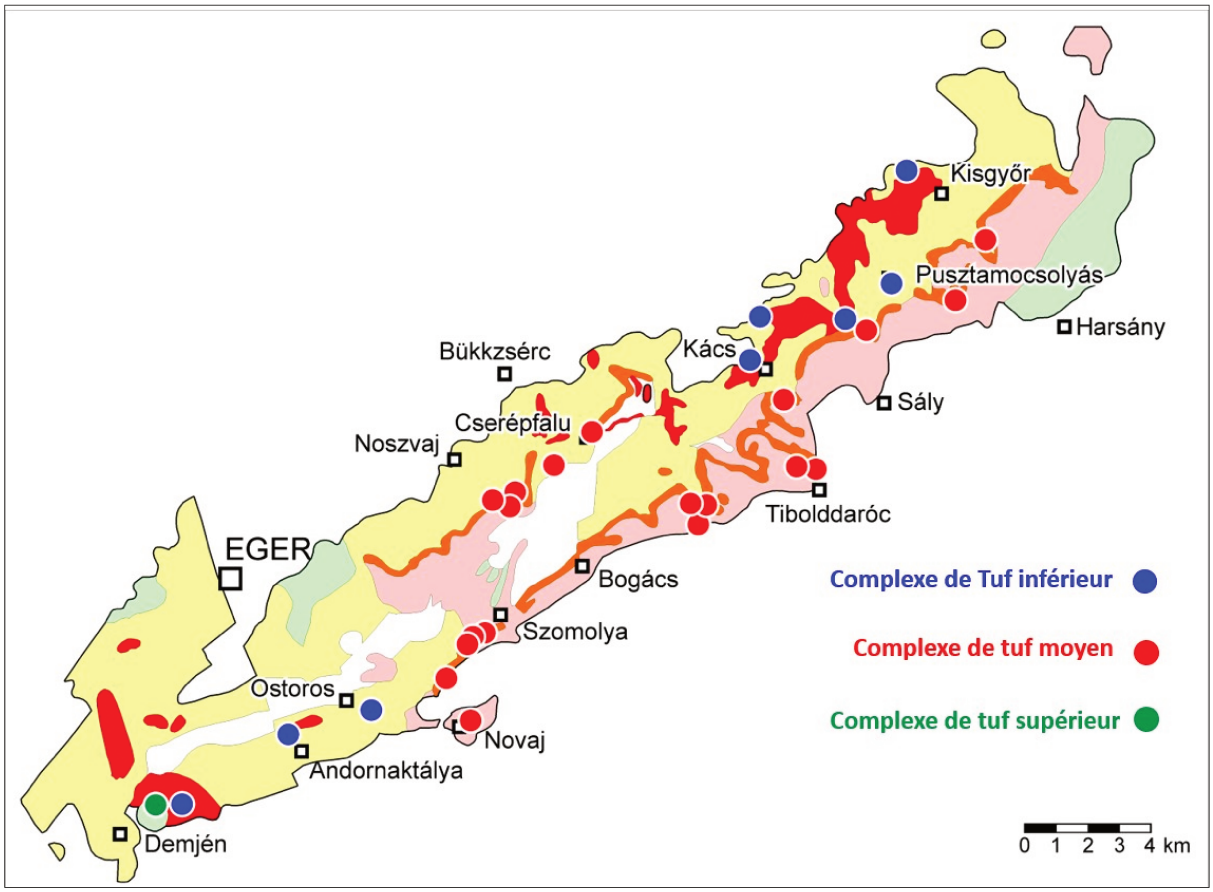


Fig. I-25 : Carte géologique Szakács et al., 1998, Basé sur la carte de 1964 de Balogh présentant différents affleurements ainsi que leur stratigraphie tout le long de Bükkalja (Modified from Márton et al., 2018).

I.3.1.2 Caractéristiques pétrologiques des unités majeures

Chaque complexe de tuf est caractérisé par un ensemble unique de traits, notamment la lithologie, la pétrographie, la géochimie, les paramètres paléomagnétiques ainsi que leur âge. Les trois complexes de tuf ont une lithologie assez composite, reflétant une succession d'épisodes éruptifs (Lukács et al., 2018).

(1) **L'unité inférieure**

Caractéristique des dépôts > 16.8 Ma, présente une rotation paléomagnétique entre 80 et 90 ° et, se compose de deux ignimbrites de rhyolite riche en biotite, en quartz et des lits de lapilli de ponce plinienne séparés par des tufs phréatomagmatiques à la base de la deuxième unité ignimbritique et une séquence de tufs phréatomagmatiques (Fig. I-26).

(2) **L'unité intermédiaire (Td-J ; Td-L ; Bogács)**

Cette unité couvre une période comprise entre 17,5-16 Ma (Márton and Pécskay, 1998), correspondant à une rotation magnétique de ~30° à 35 °. Cette unité est caractérisée par la présence de deux composantes pétrographiques (rhyolitique [Td-J ; Td-L] et dacitique-andésitique [Bogács]) avec la présence de pyroxènes. Les ignimbrites mixtes de ponce-scorie contenant des ponces disposées en bandes sont courantes (Bogács ; Fig. I-26). Des dépôts phréatomagmatiques avec des lapillis accrétionnaires et des dépôts de coulées de débris associés sont également typiques de cette unité.

La partie inférieure de la section (unité de Bogács), qui est un dépôt d'écoulement pyroclastique de plus de 30 m d'épaisseur est caractérisée par des clastes juvéniles mixtes, précédemment interprété comme résultant de l'évacuation du réservoir de magma (Czuppon et al., 2012).

(3) **L'unité supérieure : L'unité de Harsány ou Tibolddaróc**

Elle s'identifie au niveau de la périphérie ouest (Demjén) et Est (Harsány, Tibolddaróc) du champ volcanique de Bükk et est composée d'ignimbrites rhyolitiques contenant du verre et des phénocristaux de plagioclase, de quartz, biotite et rarement de sanidine. Elle ne présente aucune rotation magnétique significative.

Les 3 successions (ignimbrite d'Harsány, Tibolddaróc et Demjén) comme celle de Bogács ont été tout particulièrement échantillonnées dans le cadre de cette étude pour des datations K-Ar détaillée (chapitre VI).

Unit	Volcanology	Petrology	Max. observed thickness	Geochemistry	Lithology
Harsány ignimbrite	Pumiceous block-bearing lapilli tuff- unwelded ignimbrite	Plagioclase, biotite, quartz, sanidine,oxyde	40m	bimodal pumices: high-Si rhyolite $^{87}Sr/^{86}Sr_i$ ~**0.7073** and **0.7079**; Zr £Hf ~ -1.9	
Tiboldaroc	Fine lapilli tuff and tuff formed by pyroclastic flow and fall	Plagioclase, biotite, quartz, sanidine, oxyde	1.5m	Rhyolite	
Demjen ignimbrite	Pumiceous block-bearing lapilli tuff & tuff - unwelded to slightly welded ignimbrite, ash-flow and occasional accretionary lapilli - bearing phreatomagmatic/magmatic fall deposit	Plagioclase, biotite, (quartz)	50m	Dacite- Rhyodacite Pumice $^{87}Sr/^{86}Sr_i$ ~**0.7073** ; Zr £Hf ~ +0.3	
Td-J	fine tuff formed by pyroclastic fall	Plagioclase, biotite, quartz	0.5m	Rhyolite Zr £Hf ~ -0.9	
Td-L	accretionnary lapilli-bearing tuff-phreatomagmatic/magmatic fall deposit	Plagioclase, biotite, quartz	0.4m	Rhyolite	
Bogacs	It consits of two submits: (1) a lower unwelded followed by fiamme bearing welded ignimbrite overlain by (2) mixed scoria-pumice bearing pyroclastic flow deposit with intercalated fall layer	Plagioclase, biotite, quartz, amphibole, orthopyroxene,	70m	mixed clasts: andesite-dacite Pumice $^{87}Sr/^{86}Sr_i$ ~**0.7113**; Zr £Hf ~ -8.95	
Mango ignimbrite	Pumiceous block-bearing lapilli tuff & tuff - unwelded ignimbrite occasionally, interbedded with fiamme-bearing welded ignimbrite; lapilli tuff and tuff with occasionally lapilli-phreatomagmatic/magmatic flow/surge and fall deposits	Plagioclase, biotite, quartz, (sanidine)	250m	Rhyolite, Pumice $^{87}Sr/^{86}Sr_i$ ~**0.7097** ; Zr £Hf ~ -7.7	
Eger ignimbrite	Pumiceous block-bearing lapilli tuff & tuff - unwelded ignimbrite	Plagioclase, biotite, quartz	30m	Rhyolite, Pumice $^{87}Sr/^{86}Sr_i$ ~**0.7090** ;	
Csv-2	Pumiceous lapilli tuff-unwelded ignimbrite	Plagioclase, biotite, quartz, (sanidine)	40m	Rhyolite Zr £Hf ~ -7.8	

13 Ma

Ages Evolution

18.5 Ma

Fig. I-26 : Generalized volcanostratigraphy of the Bükkalja Volcanic Field with the main units, summarizing the new age results, volcanology, petrography and geochemistry published in this paper and in earlier studies (volcanology, thickness data: Szakács et al., 1998; Less et al., 2005; Lukács et al., 2009, 2010, 2015; Czuppon et al., 2012; https://map.mfgi.hu/fdt100/; Sr-isotopic data: Seghedi et al., 2004; Harangi and Lenkey, 2007). Intercalated sedimentary deposits or discontinuity surfaces can be observed between the distinguished units as indicated by gaps between them. Tibolddaróc unit is defined here as comprising the Td-E and Td F layers described by Lukács et al. (2015). Medians of epsilon Hf values are given for the units, where available. Modified from Lukács et al., 2018.

I.3.2 Le complexe de Börzsöny

I.3.2.1 Contexte géologique

Les volcans de Börzsöny (Fig. I-6A; Fig. I-27 et Fig. I-28), au nord de la Hongrie, appartiennent à l'arc volcanique calco-alcalin du Mio-Pléistocène des Carpates (Downes and Vaselli, 1995). L'activité volcanique de 16.5 à 14 Ma a créé un champ volcanique multiple (Karátson et al., 2000) composé de strato-édifices de taille moyenne avec de petites calderas (« Paléo- Börzsöny »), des dômes de lave dispersés, et un complexe de dôme de lave central relativement important « High Börzsöny » ; (Karátson et al., 2000).

L'activité volcanique est initié au niveau de ce complexe dans un environnement marin peu profond (Báldi and Kókay, 1970; Karátson et al., 2000) qui, par la suite, a progressivement migré vers un volcanisme subaériens pour le reste du complexe (Karátson et al., 2001; Karátson and Nemeth, 2001). La carte géologique simplifiée de ce complexe volcanique Miocène (Fig. I-27) regroupe son édification en 3 stades majeurs avec des dépôts caractéristiques (Karátson, 1995; Karátson et al., 2000). Les dépôts du premier stade (16.5-16 Ma ; « Paléo-Börzsöny ») sont répandus et se situent sur les terrains périphériques en position topographique basses (400–600 m au-dessus du niveau de la mer ; Fig. I-28). Ils sont constitués majoritairement de dacites à amphibole, à biotite et à grenat et, sont interprétées comme dérivées de dômes de lave plus ou moins exposés, et des dépôts volcanoclastiques dacitiques riches en ponce, grenat. Les produits du deuxième (16.0-14.5 Ma) et du troisième stade (14.5-13.7 Ma) sont principalement représentés par de petits dômes de lave et des coulées de lave, parmi lesquels le complexe de dômes «High Börzsöny» présentant en son sommet une dépression érosionnelle importante (Fig. I-27 et Fig. I-28).

Les produits volcaniques comprennent, par ordre chronologique, les ponces dacitiques, de vastes dépôts de coulées de débris, et des coulées de lave et dômes de lave ; ces derniers, principalement associés à des dépôts de cendres (Karátson, 1995; Karátson et al., 2000). Des failles et des soulèvements tectoniques importants (Balla, 1978) ainsi qu'une érosion totale de ~500 m (Karátson, 1996, 1999) ont entraîné une dégradation considérable des reliefs volcaniques d'origine ce qui rend la reconnaissance des paléo-structures de l'édifice extrêmement difficile (Fig. I-28).

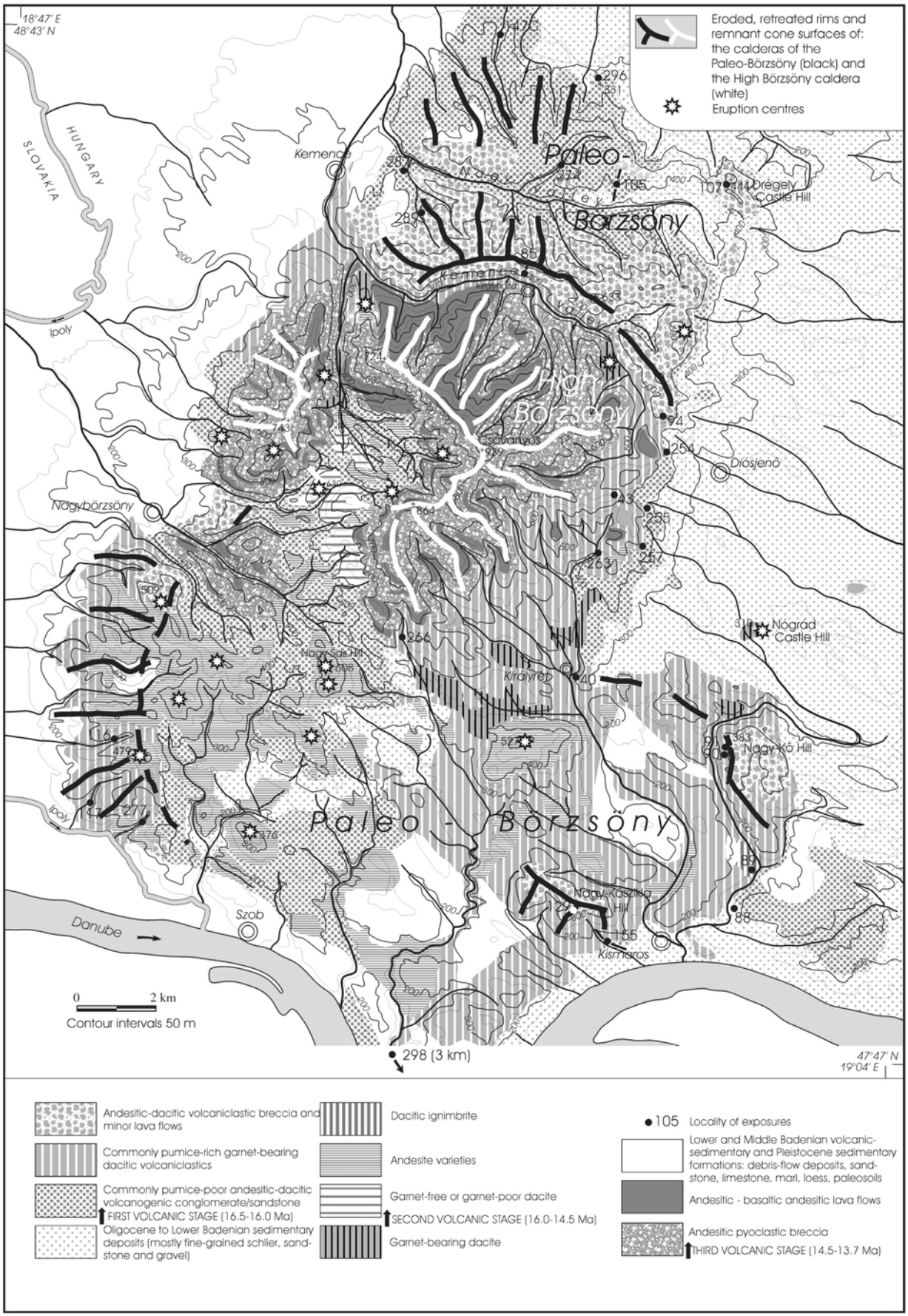


Fig. I-27: Simplified volcanological map of the Börzsöny Mts. with volcanic rocks (Karátson et al., 2000).

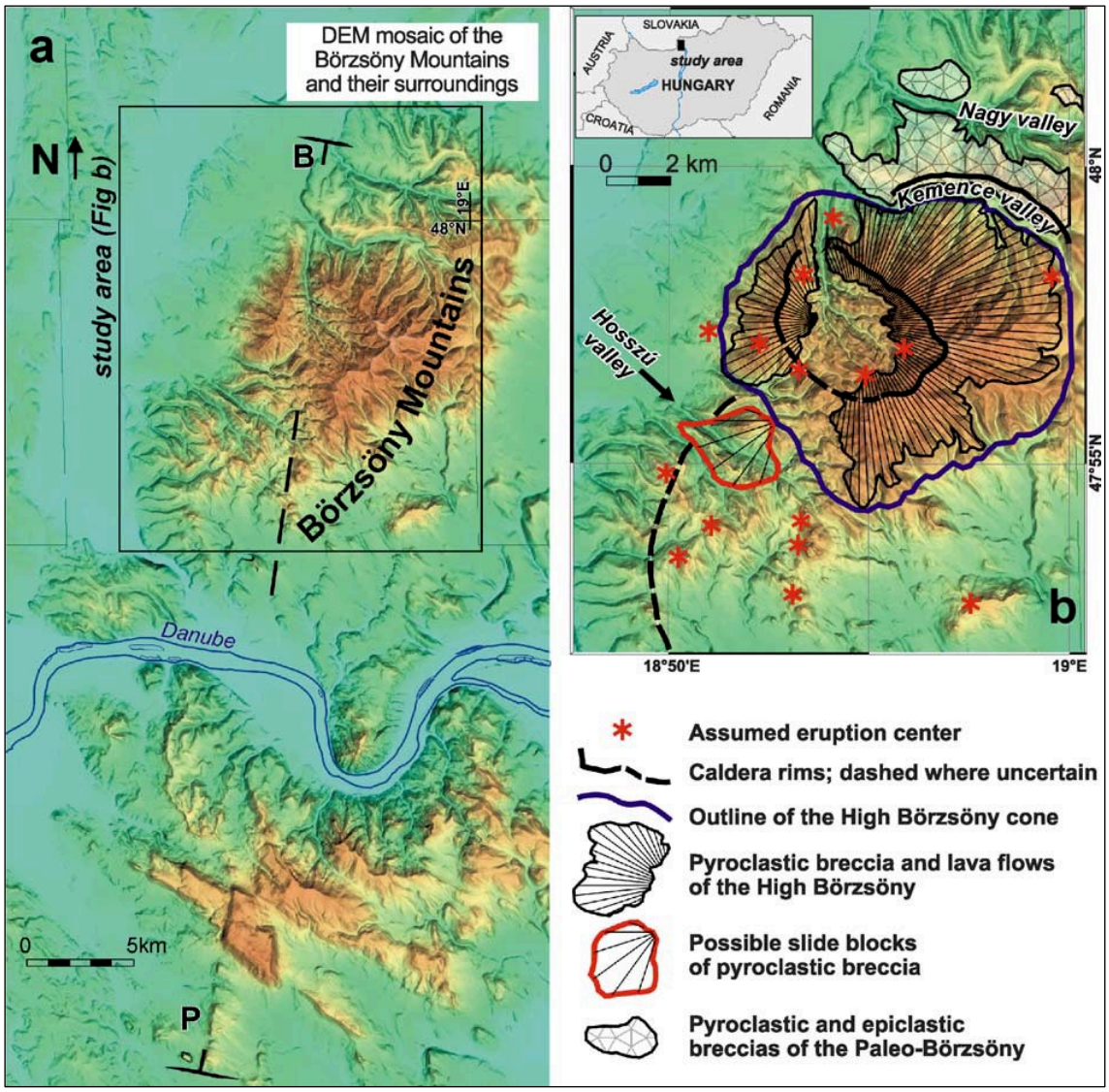


Fig. I-28 : Location and major features of the Börzsöny Mts. Insert map shows the location of the study area in Hungary. (a) Shaded relief DEM mosaic of the Börzsöny Mts. and their surroundings showing the study area. P–B line indicates the Piliscsaba–Bernecebara´ti line. (b) Simplified volcanology and volcanic geomorphology of the study area. Data integration is based on the methods of Timar et al. (2002)

L'édifice volcanique andésitique central (« High Börzsöny »), qui a une dépression d'érosion sommitale de 3 à 5 km de diamètre, est le résultat d'une dégradation importante, c'est-à-dire d'un retrait érosif de la caldera/cratère d'origine et d'effets tectoniques. L'édifice a d'abord été reconstruit en tant que strato-volcan par (Balla, 1978) et, plus récemment, en un complexe de dômes de lave multiples par (Karátson et al., 2000; Fig. I-28). Les coulées de lave, les brèches d'effondrement de dôme et les dépôts d'écoulement de blocs et de cendres proximaux sont les seuls dépôts volcaniques dans la région du volcan profondément érodé (Karátson et al., 2000). Au nord, le bord de la caldera Paléo- Börzsöny (vallée de Kemence ; Fig. I-28) est composé principalement de laves et de brèches pétrographiquement identiques à celles des andésites basiques de l'édifice central « High Börzsöny » (Karátson et al., 2000; Karátson and Németh, 2001).

Table des Figures Chapitre I :

FIG. I-1: GENERAL VIEW OF EASTERN ALPINE-CARPATHIAN-PANNONIAN BASIN REGION (FROM SALTERS ET AL., 1988). MODIFIED AFTER (LILLIE ET AL., 1994; ŠIMONOVA, 2017). 24

FIG. I-2: OVERVIEW OF THE CIRCUM-MEDITERRANEAN OROGENIC BELT WITH THE POSITIONS OF PRESENT-DAY DEFORMATION FRONTS AND SUBDUCTION ZONES (MODIFIED AFTER CAVAZZA ET AL. 2004). TRACES OF OCEANIC SUTURES IN THE EASTERN MEDITERRANEAN ARE MODIFIED AFTER (STAMPFLI AND BOREL, 2004), IN THE ALPS, CARPATHIANS AND DINARIDES AFTER (SCHMID ET AL., 2004, 2008), IN THE PYRENEES AFTER (DEWEY ET AL., 1973). TOPOGRAPHY AND BATHYMETRY ARE FROM THE ETOPO5 DATASET (NOAA, 1988). CONTINENTAL SHELF AREAS ARE LIGHT GREY (LESS THAN 2000 M WATER DEPTH); AREAS OF THINNED CONTINENTAL OR OCEANIC CRUST ARE DARK GREY (GREATER THAN 2000 M WATER DEPTH). FROM (USTASZEWSKI ET AL., 2008) 27

FIG. I-3: VUE GLOBALE DES CARPATES PANNONIENNES. MODIFIEE SELON (KARATSON AND NEMETH, 2001)..... 27

FIG. I- 4: PHASES DE L'EVOLUTION GEODYNAMIQUE DE LA CHAINE DES CARPATES PANNONIENNES : MODIFIE D'APRES SEGHEDI ET AL. (2004A) 29

FIG. I-5: SCENARIO D'EVOLUTION DE LA CHAINE ET VOLCANISME A LA FIN DU CENOZOÏQUE D'APRES CLOETINGH ET AL. (2005) 30

FIG. I-6: A : VOLCANISME ET AFFINITE LE LONG DE LA CHAINE ; B: CORRELATION VOLCANISME ET EVENEMENTS TECTONIQUES MAJEURS SELON (HARANGI AND LENKEY, 2007)..... 32

FIG. I-7: A, B, C, D ; DIAGRAMME SiO_2 VS K_2O DONNEES MODIFIES D'APRES (SEGHEDI, 2004) FOR CARPATHIANS–PANNONIAN REGION VOLCANIC ROCKS; SYMBOLS: A: WESTERN CARPATHIANS: 1—BÜKK RHYOLITES; 2—BÖRZSÖNY; B : NORTH EASTERN SEGMENT: DEJ RHYOLITES; TOKAJ; BEREGOVO; GUTINSKI; GUTAI; C : SOUTH-EASTERN SEGMENT: CALIMANI; SOUTH HARGHITA; D : APUSENI MTS: APUSENI; ALKALIC BASALTS (AB): [PERSANI AND BANAT ALKALIC BASALTS; LITTLE HUNGARIAN PLAIN, BALATON AND NOGRAD – NOVOHRAD ALKALIC BASALTS]. DATA FROM SALTERS ET AL. (1988), EMBEY-ISZTIN ET AL. (1993), DOBOSI ET AL. (1995), DOWNES ET AL. (1995A, B), HARANGI ET AL. (1995, 2001), MASON ET AL. (1996), SEGHEDI ET AL. (2001) 33

FIG. I-8: CARPATHIAN RANGE WITH AVAILABLE VOLCANIC AREAS MODIFIED AFTER LILLIE ET AL. (1994). LEGEND IS THE SAME AS (FIG. I-1) 34

FIG. I-9: A ; DIAGRAMME SiO_2 VS. K_2O (PECCERILLO AND TAYLOR, 1976) DES ROCHES DES CARPATES ORIENTALES, B; SiO_2 VS K_20+Na_2O (BAS ET AL., 1986) MODIFIÉS D'APRÈS (SEGHEDI AND DOWNES, 2011) 36

FIG. I-10: (A) LOCATION OF THE CĂLIMANI-GURGHIU-HARGHITA (CGH) VOLCANIC RANGE WITHIN THE TECTONIC MAP OF THE EASTERN CARPATHIANS (COMPILED FROM MATENCO ET AL., 2010; SĂNDULESCU, 1984; SCHMID ET AL., 2008). (B) INTERPRETATIVE CROSS-SECTIONS THROUGH THE POST-COLLISIONAL ENVIRONMENT OF THE CGH, INCLUDING MAGMATIC SYSTEM (AFTER SEGHEDI ET AL.,2019). 37

FIG. I-11: 01 – CENTRAL CĂLIMANI INCLUDING RUSCA-TIHU CONES LUCACIUL, TĂMĂUL AND CĂLIMANI CALDERA; 02 – MOLDOVANUL. GURGHIU SECTOR (GREEN OUTLINE): 03 - JIRCA; 04 – FÂNCEL-LĂPUȘNA, INCLUDING CONES FÂNCEL (04A) AND OBARSIA (04B); 05 –BACTA; 06 – SEACA-TĂTARCA; 07 – CIUMANI; 08 – BORZONT; 09 – ȘUMULEU INCLUDING CONE ȘUMULEU (09A) AND VF. ASCUȚIT (09B). NORTH HARGHITA) SECTOR (BLUE OUTLINE): 10 – OSTOROȘ; 11 – IVO-COCOIZAȘ; 12 – RÂCHITIS; 13A – VÂRGHIȘ AND 13B – SZELES VÉSZE CONE. SOUTH HARGHITA SECTOR (YELLOW OUTLINE): 14 – LUCI-LAZU (14A AND 14B); 15 – CUCU; 16 – PILIȘCA; 17 –CIOMADUL LAVAS DOMES (DIBACTO ET AL., 2020) 39

FIG. I-12: A) DIAGRAME SiO_2 VS K_20+Na_2O DES ROCHES DE CGH, B) SiO_2 VS. K_2O. MODIFIÉ D'APRÈS (SEGHEDI AND DOWNES, 2011) 40

FIG. I-13 : TRACE ELEMENT SPECTRA OF THE CALIMANI-GURGHIU-HARGHITA RANGE NORMALIZED TO PRIMITIVE MANTLE VALUES (SUN AND DONOUGH, 1989). MEDIAN VALUES AND IQR = 0.25-0.75 INTERVALS ARE SHOWN FOR EACH VOLCANIC AREA (ACC. TO SEGHEDI ET AL., 2017). 41

FIG. I-14: GEOPHYSICAL GRAVITY MAPS: (A) BOUGUER ANOMALY, (B) RESIDUAL GRAVITY ANOMALY, (C) HORIZONTAL GRADIENT OF THE RESIDUAL GRAVITY ANOMALY, (D) VERTICAL GRADIENT OF THE RESIDUAL GRAVITY ANOMALY. BOUGUER CORRECTION RADIUS IS 20 KM, KRIGING INTERPOLATOR WITH CELL SIZE OF 5×5 KM, DTM MAP SCALE 1:100000, PROJECTION SYSTEM STEREO 1970, ALTITUDE DATUM BLACK SEA 1975, (E) TECTONIC FEATURES OF THE CGH (COMPILED AFTER SEGHEDI ET AL., 1994; FIELITZ AND SEGHEDI, 2005; KRÉZSEK AND BALLY, 2006; SZAKÁCS AND KRÉZSEK, 2006). THE FAULT REPRESENTED IN LIGHT BLUE IS ASSOCIATED WITH SALT DIAPIRS; DEEP BLUE COLOUR CORRESPONDS TO STRIKE SLIP FAULTS; VIOLET CORRESPONDS TO NORMAL FAULTS AFTER SEGHEDI ET AL., 2019 43

FIG. I-15: SIMPLIFIED VOLCANIC FACIES MAP OF THE CALIMANI-GURGHIU-HARGHITA VOLCANIC RANGE (ACC.TO SZAKACS & SEGHEDI, 1995). LEGEND: 1: EAST CARPATHIANS BASEMENT; 2: TRANSYLVANIAN BASIN FORMATIONS; 3: SUBVOLCANIC INTRUSIONS;4: INTRA-MOUNTAIN BASINS; VOLCANIC EDIFICE; 5: CENTRAL FACIES; 6: PROXIMAL FACIES; A: DOMINANTLY EFFUSIVE; B: DOMINANTLY EXPLOSIVE 7: MEDIAL DISTAL FACIES; 8: VOLCANIC CENTER; 9: CALDERA/CRATER RIM. 44

FIG. I-16: GEOLOGIC SKETCH MAP OF THE TRANSYLVANIAN BASIN (COMPILED AFTER CIUPAGEA ET AL., 1970) WITH LOCATION OF 2D TRAVEL-TIME SEISMIC PROFILES (A–B, D–E, F–G) AFTER SZAKÁCS AND KRÉZSEK, 2006.45

FIG. I-17: CARTOONS SHOWING A MODEL OF GEOLOGICAL EVOLUTION WITH SNAPSHOTS BEFORE (A) AND AFTER (B) VOLCANO–BASEMENT INTERACTION IN THE EASTERN TRANSYLVANIAN BASIN AFTER SZAKÁCS AND KRÉZSEK, 2006 46

FIG. I-18: SIMPLIFIED VOLCANOLOGICAL SKETCH MAP OF THE CĂLIMANI AND NORTHERNMOST GURGHIU MOUNTAINS (ACCORDING TO SEGHEDI & SZAKÁCS IN SZAKÁCS & SEGHEDI 1996) 1 — PRE-VOLCANIC BASEMENT (A — IN THE INTERIOR OF THE VOLCANIC AREA); 2 — EARLY INTRUSIONS (BASALTIC-ANDESITES, ANDESITES, MICRODIORITES); 3 — DRĂGOIASA FORMATION (DACITES, RHYOLITES); 4 — LOMAŞ FOR- MATION (LOW-K ANDESITES AND DACITES); 5 — BUDACU FORMATION (ANDESITES); 6 — SĂRMAŞ BASALT LAVAS; 7 — RUSCA-TIHU STRATOVOLCANIC EDIFICE (BASALTIC ANDESITES AND ANDESITES); 8 — APHYRIC ANDESITE LAVAS; 9 — RUSCA-TIHU DEBRIS AVALANCHE DEPOSIT; 10 — RUSCA-TIHU VOLCANICLASTIC FORMATION WITH LAVA INTERCALATIONS (ANDESITES, BASALTIC ANDESITES); 11 — PERIPHERAL DOMES (ANDESITES AND DACITES); 12 — CĂLIMANI CALDERA LAVA FLOWS (ANDESITES); 13 — POST-CĂLIMANI-CALDERA ROCKS: A — MONZODIORITES, DIORITES, B — ANDESITES, DACITES; 14 — UPPER PLIOCENE-QUA- TERNARY SEDIMENTARY BASINS; 15 — JIRCA VOLCANIC EDIFICE: A — ANDESITES, B — DIORITES; 16 — FÂNCEL-LĂPUŞNA PRE-CALDERA ROCKS: A — VOLCANICLASTICS, B — ANDESITE AND BASALTIC ANDESITE LAVAS; 17 — FÂNCEL-LĂPUŞNA VOLCANICLASTIC FORMATION (ANDESITES, DACITES); 18 — A — CALDERA RIM ACCORDING TO PRESENT TOPOGRAPHY, B — CRATER RIM ACCORDING TO PRESENT TOPOGRAPHY; 19 — VOLCANIC VENT 47

FIG. I-19: GURGHIU : 03 - JIRCA ; 04 – FANCEL-LAPUSNA, INCLUDING CONES FANCEL (04A) AND OBARSIA (04B); 05 –BACTA; 06 – SEACA-TATARCA; 07 – CIUMANI; 08 – BORZONT; 09 – ŞUMULEU INCLUDING CONE ŞUMULEU (09A) AND VF. ASCUTIT (09B) 49

FIG. I- 20: NORTH HARGHITA SECTOR: 10 – OSTOROȘ; 11 – IVO-COCOIZAȘ; 12 – RÂCHITIS; 13A – VÂRGHIȘ AND 13B – SZELES VÉSZE CONE 50
FIG. I-21: SOUTH HARGHITA SECTOR: 14 – LUCI-LAZU (14A AND 14B); 15 – CUCU; 16 – PILIȘCA; 17 –CIOMADUL LAVAS DOMES 51
FIG. I-22 : COMPLEXE VOLCANIQUE DE CIOMADUL AVEC LES DIFFERENTS DOMES DE LAVES 53
FIG. I-23: SIMPLIFIED TIME SEQUENCE OF THE MAIN VOLCANIC EDIFICES AND MAJOR EVENTS IN THE EVOLUTION OF THE CGH RANGE (DAD RUNOUT DISTANCE ARE SHOWN BY DASHED ARROWS). MODIFIED AFTER SEGHEDI ET AL., 2017 54
FIG. I-24:CARTE GEOLOGIQUE A L'ECHELLE 1/100 000 DES DEPOTS PYROCLASTIQUES SILICIQUES DU MIOCENE DES SECTEURS DE BÜKKALJA ET MATRA DU NORD DE LA HONGRIE SIMPLIFIE ; CARTE DE BASE : MAPS.MBFSZ.GOV.HU. (D'APRES MARTON ET AL.,2018) 56
FIG. I-25 : CARTE GEOLOGIQUE SZAKACS ET AL., 1998, BASE SUR LA CARTE DE 1964 DE BALOGH PRESENTANT DIFFERENTS AFFLEUREMENTS AINSI QUE LEUR STRATIGRAPHIE TOUT LE LONG DE BÜKKALJA (MODIFIED FROM MARTON ET AL., 2018) 57
FIG. I-26 : GENERALIZED VOLCANOSTRATIGRAPHY OF THE BÜKKALJA VOLCANIC FIELD WITH THE MAIN UNITS, SUMMARIZING THE NEW AGE RESULTS, VOLCANOLOGY, PETROGRAPHY AND GEOCHEMISTRY PUBLISHED IN THIS PAPER AND IN EARLIER STUDIES (VOLCANOLOGY, THICKNESS DATA: SZAKÁCS ET AL., 1998; LESS ET AL., 2005; LUKÁCS ET AL., 2009, 2010, 2015; CZUPPON ET AL., 2012; HTTPS://MAP.MFGI.HU/FDT100/; SR-ISOTOPIC DATA: SEGHEDI ET AL., 2004; HARANGI AND LENKEY, 2007). INTERCALATED SEDIMENTARY DEPOSITS OR DISCONTINUITY SURFACES CAN BE OBSERVED BETWEEN THE DISTINGUISHED UNITS AS INDICATED BY GAPS BETWEEN THEM. TIBOLDDARÓC UNIT IS DEFINED HERE AS COMPRISING THE TD-E AND TD F LAYERS DESCRIBED BY LUKÁCS ET AL. (2015). MEDIANS OF EPSILON HF VALUES ARE GIVEN FOR THE UNITS, WHERE AVAILABLE. MODIFIED FROM LUKÁCS ET AL., 2018. 59
FIG. I-27: SIMPLIFIED VOLCANOLOGICAL MAP OF THE BÖRZSÖNY MTS. WITH VOLCANIC ROCKS (KARÁTSON ET AL., 2000). 61
FIG. I-28 : LOCATION AND MAJOR FEATURES OF THE BÖRZSÖNY MTS. INSERT MAP SHOWS THE LOCATION OF THE STUDY AREA IN HUNGARY. (A) SHADED RELIEF DEM MOSAIC OF THE BÖRZSÖNY MTS. AND THEIR SURROUNDINGS SHOWING THE STUDY AREA. P–B LINE INDICATES THE PILISCSABA–BERNECEBARA´TI LINE. (B) SIMPLIFIED VOLCANOLOGY AND VOLCANIC GEOMORPHOLOGY OF THE STUDY AREA. DATA INTEGRATION IS BASED ON THE METHODS OF TIMAR ET AL. (2002) 62

Chapitre II
L'érosion et sa dynamique

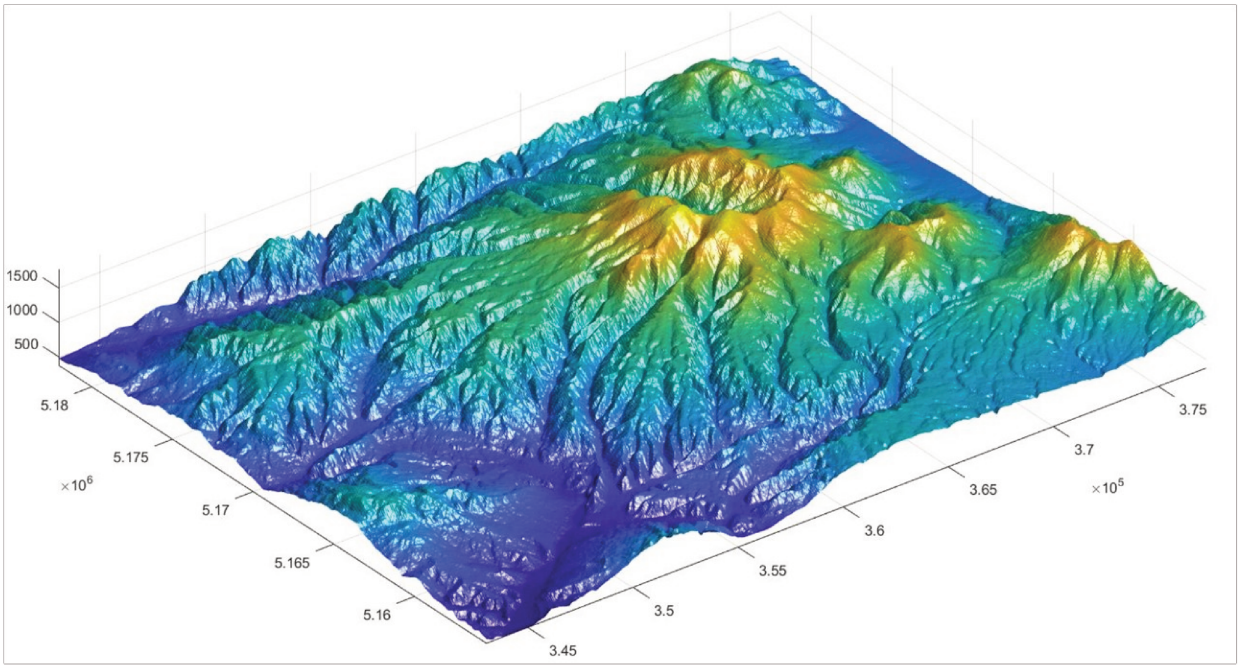


Fig. II-1: 3D view of Seaca-Tatarca volcano of the CGH volcanic range

Afin de comprendre la dynamique de l'érosion dans sa globalité, et en particulier en milieu volcanique, il faut dans un premier temps, la définir, identifier les différents types d'érosion existant et les paramètres qui contrôle son comportement à court, moyen et long terme. Dans un second temps, on pourra exposer les différentes approches permettant sa quantification, en insistant sur le bénéfice que l'on peut retirer du contexte volcanique.

SOMMAIRE

II.1 L'EROSION 68
II.1.1 Généralités *68*
II.1.1.1 L'altération 68
II.1.1.2 Erosion sens strict 69
II.1.1.3 Dénudation 69
II.2 AGENTS D'EROSION 70
II.2.1 Erosion par eau de ruissellement *71*
II.2.2 Erosion éolienne *71*
II.2.3 Erosion par thermoclastie *71*
II.2.4 Erosion hydrothermale (hydrothermalisme) *72*
II.3 INTERACTION CLIMAT- TECTONIQUE- COUVERT VEGETAL- EROSION 73
II.3.1 Interaction tectonique érosion *73*
II.3.2 Interaction climat érosion *74*
II.3.3 Interaction couvert végétal (plantes et activité microbienne) érosion *76*
II.4 EROSION EN MILIEUX VOLCANIQUES 77
II.5 METHODE DE QUANTIFICATION DE L'EROSION 82
II.5.1 Définition *83*
II.5.2 Approches isotopiques *83*
II.5.2.1 Utilisation des cosmogéniques pour quantifier les taux de dénudation 83
II.5.2.2 Utilisation des techniques radiométriques 85
II.5.3 Approche géochimique *86*
II.5.4 Approche numérique *88*
II.6 L'EROSION DANS LES CARPATES PANNONIENNES : CAS DU SEGMENT CGH 93

II.1 L'érosion

II.1.1 Généralités

L'érosion est l'un des processus géomorphologiques majeurs responsable de l'évolution morphologique de la surface de la Terre. Elle se définit par l'ensemble des phénomènes externes qui, à la surface du sol ou à faible profondeur, enlèvent tout ou partie des terrains existants en modifiant ainsi le relief (Foucault and Raoult, 2005). Si la notion d'érosion au premier abord, peut paraître bien se conceptualiser, elle est en fait un peu plus subtile ; et dès lors, il me semble judicieux de préciser ce qu'il faudra entendre ici derrière ces trois concepts d'altération, d'érosion (sens strict) et dénudation qui peuvent parfois être assimilés à la même chose.

II.1.1.1 L'altération

L'érosion est initiée par une altération. En effet, la première étape de destruction des reliefs est plus formellement appelée altération. Il s'agit de l'ensemble des processus qui transforment ou dégradent la structure d'une roche et ses constituants, quand celle-ci approche suffisamment de la surface. Ainsi, on distingue communément deux grandes familles de processus d'altération, même si celles-ci sont très intimement liées (Fig. II-2 ; Gabet, 2007; Gabet and Mudd, 2009; Dixon et al., 2009):

— (1) l'altération chimique qui correspond à la transformation de minéraux instables dans les conditions de température, d'humidité, de taux d'oxygène ou d'acidité de la surface, en d'autre minéraux, et de la dissolution d'éléments les constituant. Elle se met en exergue sous l'effet de l'eau majoritairement.

— (2) l'altération physique qui correspond quant à elle à la désagrégation mécanique des formations géologiques via par exemple, des cycles de température jour/nuit et hiver/été, ou encore la formation de minéraux secondaires issus de l'altération chimique, qui peuvent agrandir progressivement par dilatation et rétractation, les défauts dans les jointures entre grains. Les cycles de gel/dégel de l'eau d'infiltration, les animaux fouisseurs et les racines des plantes peuvent également fracturer physiquement les roches.

Ces processus mécaniques présentent le plus souvent des ordres de grandeur beaucoup plus importants que les processus chimiques avec des effets pouvant atteindre l'ordre du millimètre par an (mm/an) là où les processus chimiques présentent des effets inférieurs au millimètre par siècle (Ollier, 1988). Par ailleurs, il existe une interaction permanente entre ces deux types de processus : l'altération chimique contribuant à la désagrégation et à la déstabilisation des formations quand l'‘altération mécanique, contribue au déblaiement des

produits de l'altération ce qui accélère ainsi le développement de l'altération sur des matériaux jusqu'alors protégées.

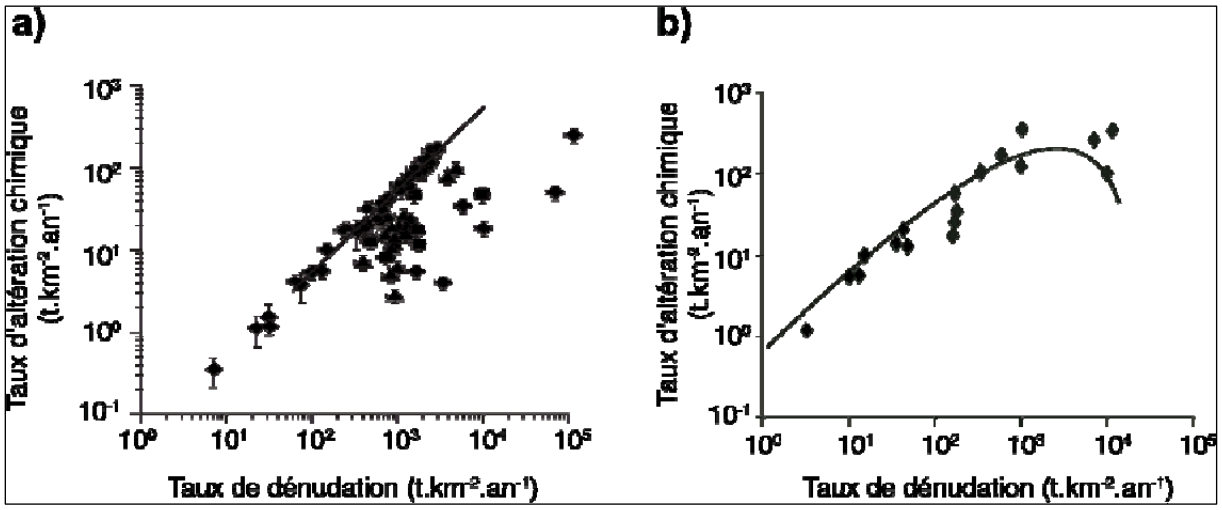


Fig. II-2: Couplage entre altération chimique et dénudation totale, modèles (courbes noires) et comparaison avec des données empiriques. a) *(Dixon et al., 2009)* ; b) *(Gabet and Mudd, 2009)*

II.1.1.2 Erosion sens strict

L'érosion au sens strict en elle-même consiste donc en la mobilisation des produits de l'altération, et leur transport vers des zones topographiques plus basses. Le principal agent de l'érosion à la surface de la Terre est l'eau liquide. La capacité d'érosion d'un ruissellement, d'un ruisseau, une rivière, un fleuve est la recherche d'un équilibre entre la puissance de son flux, due à la pente du relief et à la quantité d'eau, et la quantité de matière à transporter (Puchol, 2013). L'eau solide, sous forme de glaciers, est également un puissant agent d'érosion (voir section II.2). Dans les régions les plus arides ou pour les particules les plus fines, le vent peut aussi en être un agent non négligeable. Enfin, pour les reliefs les plus pentus (les flancs supérieurs de volcans, les parties sommitales autour de l'édifice par exemple), les roches peuvent subir une érosion plus marquée par mouvements de masses, comme les glissements de terrains (voir section II.2).

II.1.1.3 Dénudation

La dénudation est quant à elle la quantité totale de matière qui est enlevée de la surface de la croûte terrestre. Il s'agit donc de la somme de la matière retirée par l'érosion et des éléments dissous ou évaporés lors de l'altération chimique. Il existe des liens particulièrement nets entre la dénudation des reliefs, la géodynamique (c'est à dire les mouvements des roches entre elles, comme par exemple la convergence entre plaques tectoniques, ou la relaxation des reliefs sous leur propre poids), et le climat. Je vais présenter sommairement ces influences mutuelles dans

les paragraphes suivants (voir section II.3). On trouvera plus de références bibliographiques par exemple dans (Champagnac et al., 2012, 2014).
Tout au long de ce manuscrit, j'utiliserai donc préférentiellement les termes d'érosion et de dénudation.

Au cours de cette étude, notre travail a porté majoritairement sur les processus mécaniques d'érosion au niveau de la partie orientale de la chaîne des Carpates Pannoniennes (le segment volcanique Călimani-Gurghiu-Harghita [CGH]), un segment volcanique présentant des effets caractéristiques d'érosion comme des glissements, des effondrements, des écroulements et tout ceci associés généralement à un transport de matériel. Par conséquent, dans ce qui suit, nous considérerons comme processus érosifs uniquement les phénomènes qui participent à la destruction, et au démantèlement des édifices volcaniques (l'érosion mécanique) et leurs produits d'altération.

L'érosion se produit sur l'ensemble du globe et dans tous les environnements géologiques (volcaniques, métamorphiques, sédimentaires et autres), déclenchée par différent agents pouvant être naturel (rivières, glacier, vent, lahars etc.) ou même anthropique. Elle se compose grossièrement de trois phases distinctes (Fig. II-3) :

— une phase de destruction de la formation ou du matériel rocheux.

— une phase de transport faisant intervenir divers agents de transport (surtout l'eau à l'état liquide et solide, et le vent).

— une phase d'accumulation qui en fonction de la taille des éléments transportés et leur mode d'ordonnancement, nous renseigne sur l'agent de transport ayant contribué à son accumulation.

II.2 Agents d'érosion

En fonction des agents responsables de l'érosion, on distingue différentes formes d'érosion : à savoir, l'érosion par l'eau, éolienne, par thermoclastie, biologique (micro-organismes), ou hydrothermale. Ces différentes formes interviennent à grande échelle de temps, pouvant atteindre des centaines de milliers à millions d'années.

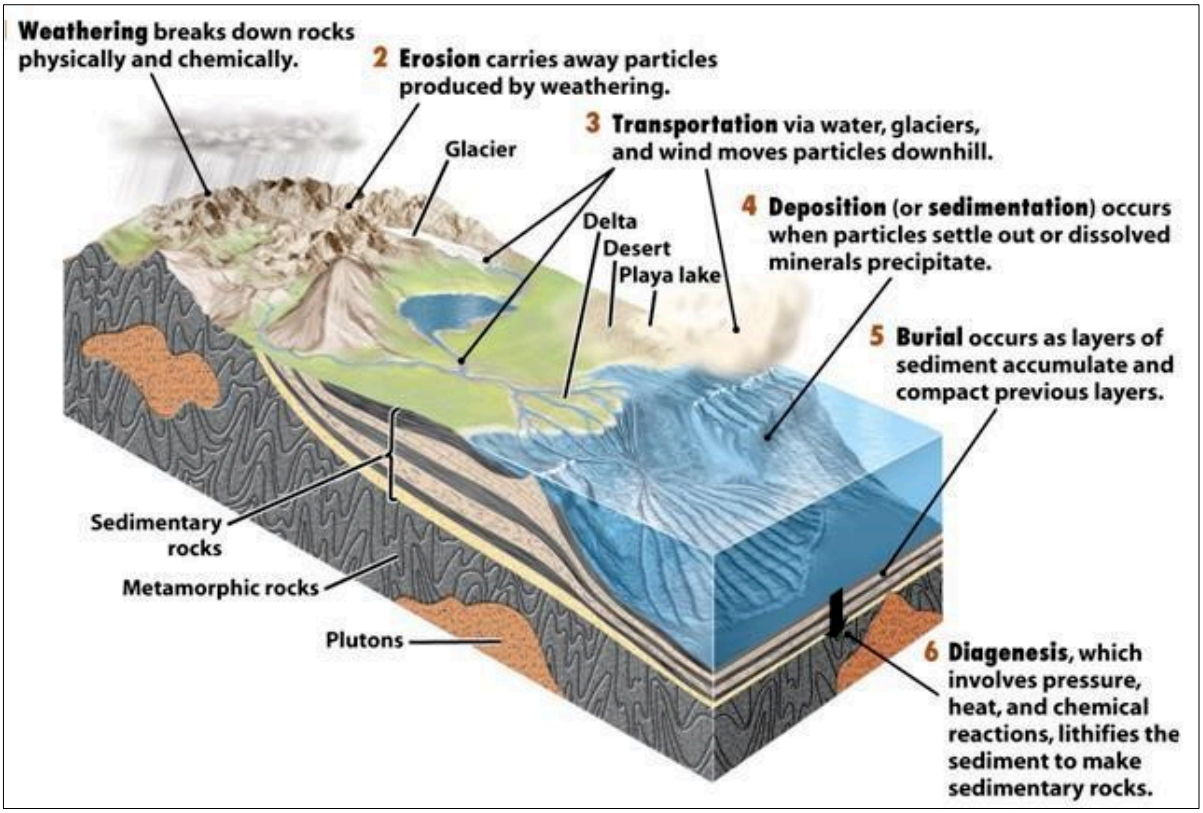


Fig. II-3: Representation of the erosion behaviour (https://www.pinterest.fr/pin/505669864384586537/)

II.2.1 Erosion par eau de ruissellement

L'érosion hydraulique est à la fois induite par des processus d'altération mécanique et chimique. Elle dépend principalement de la force d'écoulement, influencée par son régime, son débit, sa pente et bien évidemment par la composition de l'eau qui impacte sur son acidité (pH). Cette forme d'érosion, et notamment le ruissellement, représente la forme la plus répandue sur le système Terre. Le ruissellement pouvant être concentré sous forme de cours d'eau torrentielle, ou diffus, alimenté par la fonte des neiges et l'érosion littorale (Fig. II-3).

II.2.2 Erosion éolienne

L'érosion éolienne quant à elle correspond au phénomène de dégradation des roches sous l'action du vent par abrasion, déflation ou polissage de la surface. Ce mode de transport sera surtout sensible dans les régions où les sols et les roches ne sont pas protégés par un couvert végétal donc dans les régions arides (chaudes ou froides ; Fig. II-3). Logiquement, elle sera d'autant plus intense que l'agent moteur (vent) sera fort, régulier sur de longues périodes, et chargé en particules. L'érosion éolienne sera aussi influencée par la nature du sol (texture) et la topographie (reliefs importants, ou plaines ; Fig. II-3 ; voir détail dans section II.3.2 et II.3.3).

II.2.3 Erosion par thermoclastie

L'érosion par thermoclastie correspond principalement à un processus de désagrégation mécanique des roches sous l'effet des différences d'amplitudes thermiques et leur vitesse. En

effet, une oscillation de température supérieure à 2 °C/min est proposée comme seuil de réponse élastique des minéraux ; au-delà, des microfissures apparaissent progressivement par fatigue de la structure cristalline (Bahr et al., 1986). Les réponses différentielles (contraction/dilatation) des minéraux à ces changements de températures provoquent la fissuration, la fracturation de la roche et l'apparition d'écailles de desquamation ou tout simplement l'éclatement pure et simple de la roche (Fig. II-4A, B) à différentes échelles (de l'échelle microscopique à macroscopique). Elle comprend les effets de cryoclastie et fait donc intervenir l'eau (état solide et liquide) comme agent d'érosion en présence de roches poreuses (cavités) et/ou fissurées (Fig. II-3 ; Fig. II-4A & B).

En fonction de la densité des fractures induites, le transport des matériaux fracturés sera différent. En présence donc de fractures nombreuses, l'eau sous forme de glace agira comme un ciment maintenant la cohésion des matériaux de sorte que, c'est durant le dégel que la fracturation prendra réellement effet et que les matériaux fracturés pourront être déblayés par les processus gravitaire ou de ruissellement.

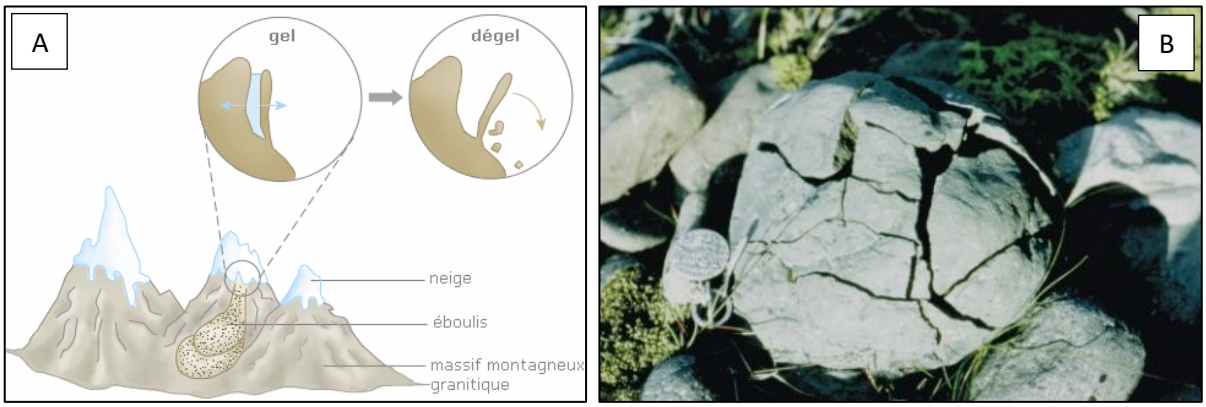


Fig. II-4: Crioclasts resulting from the effect of the gel,

II.2.4 Erosion hydrothermale (hydrothermalisme)

L'érosion hydrothermale ou hydrothermalisme quant à elle est un type particulier se produisant le plus souvent en domaine magmatique (volcanique et/ou plutonique) sous l'effet de la circulation souterraine d'une eau chaude chargée en ions dissous, favorisée par une source de chaleur (comme, la proximité d'un corps magmatique : exemple une chambre magmatique). Elle induira par conséquent une érosion chimique associée à des transformations de phases minéralogiques et des modifications des conditions de stabilités et/ou d'équilibre du protolhite (formation de départ) ou même de tout l'édifice en entier. D'ailleurs, elle serait aussi à l'origine

de la formation de nombreux minerais (cuivre, barytine et bien d'autres) en milieux volcaniques (gisements magmatiques).

La prédominance de l'un ou de l'autre de ces agents d'érosion sera donc en étroit lien avec les conditions climatiques (froid, sec), tectoniques (zones de compression, d'accrétion etc.) et la nature des sols. Ainsi donc, étudier l'erosion, c'est comprendre les interactions qui peuvent exister entre le climat et la géodynamique ce qui apporte des contraintes robustes dans sa quantification et surtout dans sa compréhension à court, moyen et long terme. Le lien entre erosion, climat et tectonique peut donc se révéler très complexe, comme souligné par (Molnar and England, 1990).

II.3 Interaction climat- tectonique- couvert végétal- érosion

II.3.1 Interaction tectonique érosion

Les effets de la tectonique ont un double impact sur l'érosion. Premièrement, ce sont les mouvements tectoniques qui créent des reliefs à éroder. Ce truisme n'est en fait pas qu'une lapalissade. En effet, à l'échelle globale, on observe que les taux de dénudation sont, en premier lieu, grossièrement corrélés aux pentes moyennes des bassins versant (Von Blanckenburg, 2005; Portenga and Bierman, 2011; Willenbring et al., 2013). Deuxièmement, la tectonique peut contribuer à fracturer des unités rocheuses par des réseaux de failles, ce qui a pour conséquence logique d'améliorer leur érodabilité.

Comme cela a été montré au niveau du contexte géodynamique (chapitre I), la tectonique régionale de la chaîne des Carpates Pannoniennes est de type subduction-collision donc compressive. C'est pour cela que nous nous focaliserons dans ce paragraphe que sur les interactions entre les systèmes « compressifs » et l'érosion.

L'activité tectonique génère des reliefs topographiques contrôlant les processus de surface qui agissent sur l'érosion, le système de drainage, les dépôts sédimentaires et le climat local. Elle influence ainsi la quantité et la taille des produits dans les bassins (Bourquin et al., 1998). D'après (Einsele, 1992), plus un relief est haut (position topographique élevée ; parties sommitales des volcans par exemple) plus la quantité de produits démantelée et transportée dans le bassin adjacent est élevée.

Les pentes et le drainage des sources caractérisent la forme et la taille des bassins versants. A l'exutoire de ces bassins versants, les rivières déposent leur charge sédimentaire sous la forme de cônes alluviaux, en domaine continental. L'érosion, le transport et la sédimentation provoquent en retour un transfert de masse à travers la chaîne modifiant l'équilibre dynamique

des orogenèses. Il est maintenant admis que l'érosion joue un rôle sur les structures compressives (Beaumont et al., 1992; Avouac and Burov, 1996; Laumonier et al., 1996) mais également sur leur géométrie et leur cinématique (Davis et al., 1983; Morley, 1988).

La pente est un des facteurs de premier ordre dans l'érosion des reliefs par les processus gravitaires et explique le rôle prépondérant des régions tectoniquement actives et des orogenèses récentes dans la génération des flux d'érosion mondiaux (Beaumont et al., 1992; Montgomery and Brandon, 2002) à l'échelle des bassins versants. Les relations entre la topographie et l'érosion montrent que les vitesses d'érosion augmentent progressivement avec la pente jusqu'à un certain seuil puis augmentent rapidement et non linéairement dans les pentes raides affectées par les glissements de terrains (Fig. II-5). Dans le cas des volcans, une érosion sera plus importante autour du sommet car dans cette partie du volcan, il présente des pentes beaucoup plus fortes ce qui favorise un ruissellement plus abrasif et par ricochet, un démantèlement plus intense. Aussi, au niveau des sommets on note une pluviométrie plus forte et dans des cas favorables une cryoclastie plus intense.

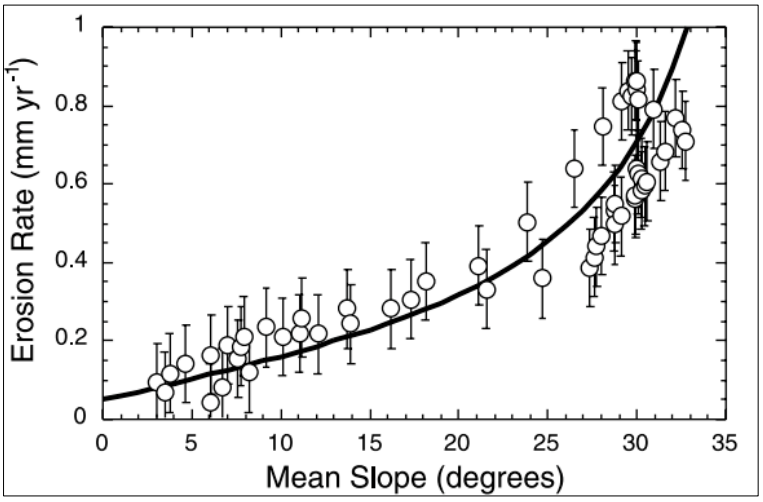


Fig. II-5: Relations observées entre la pente moyenne et la vitesse d'érosion des sols ; exemple 'un bassin versant situé dans les «Olympus Mountains »,USA (Montgomery and Brandon, 2002). L'apparition des glissements de terrain modifie la relation entre la pente et les vitesses d'érosion pour des inclinaisons supérieures à 25-30 ° (Montgomery and Brandon, 2002)

II.3.2 Interaction climat érosion

Le climat intervient directement et indirectement sur l'altération, l'érosion/ dénudation et le transport de matériel. Directement par l'intermédiaire des précipitations (pluie et neige), de la température et du vent (érosion éolienne), et indirectement par l'intermédiaire de la végétation (qui influence les processus d'altération, érosion et transport sur les versants et introduit un seuil d'érosion non-négligeable) (Fig. II-7).

Des températures plus élevées peuvent favoriser les taux d'altération chimique des minéraux (Dixon et al., 2009), tandis que des températures plus basses peuvent favoriser l'apparition de

glaciers. Au niveau des chaînes de montagne, l'érosion mécanique fluviale et glaciaire domine très nettement l'érosion chimique (Fig. II-6). S'agissant de l'érosion glaciaire, elle peut avoir un rôle prépondérant en terme de façonnement des reliefs, notamment en limitant l'altitude maximale de la topographie (Brozović et al., 1997; Whipple and Tucker, 1999; Whipple et al., 1999; Egholm et al., 2009) et en favorisant la formation de profondes et étroites vallées (Valla et al., 2011; Sternai et al., 2012; Pedersen and Egholm, 2013). Cependant, à une échelle régionale et sur le long terme, ils ne sont pas des agents plus puissants que les rivières (Koppes and Montgomery, 2009). Dans certains cas où les glaciers fluent particulièrement lentement (basses températures), ils peuvent même agir comme une protection pour les roches sous-jacentes (Thomson et al., 2010).

Les précipitations (tant leur quantité que leur distribution annuelle, continues ou très épisodiques) peuvent avoir dans certaines régions un contrôle important sur l'érosion (Thiede et al., 2004), en fournissant aux rivières l'énergie nécessaire au transport des matériels. Cependant, de manière contre-intuitive, elles n'ont, à l'échelle globale, qu'un rôle secondaire (voir les travaux ci-contre pour plus de détails ; Riebe et al., 2001; Burbank et al., 2003; Finnegan et al., 2008; Binnie et al., 2010; Henck et al., 2011; Portenga and Bierman, 2011); Molnar, 2009; Champagnac et al., 2012).

Le climat intervient aussi par le biais des variations à long terme du niveau marin induites par des variations de températures, entraînant la dilatation (ou la contraction) thermique des océans et la fonte des calottes glaciaires (Puchol, 2013) véritable agent de modification des paléogéographie.

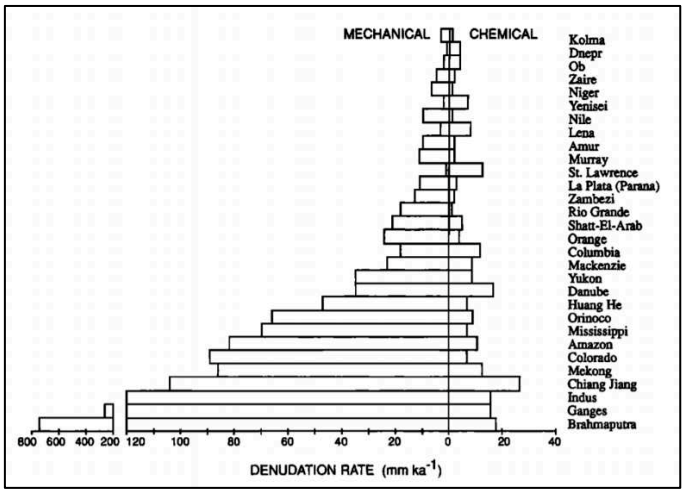


Fig. II-6: Erosion mécanique et chimique pour les plus grands bassins versants mondiaux. L'érosion mécanique est toujours plus importante que l'érosion chimique, et représente l'essentiel du taux de dénudation pour les bassins drainant. D'après (Puchol, 2013)

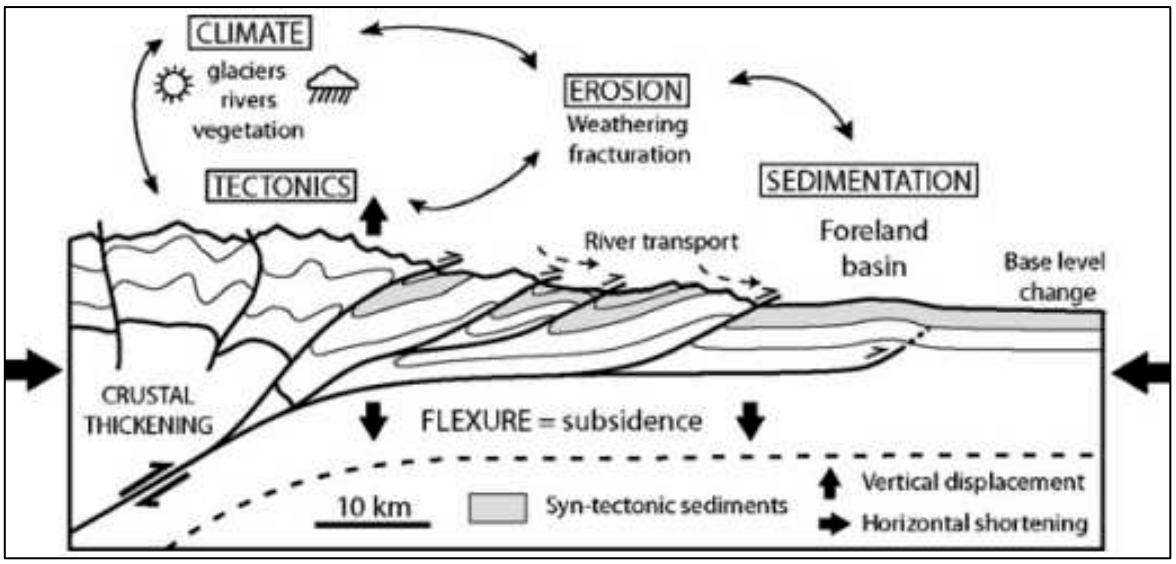


Fig. II-7: Coupe illustrant les couplages tectonique–érosion–sédimentation–climat (d'après Graveleau & Dominguez, 2008).

II.3.3 Interaction couvert végétal (plantes et activité microbienne) érosion

Le couvert végétal a un double effet sur l'érosion. Premièrement, il dégrade les reliefs (unités rocheuses) via les racines, ce qui a pour conséquence d'améliorer leur érodabilité. Deuxièmement il peut contribuer à stabiliser les sols (jouant le rôle de fixateur) contribuant du même coup à atténuer l'intensité de l'érosion (Rey et al., 2004).

Dans ce paragraphe nous nous focaliserons sur le rôle que joue le couvert végétal sur la déstabilisation des reliefs.

En effet, le rôle que joue le couvert végétal sur les taux d'altération à l'échelle du minéral, ou à l'échelle régionale est largement validé et mieux cerné depuis de nombreuses décennies (Drever, 1994; Bluth and Kump, 1994; Moulton and Berner, 1998; Lucas, 2001).

Les plantes modifient les conditions d'altération le plus souvent via ces racines en agissant principalement sur le pH et les concentrations des éléments dissous dans la solution de sol (Tyler and Ström, 1995). Le plus souvent, leurs sont associés des micro-organismes et animaux fouisseurs qui agissent comme catalyseurs de l'altération des roches silicatées, augmentant ainsi l'altération de ces minéraux (Drever, 1994; Viers et al., 1997; Oliva et al., 1999; Millot et al., 2002, 2003; Arocena et al., 2003; Egli et al., 2008). Par ailleurs, le taux d'altération chimique augmente le plus souvent dans les sols boisés à cause de la respiration racinaire et de la dégradation de la matière organique qui produisent de forts niveaux de CO_2 dans les sols, et favorisent l'acidité. Cette dégradation se produit essentiellement au niveau de la zone racinaire, là où l'activité des micro-organismes est intensifiée par les composants organiques excrétés par les racines.

Des études en environnements basaltiques (Moulton and Berner, 1998; Moulton et al., 2000) et granitiques (Drever and Zobrist, 1992; Millot et al., 2002) ont montré que le taux d'altération chimique pouvait être beaucoup plus fort sur les zones avec couvert végétal que sur sol nu (Drever and Zobrist, 1992).

Il apparaît donc bien établi que le climat, la tectonique et l'érosion interagissent entre eux pour le façonnement des reliefs (Fig. II-7).

II.4 Erosion en milieux volcaniques

L'érosion des édifices volcaniques résulte d'une série de processus géomorphologiques qui se produisent pendant, avant ou sans éruption. Les environnements volcaniques présentent des morphologies plus ou moins complexes, modelées par leur âge, leur contexte tectonique ou encore le climat sous lequel ils se situent. D'ailleurs, les études de (Cotton, 1952; Ollier, 1988) devenues des références pour la compréhension de l'évolution morphologique des volcans au cours du temps, proposent une évolution géomorphologique des édifices volcaniques basée sur quatre stades successifs (Fig. II-8) :

- Le stade de volcan intact c'est-à-dire, le volcan au stade originel (1)
- Le stade de planèzes (2)
- Le stade de volcan résiduel (3) où les planèzes ont totalement été érodées c'est-à-dire, les formes de relief primaires et les surfaces originales disparaissant progressivement. L'origine volcanique est uniquement indiquée que par la présence d'un réseau de drainage radial composé de rivières à l'équilibre.
- Enfin, le stade squelettique (4) où tous les produits volcaniques et toutes les formes de relief ont complètement été dégradé. Seuls sont observés des structures volcaniques particulières telles que les dykes, les necks et les sills.

Toutefois, il est à noter que cette évolution ne s'adresse qu'aux édifices volcaniques présentant une morphologie simple (forme mathématique élémentaire). Or, en contexte volcanique, l'étude de l'érosion est généralement complexifiée par la présence de nombreuses spécificités telles que coulées de remplissage dans des vallées déjà formées, qui vont modifier l'organisation des bassins-versants et du réseau hydrologique. De plus, les volcans étant des phénomènes géologiques mis en place très rapidement au regard du temps d'érosion (Kirby et al., 2003; White et al., 2006), l'érosion engendre très souvent des démantèlements de grandes ampleurs. Ainsi, les morphologies actuelles des secteurs volcaniques observées, résulteraient d'une interaction complexe entre les processus de construction dans un premier temps, de destruction

dans un second temps, puis à nouveau de construction, et ainsi de suite (Thouret, 1999; Salvany et al., 2012).

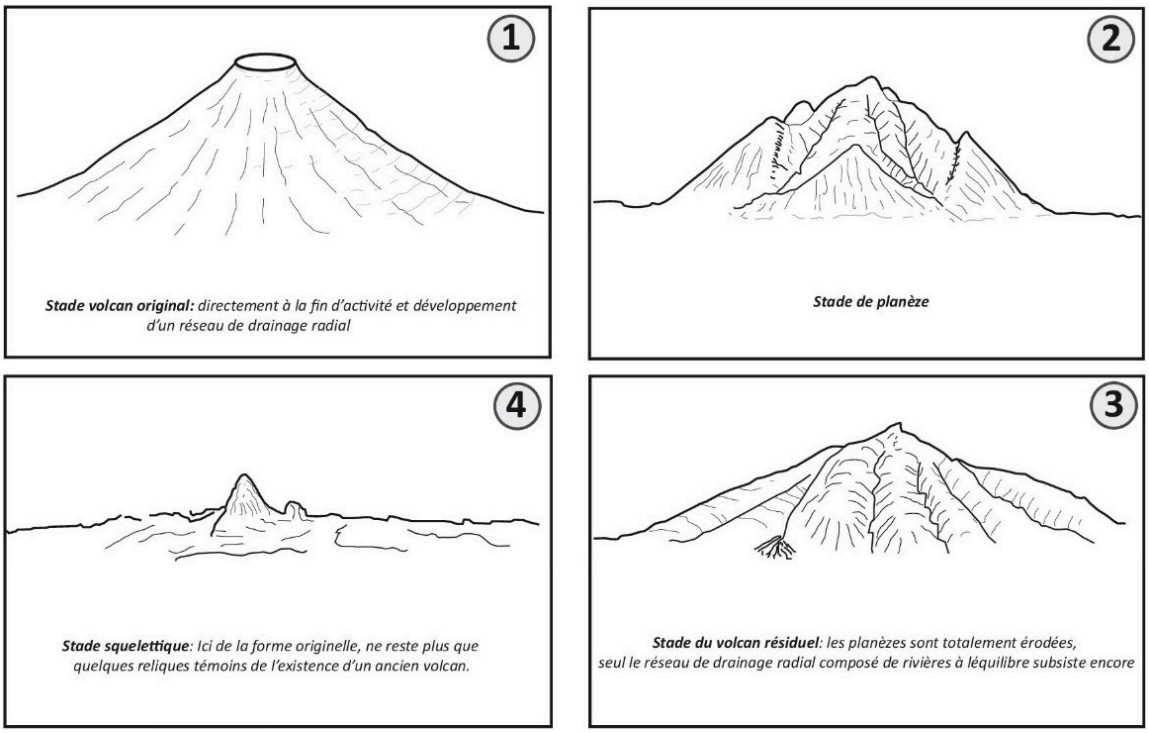


Fig. II-8 : Representation of the geomorphological evolution of a simple volcano modified from (Cotton, 1952; Ollier, 1988)

Alors, l'altération associée aux circulations de fluides à travers tout l'édifice et aux interfaces que constituent les zones de faiblesses (failles et autres discontinuités de la structure) favorise la fragilisation de l'édifice. De plus, une activité hydrothermale intense pourra engendrer des dommages et une diminution de la cohésion à grande échelle (López and Williams, 1993). En effet, l'association courante entre altération hydrothermale et effondrements sectoriels indique que le fluide interstitiel et/ou l'altération peut avoir un effet important sur la stabilité des édifices (Day, 1996) et par ricochet, sur la modification des reliefs et paysages.

L'hydrothermalisme qui affecte aussi bien le degré de cohésion des roches et la stabilité des édifices volcaniques est responsable des effondrements catastrophiques en favorisant leur tendance à l'étalement gravitaire (López and Williams, 1993). Les exemples de déstabilisation volcanique en lien avec l'altération par l'activité hydrothermale sont bien présents dans la littérature (Day, 1996; Voight and Elsworth, 1997; de Vries et al., 2000). Leur teneur en eau peut alors être augmentée et leur cohésion diminuée jusqu'à provoquer des effondrements sectoriels sur les volcans et engendrer des coulées de débris de forte mobilité (Waythomas et al., 2000).

Toutefois, mis à part ces différentes formes classiques d'érosion en milieux volcaniques, responsable de la destruction des structures, de la modification des paysages et reliefs, des évènements catastrophiques tels que des effondrements sectoriels, les écoulements lahariques, les avalanches de débris ou les glissements de terrains déclenchés à la suite des conditions météorologiques particulières (tempêtes, pluies diluviennes, etc.) contribuent également fortement à la modification des reliefs volcaniques. Cependant, ces derniers n'interviennent qu'à une très courte échelle de temps, mais mobilisent d'importants volumes (plusieurs km^3) une fois qu'ils entrent en action.

Il en découle donc, que le démantèlement dans son sens le plus large, et en particulier en milieu volcanique, est influencée par de nombreux facteurs comme le climat (chaud et humide, une forte pluviométrie, forte amplitude thermique) mais aussi par d'importants évènements catastrophiques plus ou moins instantanés (tempêtes, pluies diluviennes). Les reliefs, plus ou moins escarpés, leur taille, mais aussi l'âge des formations, les contrastes de lithologie (nature et type de roche, dureté, solubilité) au sein du bassin versant ont également un impact significatif sur les vitesses et taux d'érosion. Par exemple, une érosion ou démantèlement plus intense est observée autour du sommet des volcans car dans cette partie du volcan, il présente des pentes beaucoup plus fortes ce qui favorise un ruissellement plus abrasif et par ricochet un démantèlement plus intense. Aussi, au niveau des sommets on note une pluviométrie plus forte et dans des cas favorables une cryoclastie plus intense ; ce qui contribue à accentuer les taux d'érosions. De nombreuses études (Ruxton and McDougall, 1967; Ollier and Brown, 1971; Francis, 1983; Karátson, 1996; Karátson et al., 2012) ont montré que les volcans plus jeunes présentent des taux d'érosion relativement élevés par rapport aux volcans plus anciens tandis que, les terrains jeunes et montagneux à forte pente sont soumis à une plus forte érosion.

De même, de nombreux auteurs ont démontré le rôle ou même l'influence que la lithologie (nature et type de roche, dureté, solubilité) des roches jouait sur les mécanismes et la dynamique de l'érosion en milieu volcanique. En effet, ces différences de lithologie affectent le comportement de l'érosion. Par exemple, les roches de nature basaltiques subissent le plus souvent une altération plus rapide que leur homologues andésitiques (Gislason et al., 1996; Louvat and Allègre, 1997) et s'altèrent dix fois plus vite que les granites (Meybeck, 1987; Rad et al., 2006).

Comme mentionné plus haut, l'érosion en milieu volcanique sera aussi influencée par le contexte géodynamique (son environnement) dans lequel elle opère ; en effet, l'histoire tectonique du secteur (par exemple, la présence de faille, de fractures, la nature du substratum

et bien d'autres) favorisera ou non la dynamique de l'érosion. Par exemple, Milliman et al. (1995) montrent que les flux d'érosion provenant des ceintures de subduction sont parmi les plus importants quantitativement, traduisant ainsi une influence du contexte géodynamique sur la dynamique de l'érosion.

La nature également du substratum sur lequel se développe les édifices volcaniques joue un rôle majeur dans la dynamique de l'érosion. En effet, un substratum présentant des formations ductiles ne se comportera pas de la même façon qu'un substratum plus solide (rigide) et pourra être à l'origine du mécanisme d'étalement (spreading en anglais ; voir chapitre I) des structures volcaniques (c'est-à-dire des formes allongées associées aux édifices volcaniques). D'ailleurs, ce processus d'étalement de structures volcaniques est maintenant reconnu quand il est présent comme l'un des paramètres pertinents qui contrôle l'évolution structurelle et magmatique à long terme des édifices volcaniques (Delaney, 1992; Borgia, 1994; Merle and Borgia, 1996; Lagabrielle et al., 2000; Wooller et al., 2004; Borgia et al., 2005; Grosse et al., 2009). Ce mécanisme de spreading aura comme conséquence dans une certaine mesure sur les volcans ou il s'applique de modifier la structure originelle du volcan initial à savoir l'augmentation du diamètre des édifices et la réduction des différences de hauteur relative entre le centre et la périphérie du volcan, réduisant alors l'énergie mis en jeux et les taux d'érosion (Delaney, 1992; Borgia, 1994; Merle and Borgia, 1996).

La déstabilisation des structures volcaniques peut aussi être la conséquence d'éruptions explosives, d'une croissance secondaire comme la mise en place d'intrusions magmatiques (c'est le cas par exemple de l'effondrement du Mont St-Helens de 1980 ; Lipman and Mullineaux, 1981). Tous ces mécanismes contribueront à la déstabilisation en partie des secteurs de l'édifices (Siebert et al., 1987).

En définitive, il est quasiment validé que la lithologie et le climat ont une plus forte incidence sur l'altération (Bluth and Kump, 1994; Gislason et al., 1996; Karátson, 1996; Rad et al., 2006) alors que l'érosion mécanique est quant à elle plus susceptible d'être corrélée à la tectonique et à la topographie (Milliman and Syvitski, 1992) (voir chapitre V). Notons aussi la place que joue la couverture végétale ainsi que sa nature, et l'action anthropique dans le contrôle de la dynamique d'érosion.

L'érosion en milieux volcaniques affecte aussi les types de morphologies observés au niveau des volcans et générer par exemples des dépressions comme des calderas et ou cratères de type d'érosion (Karátson et al., 1999; Paris and Carracedo, 2001).

Karátson et al. (1999) montrent l'impact que peut avoir l'érosion sur la modification des structures primaires (originelles) d'un volcan comme la modification des structures de dépressions telles que les calderas et ou les cratères. Ces structures primaires sont le plus souvent caractérisées par des formes géométriques plus ou moins circulaires traduisant la non signature ou alors une influence minimale de l'érosion (Fig. II-9a) ; ainsi, plus l'édifice volcanique est récent (jeune) moins la signature de l'érosion est marquée (Fig. II-9c). A contrario, plus il est vieux (supérieur aux millions d'années par exemple) plus les structures primaires sont impactées passant des formes circulaires (Fig. II-9c) a des formes allongées à dissymétriques (Fig. II-9a ; b et d). On peut d'ailleurs les subdiviser en 3 grandes étapes d'évolutions selon Karátson et al. (1999) :

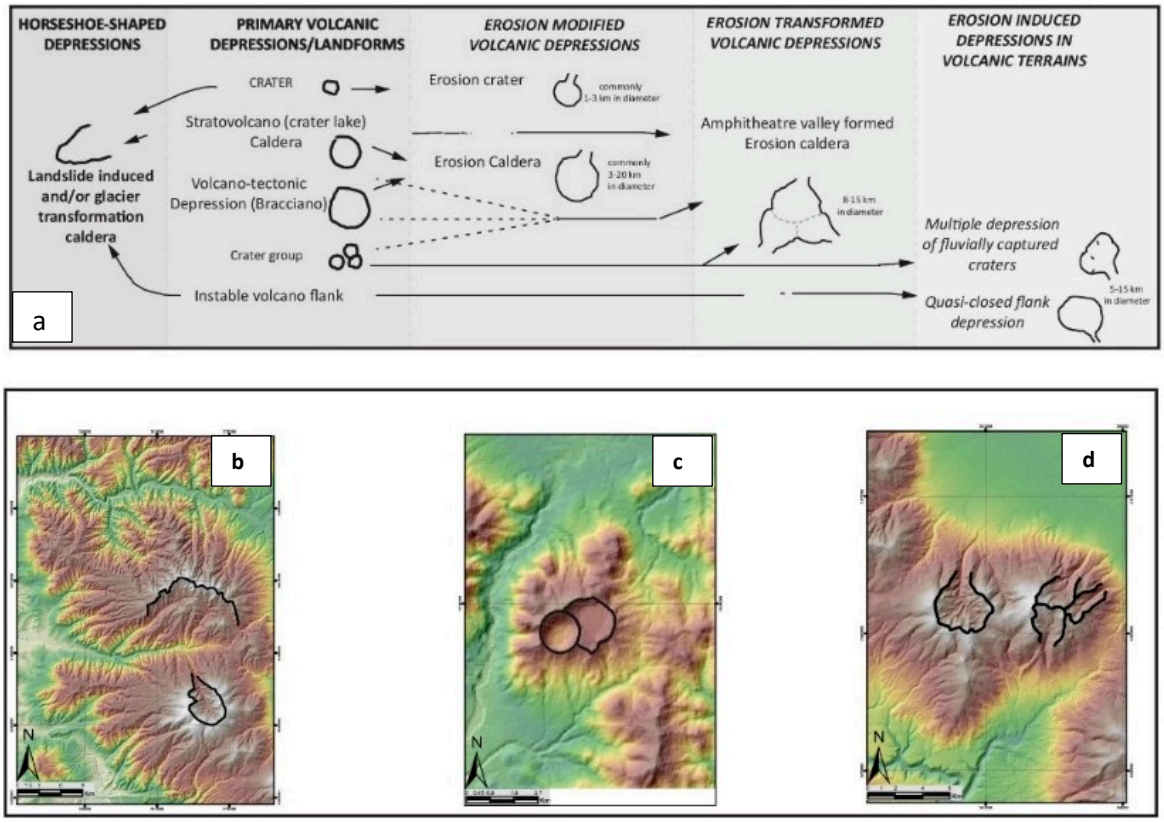


Fig. II-9: a) Classification des dépressions dans les terrains volcaniques modifiée d'après Karátson et al. (1999). b) exemple des volcans Fâncel-Lăpuşna et Seaca-Tătarca ; c) complexe volcanique de Ciomadul et d) Şumuleu ; Ciumani-Fierăstrei (segment volcanique CGH)

— un stade où l'érosion modifie les structures originelles d'effondrement (1) entrainant par exemple la formation des calderas d'érosion ou des cratères d'érosion (Fig. II-9a) c'est le cas par exemple des cratères d'érosion présents au sommet du volcan Seaca-Tătarca (Fig. II-9b), Şumuleu (Fig. II-9d) au niveau des Carpates orientales.

— un stade de transformation des structures primaires responsables de la mise en place des formes particulières tels que des formes en amphithéâtre (2) (Fig. II-9a) par exemple le volcan Ciumani-Fierăstrei caractérisé par 2 cratères en son sommet (Fig. II-9b).

— un stade de transformation des structures primaires en forme de fer à cheval causé principalement par l'effondrement d'une ancienne caldera (1) (Fig. II-9a). Le cas le plus patent au niveau de ce segment volcanique est visible au niveau du complexe volcanique de Fâncel-Lăpuşna (Fig. II-9b), l'un des seuls édifices avec central Călimani à présenter des calderas d'explosion au niveau du segment CGH.

Etudier l'érosion en milieu volcanique est essentiel pour comprendre l'évolution des reliefs au cours du temps, comprendre l'évolution des structures primaires vers des structures secondaires et, à plus grande échelle, de montrer l'interaction que peut jouer les fluctuations climatiques, la tectonique (contexte géodynamique) sur les mécanismes contrôlant la dynamique de l'érosion à la surface de la Terre.

Encore faut-il être en mesure de quantifier ces fluctuations d'érosion par des méthodes quantitatives ce qui sera présenter dans le prochain paragraphe.

II.5 Méthode de quantification de l'érosion

La surface topographique terrestre étant l'interface où se fait la rencontre et l'interaction entre les processus internes (tectonique) et externe (climat) par le biais de la dénudation (érosion) ; comprendre les modalités de cette dénudation nécessite des outils permettant d'en quantifier la vitesse dans différents types d'environnements géomorphologiques. Depuis de nombreuses décennies, bon nombre de travaux de recherche se sont focalisés sur la quantification de l'érosion et les taux d'érosion (dénudation) affectant les reliefs. Différentes méthodes furent alors développées et appliquées à l'instar de la détermination des taux de dénudation mécanique par la mesure des teneurs en sédiments fluviatiles (Pinet and Souriau, 1988; Milliman and Syvitski, 1992), par l'analyse du granoclassement en aval des rivières, ou l'analyse chimique et isotopique des sédiments des rivières (éléments dissouts et particules solides) et la dégradation des sommets des édifices au fil des temps (Karátson, 1996). Cependant, depuis ces deux dernières décennies, de nombreuses études mettent en avant trois grandes approches principalement, l'une basée sur des investigations géomorphologiques (approches numériques), l'autre sur des investigations géochimiques (approches chimiques) et la dernière sur des investigations cosmogéniques et radiochronologiques.

Dans ce qui suit, nous nous focaliserons essentiellement sur l'approche numérique correspondant à celle largement développée dans cette étude ; nous rappellerons néanmoins de façon sommaire quelques grands traits de la quantification de l'érosion vue sous un angle cosmogénique, géochimique et radiochronologique.

II.5.1 Définition

La quantification des processus morphologique et morphogénétique est étroitement corrélé à la notion de temps. Pour déterminer les vitesses d'évolution d'un objet ou corps morphologique ou même d'un marqueur morphotectonique (géomorphologie tectonique) i.e., représentant les interactions entre l'activité des structures tectoniques et l'érosion), la démarche morphotectonique passe par « la reconnaissance des signatures morphologiques ayant enregistré l'évolution géodynamique récente des paysages et le décryptage des différents signaux tectoniques, climatiques ou sédimentaires » que cela engendre (Delcaillau, 2004). Il est essentiel d'établir des contraintes temporelles (détermination des âges) sur sa formation ou sur des étapes de son évolution. Ces vitesses peuvent être en lien direct avec la tectonique (vitesse de surrection, vitesse de raccourcissement), ou avec l'érosion (vitesse de dénudation, vitesse d'exhumation). Elles livrent donc des informations sur la dynamique des processus morphogénétiques. C'est pourquoi, diverses méthodes sont utilisées notamment les méthodes géochronologiques, basées essentiellement sur la radioactivité des roches ont été développées ces 20 dernières années. Leurs gammes d'application sont variables et les rendent donc complémentaires. Pour synthétiser, on peut les classer en deux catégories qui se basent sur les gammes temporelles.

Pour la datation d'objets « récents » (cas des formations âgées de quelques dizaines de milliers voire centaines de milliers d'années), des techniques radiochronologiques de courtes périodes sont souvent utilisées. Il s'agit par exemple des méthodes fondées sur la mesure des isotopes cosmogéniques (^{10}Be, ^{36}Cl, ^{26}Al, etc.) permettant de mesurer l'âge d'exposition d'une surface et des méthodes radio-isotopiques permettant de mesurer l'âge de dépôt et d'enfouissement d'un sédiment (^{14}C ; Thermoluminescence : TL ; Luminescence ; OSL). Pour le principe et le fonctionnement de chacune de ces méthodes, je renvoie les lecteurs aux quelques ouvrages et articles spécialisés (Aitken, 1985, 1994, 1998; Burbank and Anderson, 2001; Gosse and Phillips, 2001) ou à des thèses ayant exploitées ces méthodes OSL : (Poisson, 2002) ; ^{10}Be : (Vassallo, 2006; Puchol, 2013) par contre, je présenterai les grands traits en ce qui concerne la quantification d'érosion par les cosmogéniques et les traces de fissions.

II.5.2 Approches isotopiques

II.5.2.1 Utilisation des cosmogéniques pour quantifier les taux de dénudation

La géomorphologie quantitative dispose depuis peu (~quinzaine d'année) d'une nouvelle méthode de datation utilisant les cosmonucléides, c'est-à-dire ces nucléides produits par l'interaction du rayonnement cosmique secondaire avec les silicates contenus dans les

roches de surface. La mesure de la concentration de ces éléments radiogéniques (^{10}Be, ^{26}Al, ^{36}Cl, etc.) produits in situ dans les roches conduit à l'estimation de leur durée d'exposition au rayonnement cosmique, ou du taux d'érosion affectant les surfaces où elles sont déposées.
Ils sont donc à la fois un outil de datation des surfaces rocheuses et un outil susceptible d'étudier l'évolution géomorphologique et la vitesse des processus d'érosion qui affectent la surface terrestre (Vassallo, 2006; Puchol, 2013). Elle permet de remonter jusqu'à quelques ka (Table II-1).

Par exemple, les nucléides cosmogéniques, tels que le ^{10}Be, produits en permanence dans la croûte terrestre et l'atmosphère par l'interaction du rayonnement cosmique avec la matière. Au sein des roches cette production, qui est infime, se fait principalement dans les premiers mètres sous la surface. Ainsi, plus une roche présentera une concentration élevée en ^{10}Be, plus elle aura résidé longtemps dans cette portion superficielle. La mesure de cette concentration dans un échantillon permettra donc de fournir des informations sur la durée d'exposition de cette roche à la surface ou sur la vitesse des processus de dénudation qui ont permis de l'y amener. Cependant, ces taux de dénudation ainsi obtenus n'ont toutefois qu'une valeur locale et sont soumis à de fortes variations latérales et souvent difficiles à utiliser pour comprendre la dynamique à l'échelle du paysage, surtout dans les contextes où les processus de surface sont très actifs, comme les chaînes de montagne récentes (Puchol, 2013). Aussi, cette approche repose sur un certain nombre de suppositions qui doivent être vérifiées (Brown et al., 1995; Von Blanckenburg, 2005). La dénudation au sein du bassin versant doit ainsi être à l'équilibre (pas de variation récente de grande amplitude) et il ne doit pas y avoir de stockage important de sédiments le long du réseau hydrographique (Puchol, 2013).

Par cette méthode donc, on peut quantifier la répartition spatiale de la dénudation, pour une région donnée, et étudier quels sont les paramètres qui influent le plus sur cette répartition (morphologiques, tectoniques ou climatiques).

La datation de marqueurs morphologiques constitue une étape essentielle de l'étude de la dynamique d'un paysage. A l'heure actuelle, plusieurs techniques sont pratiquées par les géomorphologues. Elles se limitent souvent à la période quaternaire, car celle- ci est la mieux conservée. Cependant, pour des formations plus anciennes (de 2 Ma et plus), il est pour le moment impossible de dater une surface de marqueur avec des techniques similaires aux précédentes car, les constantes de désintégration des systèmes radio-isotopiques sont en effet inadaptées pour ces gammes de temps (Table II-1). Il est donc crucial de disposer d'outils

spécifiques permettant de mesurer les vitesses de dénudation intégrées sur ces échelles de temps.

Nucléides Cosmogéniques	Demi-vie (année)	Mode de désintégration	Lieu de production	Principales cibles	Réactions
^{3}He	Stable	—	Atm. In situ	N, O O, Mg, Si, Fe	Spallation Spallation
^{21}Ne	Stable	—	Atm. In situ	Ar O, Mg, Si, Fe	Spallation Spallation
^{10}Be	$1.387\ 10^{6} \pm 0.012\ 10^{6}$	B^{-} : 550 keV	Atm. In situ	N, O O, Mg, Si, Fe	Spallation Spallation
^{26}Al	$0.717\ 10^{6} \pm 0.017\ 10^{6}$	B^{+} : 1.2 MeV	Atm. In situ	Ar O, Mg, Si, Fe	Spallation Spallation
^{36}Cl	$0.301\ 10^{6} \pm 0.002\ 10^{6}$	B^{-} : 714 keV	Atm. In situ In situ	Ar Ar O, Mg, Si, Fe	Spallation Spallation Capture électronique
^{14}C	5730 ± 40	B^{-} : 156 keV	Atm. In situ	N O, Mg, Si, Fe	Capture électronique Spallation

Table II-1 :Les principaux nucléides cosmogéniques utilisés en géosciences produits dans l'atmosphère (Atm.) et dans les roches exposées à la surface de la croûte terrestre (production in situ) (modifié d'après Bourlès et al., 2008; Lebatard and Bourlès, 2015).

II.5.2.2 Utilisation des techniques radiométriques

De même, les taux d'érosion à long-terme (ou taux de dénudation) d'un massif rocheux peuvent être mesurés grâce à des techniques radiométriques. Ces méthodes sont basées sur l'analyse de différents couples radioactifs (K/Ar, Rb/Sr, U/Th/Pb) au sein de minéraux ou phases repères (les amphiboles, les muscovites, les zircons, les apatites, etc. ; Burbank & Anderson, 2001) et sur l'interprétation de leur trajet de remontée vers la surface (trajet d'exhumation). La section étudiée part de la surface et s'arrête à une profondeur (une température si l'on considère le gradient géothermique de la région étudiée) qui est propre aux différents systèmes radiométriques. Cette température, appelée « température de fermeture » correspond au seuil thermodynamique où les effets de la désintégration radioactive des différents couples sont conservés ou non dans le cristal. Au-dessus de cette température, les éléments fils diffusent naturellement hors du réseau cristallin et sortent du système (système ouvert). Au-dessous de cette température, ils restent piégés (système fermé). La datation de l'âge radiochronologique revient donc à déterminer l'âge du franchissement de la température de fermeture (c'est le « déclenchement » du radiochronomètre).

Dans le cas des méthodes d'étude sur les « traces de fission » (traces de fission sur apatite, zircon, etc.), la température de fermeture correspond à la température en dessous de laquelle la désintégration de l'uranium 238 laisse des « cicatrices » irréversibles dans le minéral. En analysant ces traces (longueur, nombre), il est possible de calculer un âge de franchissement de la température de fermeture et de renseigner l'histoire thermique d'exhumation de la roche. Pour plus de détail sur cette méthodologie, voir (Jolivet, 2001; Vassallo, 2006).

II.5.3 Approche géochimique

Cette autre approche se base sur l'étude géochimique (analyse d'éléments majeurs et traces) des phases dissoutes et des particules en suspension présentes dans l'eau des rivières (Louvat and Allègre, 1998). Elle permet de calculer les taux d'altération chimique d'un bassin versant et d'en déduire les taux d'érosion mécanique l'affectant (Gaillardet et al., 1995; Louvat and Allègre, 1997; Goldsmith et al., 2008). Les taux d'érosion chimique (t/km²/an ou mm/ka) sont ainsi calculés à partir du débit des rivières et de la composition des charges dissoutes dans ces dernières (Gaillardet et al., 1995, 1999; Louvat and Allègre, 1997, 1998; Rad et al., 2006, 2013) tel que :

Taux érosion chimique (t/km²/an) = Débit (mm/an) * Charges dissoutes (mg/l)

Ainsi, plus un bassin versant sera jeune, plus l'altération sera importante. La Fig. II-11 rapporte une corrélation négative entre les taux d'altération chimique (t / km² / an) et l'âge (Ma) des laves du bassin, c'est-à-dire que plus le bassin est jeune, plus le taux d'altération est élevé. Cette corrélation indique que les roches volcaniques plus jeunes sont plus facilement altérées que les roches anciennes (Gislason et al., 1996; Rad et al., 2013).

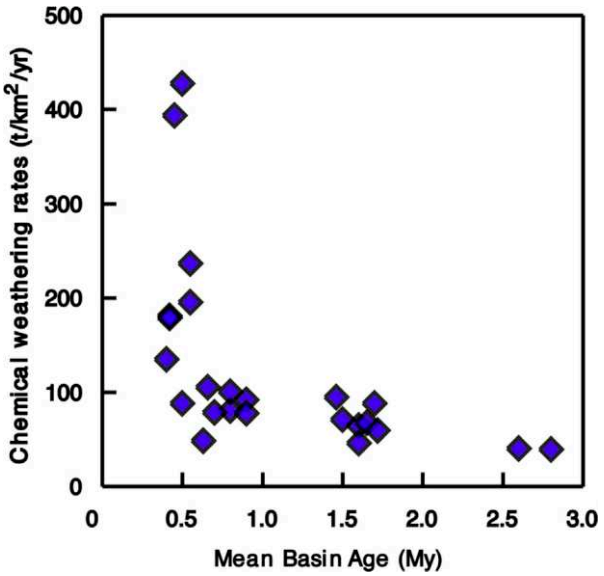


Fig. II-10: Decrease in chemical weathering rates correlated with the mean age of the watershed, showing an alteration threshold at low weathering rates once soils form. From Rad et al. (2013)

En contexte volcanique, les particules dissoutes dans l'eau reflètent l'ensemble des éléments transportés par les rivières. La composition des charges dissoutes est corrigée des apports atmosphériques et hydrothermaux par le rapport Cl/SO_4, afin d'obtenir la composition chimique issue uniquement de l'altération (Rad et al., 2013).

Les taux d'érosion mécanique quant à eux sont déduits du bilan de masse entre la roche non-altérée et les produits de l'érosion (phases solides et dissoutes ; Gaillardet et al., 1995; Louvat and Allègre, 1998).

Selon Gaillardet et al. (1995), ce bilan de masse repose sur différentes hypothèses :

— (1) L'altération chimique se produit dans la zone de transition entre la couche de sol et la roche mère ou le substratum pour former des produits d'altération, soit en solution, soit en minéraux secondaires. Ces minéraux nouvellement formés s'accumulent dans les sols, ainsi que les minéraux primaires les plus stables (tels que les minéraux lourds) ; à l'inverse, l'érosion mécanique quant à elle élimine les matériaux du sol. En ce sens, l'érosion chimique et mécanique sont des processus complémentaires pour la production et la destruction des sols.

— (2) Le modèle implique que les particules dissoutes des rivières (corrigées des apports atmosphériques) reflètent les processus d'érosion chimique se produisant au front d'altération. Ici, on néglige le stockage de l'eau dans les sols ou pendant le transport fluvial et toutes les réactions chimiques secondaires telles que les interactions entre la charge suspendue et dissoute pendant le transport (processus d'adsorption).

— (3) Les concentrations des éléments dissous mesurées au cours de l'échantillonnage doivent être représentatives des concentrations annuelles (comprenant les variations saisonnières). La minéralogie de la phase en suspension ne variant pas au cours du cycle annuel, la variabilité au cours du cycle saisonnier est négligée (Martin and Meybeck, 1979).

— (4) Le bilan de masse implique qu'un régime stable existe entre l'érosion chimique et mécanique, i.e., qu'il n'y ait pas de stockage des particules en suspension dans les sols ou dans les réseaux hydrographiques.
Sur la base de ce bilan de masse, trois méthodes différentes permettent généralement de calculer les taux d'érosion mécaniques Rad (2007).

La première méthode utilise la concentration en éléments majeurs, la deuxième les séries isotopiques de l'uranium ou le rapport Th/U (Porcelli et al., 1997; Vigier et al., 2001; Dosseto et al., 2008), enfin, la troisième méthode se base sur l'épaisseur du sol et l'âge du bassin versant. Je renvoie le lecteur aux articles traitant de cette notion pour plus d'informations (Porcelli et al., 1997; Vigier et al., 2001; Rad, 2007; Dosseto et al., 2008).

Les travaux de Millot et al. (2002) ont établi une relation entre le taux d'altération chimique et l'érosion physique des bassins versants de granitoïdes et des bassins basaltiques et on peut observer une relation qui obéit à une loi de puissance (Fig. II-11) :

$$Chem = 0{,}39\ (Phy)^{0{,}66}$$

Où **Chem** est le taux d'altération chimique et **Phy** celui du taux d'érosion mécanique.

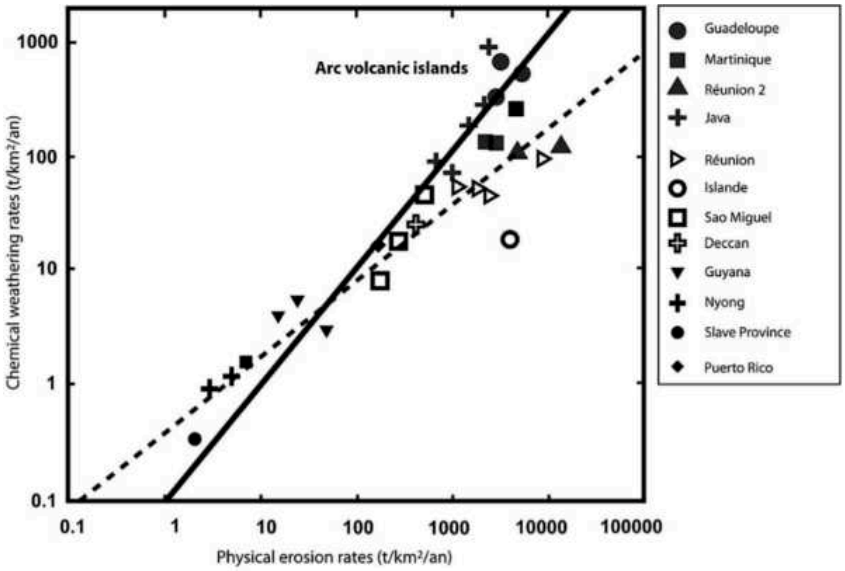


Fig. II-11: Chemical weathering rate (t/km²/yr) versus Mechanical erosion rate (t/km²/yr) in silicate river basins (adapted from Millot et al., 2002) and in arc volcanic islands from this study (black circles: Guadeloupe, black squares: Martinique) and Java (Louvat, 1997). It seems that arc volcanic islands (Lesser Antilles, Java) follow a different correlation law than that applied to granitoid and basalt in Millot et al. (2002). Note that the chemical weathering rates reported for the Lesser Antilles and Réunion are mean values which include subsurface waters.

Malheureusement, l'étude de l'érosion mécanique par l'érosion chimique, via le biais d'analyses ponctuelles (voir annuelles) ne permet pas de prendre en compte l'évolution du comportement de l'érosion à long terme. De plus, cette approche par les éléments dissouts a beaucoup de mal à considérer la part de l'érosion mécanique qui transporte les charges particulaires les plus grossières, et qui dans le cas de crue torrentielle (domaine cyclonique par exemple) peuvent déplacer des blocs de plusieurs mètre-cube.

II.5.4 Approche numérique

Depuis ces dernières années, un bon nombre d'études vise à contraindre à long terme l'érosion totale des surfaces volcaniques en utilisant principalement deux approches analytique :

— 1) Etudier de petits systèmes volcaniques de courte durée mais dispersés tels que les champs volcaniques monogénétiques en utilisant des données ponctuelles individuelles pour extrapoler et comprendre le comportement du champ dans son ensemble (Kereszturi et al., 2013; Blaikie et al., 2015; Grosse et al., 2018).

— 2) Etudier les systèmes volcaniques à longue durée de vie mais stables tels que les stratovolcans en se basant sur les changements surfaciques observés sur ces édifices afin de suivre les processus d'érosion à long terme (Le Friant et al., 2004; Samper et al., 2007; Hildenbrand et al., 2008; Germa et al., 2010, 2015; Karátson et al., 2012; Lahitte et al., 2012; Salvany et al., 2012; Ricci et al., 2015a, 2015b; Bablon et al., 2018).

Dans ce travail, nous nous focaliserons essentiellement sur la deuxième approche (cas des stratovolcans) pour déterminer les taux d'érosion/ dénudation par une approche numérique basée sur le couplage d'investigations géomorphologiques et de données géochronologiques, afin d'intégrer dans le temps les variations rapides du taux d'érosion.

Cette méthode de quantification numérique sera exhaustivement décrite dans les Chapitre III (Méthodes analytiques) et V. De manière succincte, elle se base sur l'interpolation locale d'une symétrie de révolution appliquée aux points extraits du MNT actuel (les CPs ou points de contraintes) et préalablement sélectionnés comme représentatifs des paléo-surface (planèzes ; secteur rose sur Fig. II-12) de l'édifice volcanique, ceci afin de contraindre au mieux les volumes démantelés et donc les taux d'érosion associés.

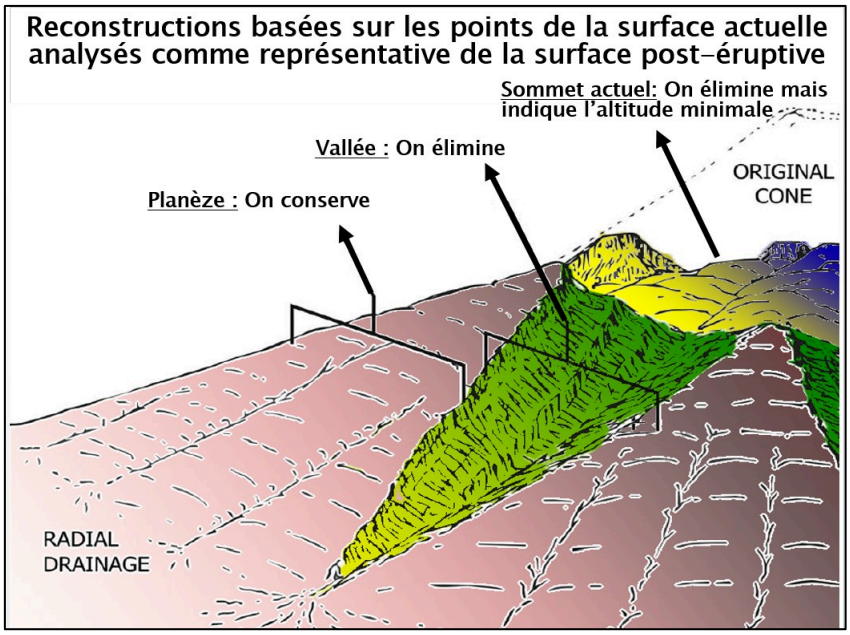


Fig. II-12: Illustration d'un volcan avec des secteurs en roses représentatif de la surface post-éruptive (modifié d'après Hampton and Cole, 2009)

Pour cela, la connaissance de la durée d'érosion ainsi que la quantification des volumes manquants (volume érodé ; V_E) est nécessaire. Le volume manquant (V_E) est calculé en intégrant sur la surface totale de l'édifice la différence (ΔZ_E) entre la surface modélisée (volcan reconstruit) et la topographie actuelle représentée par le MNT (Z_{MNT}) (Fig. II-13. La durée d'érosion représente quant à elle la période se produisant depuis la fin de l'activité volcanique ; c'est-à-dire l'intervalle de temps correspondant à l'âge du volcan) tandis que le taux d'érosion (T_E) représente le rapport volume manquant / durée erosion et est calculé comme étant le rapport entre la perte moyenne d'altitude du volcan ($\Delta Z_{E_moyenne}$) et la fin de l'activité volcanique (Age_{Fin} ; défini par le plus jeune obtenu sur l'édifice étudié) :

$$T_E = \Delta Z_{E_moyenne} / Age_{Fin} \quad (\text{en m / Ma})$$

$$\text{Avec :} \quad \Delta Z_{E_moyenne} = V_E / \text{Surface (en m)}$$

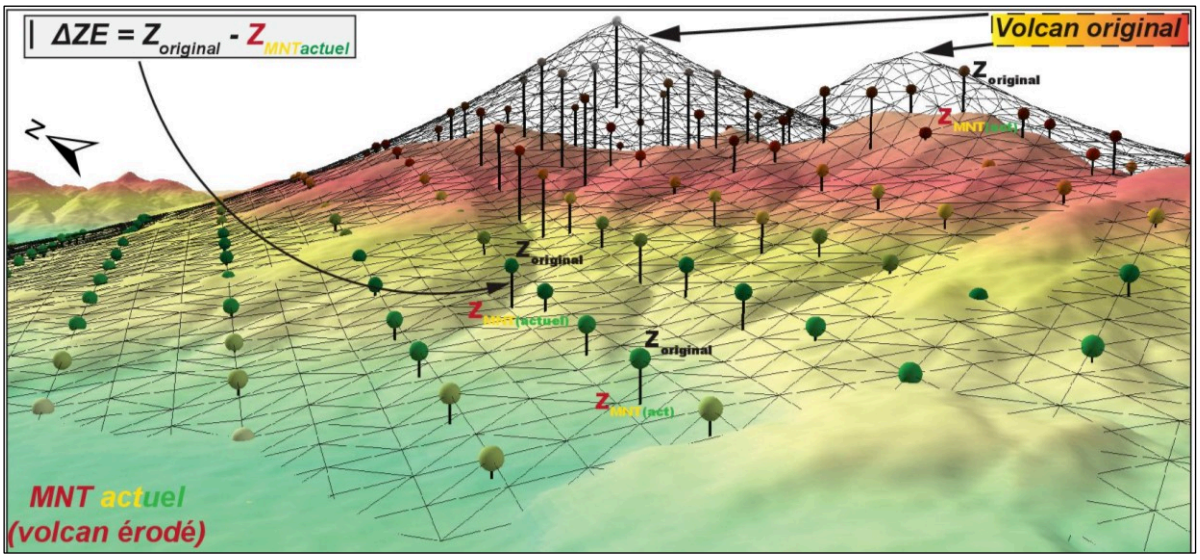


Fig. II-13: Représentation d'un édifice volcanique (cas du volcan Vârghiş du segment volcanique CGH) montrant le protocole de quantification des volumes et taux d'érosion (volume actuel représenté par le MNT et le volume original représenté par la grille triangulaire)

En comparant donc les morphologies actuelles (MNT) et les volumes reconstruits (originaux) de volcans progressivement érodés (Fig. II-13) au fil du temps, des taux d'érosion à long terme sont définis dans des régions du globe présentant des climats variés (humide, aride à hyperaride ; Salvany et al., 2012 ; Karátson et al. 2012 ; Ricci et al., 2015a, 2015b ; Favalli and Fornaciai, 2017 ; Grosse and Kervyn, 2018 ; Grosse et al., 2018). Dans l'ensemble, les volcans sélectionnés dans ces études présentent une morphologie simple de symétrie de révolution à base relativement plate, de type strato-cône ou stratovolcan andésitique, aux durées de construction variées (plusieurs millions d'années à l'actuel).

Une des études récentes ayant mis en exergue cette approche s'est attachée à quantifier des volumes de volcans en se basant sur une reconstruction de la géomorphologie type du volcan originel (Karátson et al., 2012). La reconstruction réalisée sur ce volcan type est ensuite appliquée et ajustée sur l'ensemble des volcans identifiés de la zone volcanique en question.

Nous avons appliqué aux Carpates orientales (CGH) des principes de reconstruction numérique différentes bien que reposant sur une démarche plus ou moins similaire : modéliser la géométrie du volcan pré-érosionnelle. Mais une reconstruction telle que proposée par Karátson et al. (2012) implique qu'une morphologie globale et unique d'édifice volcanique puisse être appliquée à l'ensemble des volcans à modéliser. Si une telle démarche apparait applicable lorsque les édifices volcaniques présentent une histoire volcanique simple avec des centres éruptifs clairement identifiés, elle semble plus difficile lorsque les volcans ont subi une histoire suffisamment complexe pour qu'une symétrie de révolution ne suffise pas pour définir

correctement leur forme initiale. Cela peut tenir à des événements tels que des évènements gravitaires, du volcanisme postérieur chevauchant l'édifice, une érosion synchrone à la construction significativement importante. Ainsi, cette méthode de reconstruction permet d'apporter des contraintes de premier ordre sur le taux de dénudation en fonction de l'âge sur un nombre conséquent de volcan, mais ne peut être utilisée en l'état sur des systèmes volcaniques à histoire géologique beaucoup plus complexes. Dans de tels cas, certains auteurs se sont attachés à réaliser des reconstructions plus fines et mieux ajustées à l'échelle d'un édifice (Samper et al., 2007; Germa et al., 2010; Salvany et al., 2012; Lahitte et al., 2012; Lavigne et al., 2013; Karátson et al., 2016; Bablon et al., 2018).

Pour ces reconstructions numériques, différentes méthodes d'interpolations des points sélectionnés sont utilisées :

(1) Les méthodes d'interpolation géostatistiques tel que le krigeage (Krige, 1951) sont communément utilisées pour reconstruire les enveloppes des édifices volcaniques (Samper et al., 2007; Germa et al., 2010; Lahitte et al., 2012; Bablon et al., 2018). Cependant, le krigeage fournit une surface passant dans l'ensemble au milieu des points de contraintes (une moitié des points (carrés verts pleins) se trouvent plus haut que la surface modélisée, l'autre en deçà ; courbe bleue Fig. II-14). Aussi, une telle interpolation ne donne qu'une estimation minimale du volume construit (voir détail complet au chapitre III).

(2) L'alternative pour palier à ce problème de sous-estimation des volumes calculés par interpolation classique, consiste à rechercher la surface par des méthodes d'optimisation dont la paramétrisation minimise une fonction de coût (basée sur l'erreur quadratique moyenne des points de surface sélectionnés) qui pénaliserait toutes solutions passant au milieu des points et privilégiant au contraire les solutions passant au-dessus de l'ensemble des points (courbe rouge sur Fig. II-14) . Ces principes ont été appliqués avec succès pour modéliser au premier ordre les édifices en ayant recourt au package MINUIT (Favalli et al., 2014; Karátson et al., 2016).

Dès 2012, le progiciel ShapeVolc, spécifiquement dédié à la modélisation des surfaces volcaniques, (Lahitte et al., 2012) permettait quant à lui une modélisation plus fidèle des surfaces car modélisant non pas une surface unique pour l'ensemble de l'édifice, mais une surface ajustée au second ordre par l'application de méthode d'interpolation locale offrant ainsi un ajustement optimal. ShapeVolc a ainsi été testé dans divers contextes volcaniques ayant eu pour conséquence de perturber la géométrie symétrique de 1er ordre : effondrement de flanc important, formation de caldera (Lavigne et al., 2013), effondrement d'avalanches de débris (Germa et al., 2015), ou l'érosion régressive (Salvany et al., 2012; Ricci et al., 2015a, 2015b).

Ces méthodes (ShapeVolc et MINUIT) sont basées sur l'application de l'algorithme du simplex (Nelder and Mead, 1965) permettant la recherche de la solution optimale qui ajuste les paramètres locaux de modélisation de telle sorte qu'ils minimisent la fonction de coût. Ayant l'ambition dans cette étude de modéliser les édifices au second ordre, c'est donc la méthode ShapeVolc qui a été privilégié. In fine, à partir de la différence en chaque lieu du volcan entre le modèle reconstruit et le MNT actuel (Fig. II-13), on peut déduire un volume érodé et, en associant les contraintes géochronologiques, déduire un taux d'érosion pour chaque édifice ou massif volcanique (voir détail au niveau de la méthode dans le chapitre III).

Ces méthodes numériques, permettent d'apporter des marges d'incertitudes sur les volumes reconstruits et donc les taux d'érosion. En effet, chaque modèle reconstruit est assorti de l'incertitude associé calculée comme étant l'écart type de la différence entre l'altitude des points de contraintes et l'altitude des points modélisés (volcan reconstruit) (Fig. II-13). Ce calcul d'incertitude, généralement absent dans la plupart des méthodes de quantification de l'érosion (par exemple l'érosion géochimique), permet une comparaison plus rigoureuse des taux d'érosion entre les massifs volcaniques. Pour rappel, cette approche numérique s'appuie sur l'identification des surfaces pré-érosionnelles représentant le volcan tel qu'il aurait été immédiatement après sa construction avant toute érosion majeure. Or, parfois ces surfaces sont malheureusement absentes pour les édifices volcaniques les plus anciens ce qui constitue une limite à l'application de cette méthode qui ne peut alors que modéliser une surface d'altitude minimale et donc proposer un volume construit et donc un taux d'érosion minimal.

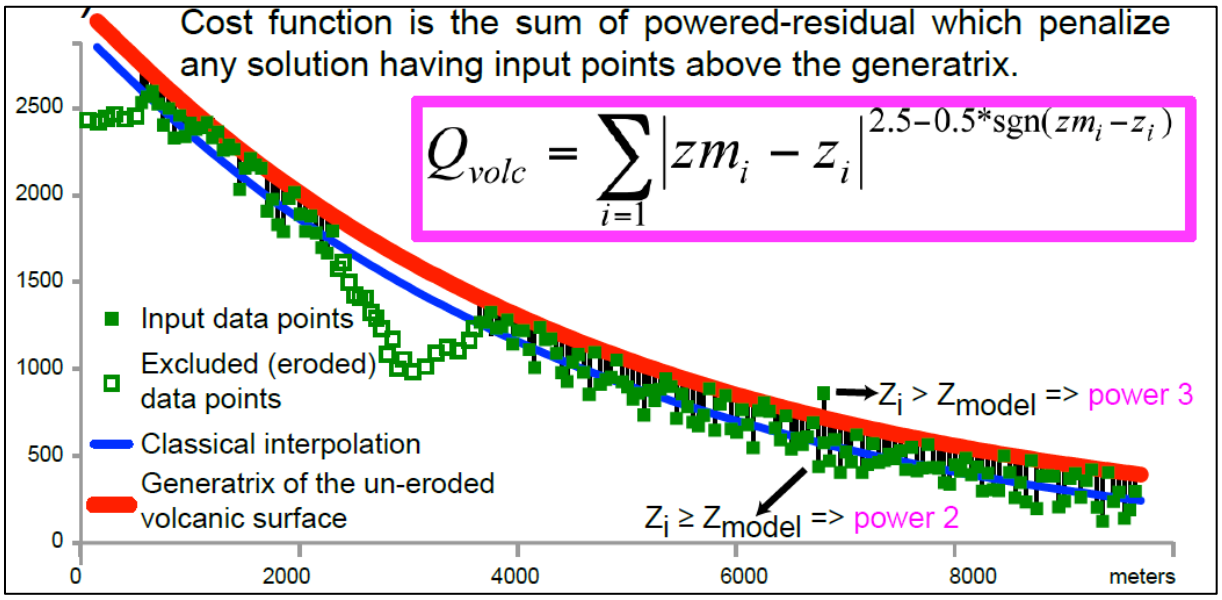


Fig. II-14: Exemple de génératrice calculée comme étant la courbe la mieux adaptée à la surface du volcan modélisé. La courbe rouge représente la génératrix issue d'une méthode d'interpolation sophistiqué (exemple ShapeVolc utilisant le simplex) et la courbe bleue correspond ç celle issue d'une interpolation classique (exemple le krigeage). Les carrés verts ouverts représentent les points exclus tandis que les carrés verts pleins représentent les ponts de contraintes choisis comme étant représentatifs de la surface la plus élevée du paléo-volcan. D'après Hampton and Cole, 2009.

II.6 L'érosion dans les Carpates Pannoniennes : Cas du segment CGH

Le volcanisme des Carpates Pannoniennes de CGH qui couvre une période allant de 11 à 0.03 Ma sous forme de grandes formations volcaniques visibles (Seghedi, 2004) a été analysé. Dans le cadre de ce travail et s'agissant de l'étude de la dynamique de l'érosion, nous nous sommes intéressés au secteur oriental de la chaîne, correspondant au segment le plus jeune et le plus long. Représenté par un volcanisme majoritairement calco-alcalin et lié à une subduction (chapitre I), il montre une variation spatio-temporelle du Nord au Sud faisant de ce segment un secteur idéal pour l'étude de l'érosion sur une longue période.

De plus, selon Suc, 1984; Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006; Magyari et al., 2014, au cours de cette période, les processus d'érosion ont opérés , d'abord et pendant une courte période, sous un climat continental subtropical à modéré, puis sous un climat continental modéré avec des périodes occasionnellement plus sèches (parfois semi-arides) et plus humides, avec identification de régime périglaciaire au Pléistocène ainsi que des glaciations mineures.

Ces dernières années, quelques études portant sur la quantification de l'érosion y ont été menées (Karátson, 1996; Székely and Karátson, 2004; Karátson and Timar, 2005). L'une des toutes premières études à s'intéresser sur les taux d'érosions ainsi que les facteurs qui la contrôle est celle de Karátson (1996) qui a permis sur la base des dégradations des cratères au fil du temps de fournir l'une des premières valeurs de taux d'érosion. Sur la base du bilan de masse entre la roche non-altérée et les produits de l'érosion, Karátson (1996) détermine, un taux d'érosion mécanique moyen de 31.5 m/Ma pour l'ensemble de la chaîne des Carpates Pannoniennes. Ce taux d'érosion (ou taux de dénudation moyen) proposé par Karátson (1996) pour l'érosion à long terme repose essentiellement sur la dégradation des cratères des sommets des volcans les plus élevées et, désigne donc, les crêtes non affectées par des écoulements fluviales. Dans ladite étude qui a marqué les bases de l'étude de l'érosion, l'auteur s'appuie sur l'évolution des diamètres des cratères au cours du temps pour déterminer une vitesse approximative de dégradation des édifices volcaniques (Fig. II-15) par la relation :

$$X = \left(\frac{D-d}{2}\right) * tan\alpha$$

Où « d » représente le diamètre quasi original du cratère (Fig. II-15). Ce diamètre est déterminé par des méthodes indirectes qui se basent sur la détermination des diamètres des cratères de strato volcans actuellement actifs à l'échelle du globe tels que Fuji (520 m), Ontake (480 m), Akagi (700 m), Vesuvio (500 m), Sumbing (680 m) Karátson (1996).
« D » représente le diamètre actuel du cratère de l'édifice volcanique considéré.

Ainsi, sur la base d'une simple régression linéaire, corrélé aux ajustements empiriques, il détermine ce taux de 31.5 m/Ma.

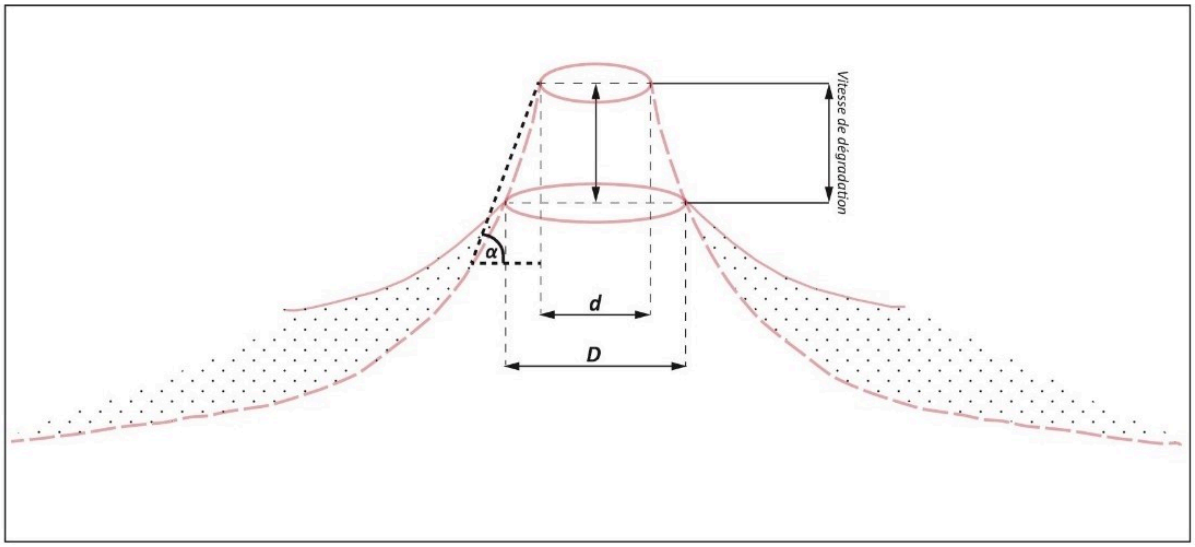


Fig. II-15: Schéma illustratif le calcul des vitesses de dégradation des édifices volcaniques par l'analyse des diamètres de cratères. Modifiée d'après Karátson (1996)

Cette valeur est largement utilisée dans tout le secteur des Carpates comme référence mais, notons néanmoins que dans cette étude, l'auteur n'a pas pris en compte les plus petits édifices (des édifices d'altitude inférieures à 700 m), ce qui pourrait contribuer à surestimer ce taux moyen sur l'ensemble de la zone de CGH en particulier et, sur l'ensemble des Carpates orientales. De plus, il est important de noter que ce taux est basé uniquement sur la diminution des régions situées autour du sommet du volcan (Fig. II-15) et non sur l'ensemble du volcan (la dénudation globale) et par conséquent, ce taux proposé (31.5 m/Ma) aura tendance à être plus élevé (car la baisse est plus importante autour du sommet) que le taux de dénudation globale réel affectant l'ensemble de l'édifice volcanique. Une baisse plus importante autour du sommet est tout à fait logique car dans cette partie du volcan, il présente des pentes beaucoup plus fortes ce qui favorise un ruissellement plus abrasif et par ricochet un démantèlement plus intense. Aussi, au niveau des sommets on note une pluviométrie plus forte et dans des cas favorables une cryoclastie plus intense ; ce qui contribue à accentuer les taux d'érosions. D'ailleurs, ce taux de dénudation affectant l'ensemble de l'édifice aura plutôt tendance à être plus petit avec les restes de flanc inférieurs quasi originaux. C'est sur ce constat que nous préconisons que cette vitesse de dégradation abusivement qualifié de taux de dénudation globale (Karátson, 1996) sur l'ensemble des édifices volcaniques n'est réellement pas le cas et, mériterait d'être recalculé sur toute la chaîne de CGH et ceci à l'échelle de chaque édifice volcanique (ce qui a été effectué dans le cadre de cette ; voir chapitre V).

Il me semble aussi logique que pour mieux présenter la notion d'érosion dans ce secteur, il est judicieux de rappeler les travaux pionniers effectués sur la quantification des volumes de construction (création des reliefs). En effet, pour parler d'érosion, il faut avant construit les structures volcaniques ; ainsi, quantifier la dynamique de l'érosion nécessite au préalable des contraintes sur les volumes émis.

Après l'étude pionnière de Karatson,1996 dans le secteur, quelques études ont tenté de quantifier les volumes de matériels émis (volumes de construction) et érodés (volume de démantèlement) sur ce segment volcanique (Carpates de l'Est ; CGH). L'une des premières études de quantification des volumes sur le segment CGH fût effectuée par Szakacs et al. (1997). En se basant sur la cartographie de chaque formation volcanique, cette première tentative de quantification volumétrique a permis de déterminer un volume total de matériels émis de 1400 km^3 répartis respectivement ainsi par secteur : 400 km^3 pour Călimani, 315 km^3 pour Gurghiu, 285 km^3 pour Harghita du Nord et 180 km^3 pour Harghita du Sud (Fig. I-11). Toutefois, ces valeurs restent indicatives et ne présentent ici aucune*s* incertitudes.

Une seconde étude de quantification des volumes de Karátson and Timár (2005) effectuée sur la même chaine volcanique de CGH ainsi que sur la partie septentrionale de celle-ci a été effectué cette fois-ci en y associant la quantification de volumes érodées. Grâce à l'accès plus facile au grand public des MNT (SRTM à 90m de résolution), cette étude a pu quantifier et proposer des volumes de matériels émis et érodés. Elle s'appuyait sur la volumétrie des édifices volcaniques actuels et sur un profil moyen empirique des volcans sélectionnés le long de tout le segment pour estimer l'érosion (c'est-à-dire les volumes manquants dans les vallées représentatives des structures volcaniques). Sur cette base, ils proposent un volume total de matériel émis de 1606 km^3 contrairement au 1400 km^3 précédemment calculé avec respectivement des volumes de 466±45 km^3, 709±48 km^3, 222±22 km^3 et 166±13 km^3 pour les secteurs de Călimani, Gurghiu, Harghita du nord et Harghita du sud.
Cette étude a aussi le mérite d'établir également dans le secteur l'une des toutes premières quantifications de volume de matériels érodé affectant les différents édifices volcaniques de la chaîne. Il nous propose un volume total de matériel érodés pour le secteur de Călimani de 93±45 km^3, de 190±63 km^3 pour Gurghiu, de 39±15 km^3 pour le secteur Nord de Harghita et enfin de 27±24 km^3 pour le secteur Sud de Harghita.

Ces deux études (Szakács; Karátson and Timar, 2005) montrent clairement une migration c'est-à-dire, une diminution de l'activité volcanique (des volumes construits) du Nord de la chaîne vers le sud. Les approches développées dans ces deux études sont bonnes et acceptables

pour obtenir une gamme de magnitude de volume. Mais, notons tout de même que dans la mesure où, dans ces études, la reconstruction numérique de la totalité des formes originelles (forme avant le début du démantèlement) n'a pas été réalisée, ces résultats volumétriques peuvent être légitimement suspectés d'être des volumes minimisés.

C'est ainsi, que dans ce travail nous avons jugé utile de revisiter cette quantification des volumes en utilisant des méthodes de quantification beaucoup plus affinées et objectives basées principalement sur la reconstruction des paléo-surfaces des édifices volcaniques avec pour ossature, des principes mathématiques garantissant des volumes beaucoup plus réalistes (voir chapitre III).

L'érosion dans les Carpates affecte aussi les types de morphologie observés au niveau des édifices volcaniques et est responsable de morphologies particulières telles que des calderas et ou cratères de type d'érosion (Fig. II-9 ; Fig. I-11). Ces structures primaires sont le plus souvent caractérisées par des formes géométriques plus ou moins circulaires traduisant ainsi la non signature ou alors une influence minimale de l'érosion (Fig. II-9 ; Fig. I-11) ; ainsi, plus l'édifice volcanique est récent (jeune) moins la signature de l'érosion est marquée (visible). A contrario, plus il est vieux (supérieur au million d'année par exemple) plus les structures primaires sont impactées passant des formes circulaires aux formes allongées à dissymétriques (Fig. II-9 ; Fig. I-11).

La chaîne des Carpates et plus précisément son segment oriental regroupe donc toutes les caractéristiques idéales à l'étude du comportement de l'érosion en contexte continental. Etudier l'érosion sur cette chaîne permettra d'apporter de nouvelles contraintes majeures sur la compréhension de l'évolution temporelle de l'érosion non plus seulement à l'échelle globale la chaîne mais aussi à l'échelle de chaque édifice volcanique par le calcul des volumes émis et érodés de chaque volcan, le calcul des taux de dénudation, le calcul du taux d'érosion moyen affectant individuellement chaque volcan et enfin de préciser les caractéristiques morphologiques auxquelles appartiennent les volcans de CGH en suivant l'approche développée par Grosse et al. (2014). En plus de l'analyse de ces éléments, nous évaluerons aussi l'impact des évènements climatiques et la tectonique sur la dynamique de l'érosion (comme mentionné au niveau de la section II.3) ainsi que les morphologies observées.

Table des figures chapitre II :

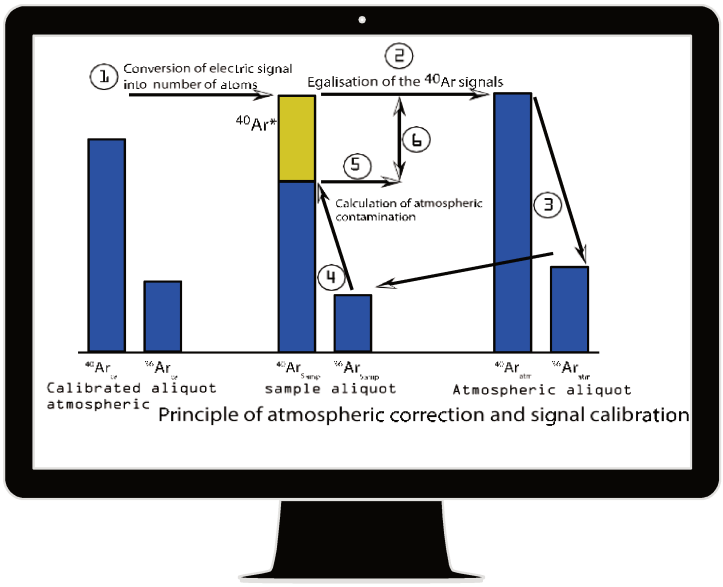
FIG. II-1: 3D VIEW OF SEACA-TATARCA VOLCANO OF THE CGH VOLCANIC RANGE..... 66
FIG. II-2: COUPLAGE ENTRE ALTERATION CHIMIQUE ET DENUDATION TOTALE, MODELES (COURBES NOIRES) ET COMPARAISON AVEC DES DONNEES EMPIRIQUES. A) (DIXON ET AL., 2009) ; B) (GABET AND MUDD, 2009).. 69
FIG. II-3: REPRESENTATION OF THE EROSION BEHAVIOUR (HTTPS://WWW.PINTEREST.FR/PIN/505669864384586537/) 71
FIG. II-4: CRIOCLASTS RESULTING FROM THE EFFECT OF THE GEL, ... 72
FIG. II-5: RELATIONS OBSERVEES ENTRE LA PENTE MOYENNE ET LA VITESSE D'EROSION DES SOLS ; EXEMPLE 'UN BASSIN VERSANT SITUE DANS LES «OLYMPUS MOUNTAINS »,USA (MONTGOMERY AND BRANDON, 2002). L'APPARITION DES GLISSEMENTS DE TERRAIN MODIFIE LA RELATION ENTRE LA PENTE ET LES VITESSES D'EROSION POUR DES INCLINAISONS SUPERIEURES A 25-30 ° (MONTGOMERY AND BRANDON, 2002) 74
FIG. II-6: EROSION MECANIQUE ET CHIMIQUE POUR LES PLUS GRANDS BASSINS VERSANTS MONDIAUX. L'EROSION MECANIQUE EST TOUJOURS PLUS IMPORTANTE QUE L'EROSION CHIMIQUE, ET REPRESENTE L'ESSENTIEL DU TAUX DE DENUDATION POUR LES BASSINS DRAINANT. D'APRES (PUCHOL, 2013) 75
FIG. II-7: COUPE ILLUSTRANT LES COUPLAGES TECTONIQUE–EROSION–SEDIMENTATION–CLIMAT (D'APRES GRAVELEAU & DOMINGUEZ, 2008). 76
FIG. II-8 : REPRESENTATION OF THE GEOMORPHOLOGICAL EVOLUTION OF A SIMPLE VOLCANO MODIFIED FROM (COTTON, 1952; OLLIER, 1988) 78
FIG. II-9: A) CLASSIFICATION DES DEPRESSIONS DANS LES TERRAINS VOLCANIQUES MODIFIEE D'APRES KARATSON ET AL. (1999). B) EXEMPLE DES VOLCANS FANCEL-LAPUSNA ET SEACA-TATARCA ; C) COMPLEXE VOLCANIQUE DE CIOMADUL ET D) ŞUMULEU ; CIUMANI-FIERĂSTREI (SEGMENT VOLCANIQUE CGH)..... 81
FIG. II-10: DECREASE IN CHEMICAL WEATHERING RATES CORRELATED WITH THE MEAN AGE OF THE WATERSHED, SHOWING AN ALTERATION THRESHOLD AT LOW WEATHERING RATES ONCE SOILS FORM. FROM RAD ET AL. (2013) 86
FIG. II-11: CHEMICAL WEATHERING RATE (T/KM^2/YR) VERSUS MECHANICAL EROSION RATE (T/KM^2/YR) IN SILICATE RIVER BASINS (ADAPTED FROM MILLOT ET AL., 2002) AND IN ARC VOLCANIC ISLANDS FROM THIS STUDY (BLACK CIRCLES: GUADELOUPE, BLACK SQUARES: MARTINIQUE) AND JAVA (LOUVAT, 1997). IT SEEMS THAT ARC VOLCANIC ISLANDS (LESSER ANTILLES, JAVA) FOLLOW A DIFFERENT CORRELATION LAW THAN THAT APPLIED TO GRANITOID AND BASALT IN MILLOT ET AL. (2002). NOTE THAT THE CHEMICAL WEATHERING RATES REPORTED FOR THE LESSER ANTILLES AND RÉUNION ARE MEAN VALUES WHICH INCLUDE SUBSURFACE WATERS..... 88
FIG. II-12: ILLUSTRATION D'UN VOLCAN AVEC DES SECTEURS EN ROSES REPRESENTATIF DE LA SURFACE POST-ERUPTIVE (MODIFIE D'APRES HAMPTON AND COLE, 2009)..... 89
FIG. II-13: REPRESENTATION D'UN EDIFICE VOLCANIQUE (CAS DU VOLCAN VARGHIS DU SEGMENT VOLCANIQUE CGH) MONTRANT LE PROTOCOLE DE QUANTIFICATION DES VOLUMES ET TAUX D'EROSION (VOLUME ACTUEL REPRESENTE PAR LE MNT ET LE VOLUME ORIGINAL REPRESENTE PAR LA GRILLE TRIANGULAIRE) 90
FIG. II-14: EXEMPLE DE GENERATRICE CALCULEE COMME ETANT LA COURBE LA MIEUX ADAPTEE A LA SURFACE DU VOLCAN MODELISE. LA COURBE ROUGE REPRESENTE LA GENERATRIX ISSUE D'UNE METHODE D'INTERPOLATION SOPHISTIQUE (EXEMPLE SHAPEVOLC UTILISANT LE SIMPLEX) ET LA COURBE BLEUE CORRESPOND Ç CELLE ISSUE D'UNE INTERPOLATION CLASSIQUE (EXEMPLE LE KRIGEAGE). LES CARRES VERTS OUVERTS REPRESENTENT LES POINTS EXCLUS TANDIS QUE LES CARRES VERTS PLEINS REPRESENTENT LES

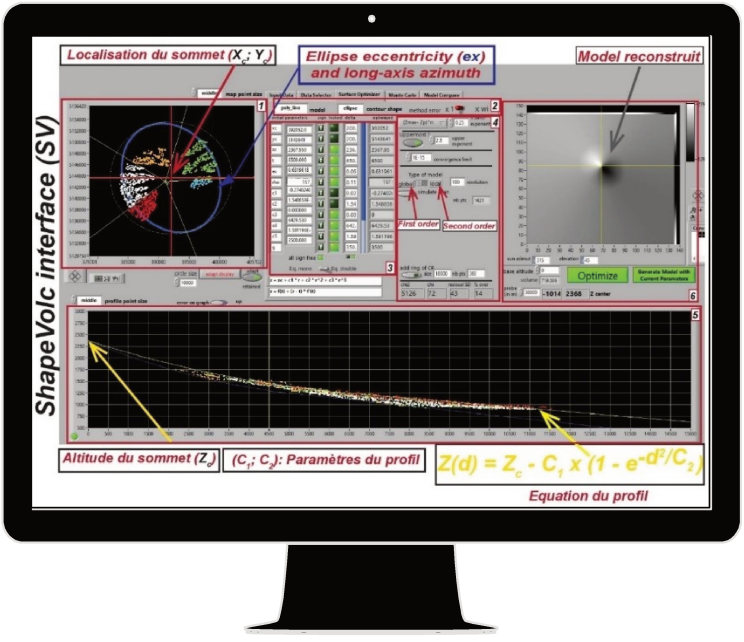
PONTS DE CONTRAINTES CHOISIS COMME ETANT REPRESENTATIFS DE LA SURFACE LA PLUS ELEVEE DU PALEO-VOLCAN. D'APRES HAMPTON AND COLE, 2009. 92
FIG. II-15: SCHEMA ILLUSTRATIF LE CALCUL DES VITESSES DE DEGRADATION DES EDIFICES VOLCANIQUES PAR L'ANALYSE DES DIAMETRES DE CRATERES. MODIFIEE D'APRES KARATSON (1996) 94

Tables chapitre II :

TABLE II-1 :LES PRINCIPAUX NUCLEIDES COSMOGENIQUES UTILISES EN GEOSCIENCES PRODUITS DANS L'ATMOSPHERE (ATM.) ET DANS LES ROCHES EXPOSEES A LA SURFACE DE LA CROUTE TERRESTRE (PRODUCTION IN SITU) (MODIFIE D'APRES BOURLES ET AL., 2008; LEBATARD AND BOURLES, 2015). 85

Chapitre III
METHODES : Géochronologie et Géomorphologie





Pour le commun des mortels, le temps n'est qu'une notion abstraite qui se matérialise le plus souvent par l'aiguille de l'horloge qui marque les secondes, les minutes ou les heures, le calendrier qui indique les jours, les mois, les années. En géologie, et en volcanologie particulièrement, il représente un des paramètres le plus important et est le plus souvent matérialisé par une séquence de roches, comme des empilements de laves successifs façonnant des paysages au fil des éruptions. Cet empilement matérialise le temps géologique : temps de mise en place des différentes couches de laves conduisant à la formation d'un massif, puis, vient l'érosion, responsable du spectacle qui nous offre une modification significative des paysages au fil de centaine voire milliers d'années.
Associé aux autres paramètres que sont la pétrologie des roches, la pression et la température, ils permettent tous de caractériser les processus géologiques en termes d'âge, de durée et de vitesse des phénomènes (de construction et de destruction des reliefs).

La géochronologie a pour but fondamentale de donner un âge à un objet (datation absolue). Ainsi, le géologue géochronologue a donc pour principal challenge d'interpréter cet âge afin de pouvoir l'utiliser dans une démarche de compréhension et de caractérisation d'un phénomène géologique et ceci, dans différents champs d'action. Pour cela, il faut avoir conscience de la méthode et de la technique mises en jeu dans la détermination de ces âges afin de pouvoir en attribuer une réelle valeur géologique.

Le problème que pose la datation est la connaissance des échanges des éléments chimiques entre l'objet étudié et l'extérieur en fonction des paramètres de pression, température, présence de fluides et déformation. En effet, il est possible de déterminer un âge significatif que si seulement l'objet étudié est resté fermé pour l'un des deux éléments du couple père/fils. Pour cela, la géochronologie doit donc connaître les caractéristiques essentiels (demi-vie, conditions de migration, minéraux d'accueil (minéraux hôtes), etc.) de tous les éléments radioactifs utilisables et, connaître aussi les conditions de formations et d'échanges d'éléments chimiques des minéraux utilisés pour la datation.

Au niveau des Carpates Pannoniennes, dater l'activité volcanique permettra de quantifier la dynamique de construction et de démantèlement de cette chaîne. Les contraintes géochronologiques obtenues et les modélisations des morphologies juvéniles par analyse morphométrique des surfaces topographiques permettront de mieux caractériser la dynamique volcanique et de contraindre le phasage du développement de son orogénèse. Le calcul des volumes démantelés obtenu par analyse de différence entre les paléo-topographies modélisées et la topographie actuel évaluera les taux d'érosion à long terme intégrant ainsi l'influence

climatique sur l'érosion. Ces données pourraient également enrichir les contraintes visant à rechercher les zones géographiques offrant actuellement un climat analogue à celui ayant régné durant le Miocène.

Une grande partie de ce travail a déjà fait l'objet de 3 publications (Karátson et al., 2019; Lahitte et al., 2019; chapitre IV) et Dibacto et al., 2020 (chapitre V).

SOMMAIRE

III. 1 GEOCHRONOLOGIE K-AR 103
III. 1.1 Points sur les données géochronologiques antérieures des Carpates Pannoniennes 103
III. 1.2 Présentation générale de l'horloge K-Ar 106
III. 1.2.1 Sélection et préparation 108
III. 1.2.2 Mesures du Potassium et de L'argon 110
III. 1.2.2.1 Mesure du potassium 111
III. 1.2.2.2 Mesure de l'argon 112
III. 1.2.2.2.1 Extraction (1) et Purification (2) 112
III. 1.2.2.2.2 Analyse isotopique : spectrométrie de masse 113
III. 1.2.2.2.3 Calibration et correction atmosphérique 114
III. 1.2.2.3 Calcul de l'âge et de l'incertitude 116
III. 1.3 Limites de la méthode 117
III. 1.3.1 Perte d'argon 117
III. 1.3.2 Lessivage du potassium 118
III. 1.3.3 Excès d'argon 118
III. 1.3.4 Problème de la Contamination atmosphérique 120

III. 2 GEOMORPHOLOGIE 123
III. 2.1 Définition et concepts 123
III. 2.2 Reconstructions numériques des volcans 126
III. 2.2.1 Définition et limites 126
III. 2.2.2 Définition et sélection de la surface de base des volcans de CGH 129
III. 2.2.2.1 Principe 129
III. 2.2.2.2 Sélection des points 132
III. 2.2.2.3 Sélection des points de contraintes : reconstructions numériques des édifices volcaniques 134
III. 2.2.2.3.1 La pente topographique 135
III. 2.2.2.3.2 L'indice de position topographique 136
III. 2.2.2.3.3 L'angle d'ouverture topographique (Op) 139
III. 2.2.3 Outils et méthodes d'interpolations 146
III. 2.2.3.1 Interpolation par krigeage ou Kriging 146
III. 2.2.3.1.1 Principes 146
III. 2.2.3.1.2 Les limites 148
III. 2.2.3.2 Interpolation via l'algorithme ShapeVolc 151
III. 2.2.3.2.1 Présentation 151
III. 2.2.4 Quantification des volumes construits et érodés 158

III. 1 Géochronologie K-Ar

Cette partie a pour but de présenter la méthode de datation mise en œuvre dans le cadre de cette thèse. Tout d'abord un point sur les données géochronologiques antérieures de la chaîne des Carpates Pannoniennes, suivi de la présentation de l'aspect théorique et le principe général de l'horloge K-Ar, ainsi que son principe de fonctionnement, ses avantages et ses limites, seront expliqués. La préparation des échantillons et le mode analytique y sont aussi détaillés. Les aspects plus techniques des manipulations en laboratoire y seront à chaque fois présentés de façon succincte.

Les nouvelles données géochronologiques acquises dans cette thèse apportent de nouvelles contraintes et une meilleure reconstitution de la séquence chronologique de mise en place du volcanisme le long des Carpates Pannoniennes.

III. 1.1 Points sur les données géochronologiques antérieures des Carpates Pannoniennes

Depuis les années 1970, un certain nombre d'âges radiométriques sur le secteur oriental et occidental de la chaîne a permis de faire le point notamment sur l'interprétation et la distribution spatiale de ce volcanisme. La chaîne des Carpates Pannoniennes, subdivisée en trois ensembles (occidentale, méridionale et orientale), est caractérisée par différents types de produits volcaniques à savoir, des coulées de laves principalement et tous autres produits volcaniques (dépôts pyroclastiques et ignimbritiques) ayant des spécificités liées au contexte géotectonique locale (cf. Chapitre I) ; ce qui introduit une démarche analytique au cas par cas en fonction de chaque secteur. Compte-tenu de sa grande diversité temporelle (22 Ma-0.03 Ma ; Peltz et al., 1987; Szakács et al., 1993, 1995; Lang et al., 1994; Pécskay et al., 1995, 2006; Seghedi et al., 2004, 2005; chapitre I), contraindre sa chronologie de construction et par la suite calculer les volumes, les vitesses de construction et de destruction nécessitent des chronomètres adéquats i.e., des chronomètres qui minimisent autant que possible les incertitudes associées aux âges proposés et, surtout capables de couvrir la large gamme de période d'activité de ce volcanisme.

Le chronomètre K-Ar utilisé pour la plupart des datations dans le secteur permet de dater le matériel échantillonné via deux méthodes : ^{40}K-^{40}Ar et $^{40}Ar/^{39}Ar$. L'utilisation de l'une ou l'autre dépendra principalement du contexte géodynamique. Par exemple, ce volcanisme appartenant à la série calco-alcaline (voir chapitre I), rend difficiles à ce jour d'être daté aisément par la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ du fait principalement de l'irradiation des échantillons et la formation des isobares pouvant biaiser le calcul d'âge. De plus son utilisation imposent de nombreuses corrections compte tenu des réactions secondaires (principalement avec le

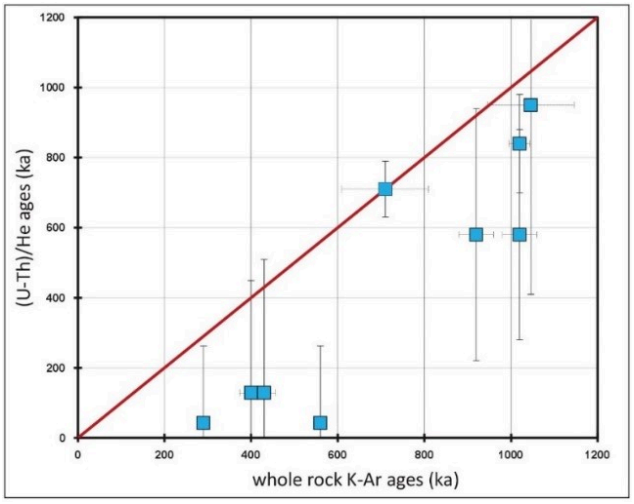
calcium,) se produisant lors de l'irradiation (McDougall et Harrison, 1988), mais aussi de l'effet de recul possible que l'on observe, compliquant ainsi par exemple la datation d'échantillons très fins (texture microlitique) ou vitreux (McDougall et Harrison, 1988).

Par contre, la méthode de datation K-Ar permet de dater des formations ayant du calcium sans nécessité d'effectuer des corrections d'irradiation d'échantillons et surtout, permet la mesure de faibles teneurs en $^{40}Ar^{*}$ (argon radiogénique), et donc adaptée à la datation de laves (ou tout autres matériels). Contrairement à la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ qui présente un protocole assez long de mise en œuvre et de mesure, la méthode K-Ar présente une mise en œuvre et mesure rapide. Ainsi, dans cette thèse, c'est la méthode K-Ar qui a été privilégiée.

La plupart des âges issus de la littérature dans la partie Est (segment Calimani-Gurghiu-Harghita), Ouest (Borzony, Mátra, Bükk) des Carpates Pannoniennes a été obtenu par la méthode de datation K-Ar sur roche totale utilisant un spike ^{38}Ar (Peltz et al., 1987; Szakács et al., 1993, 1995; Lang et al., 1994; Pécskay et al., 1995, 2006; Seghedi et al., 2004, 2005). Une datation roche totale implique que la roche analysée est broyée dans toute son entièreté et datée sans séparation des différentes phases minéralogiques présentes dans ladite roche (toutes les phases minérales de la roche sont datées). Cependant, une telle méthode incorpore dans les fractions à dater, des phases minérales susceptibles de contenir de l'Argon hérité et/ou des phases minéralogiques ayant subir une perte ou gain de K (cette notion est largement abordée dans la section III.3).

En dehors du chronomètre K-Ar utilisé ici sur roche totale, peu d'âges au niveau de ce secteur (notamment dans la partie SE du segment CGH) sont obtenus par le chronomètre (U-Th)/He sur zircon, (Panaiotu et al., 2012; Karátson et al., 2013; Harangi et al., 2015; Molnar et al., 2016, 2018, 2019) ainsi que via des mesures paléomagnétiques (Márton and Márton, 1996; Márton et al., 2000; Panaiotu et al., 2012). Sur cette base, les études antérieures ont proposé une activité volcanique allant de 17 Ma — < 1 Ma. Depuis plus d'une dizaine d'années, une attention toute particulière est accordée au volcanisme Plio-Quaternaire du SE de la chaîne (complexe de Ciomadul) dont l'activité se déroule entre 1 Ma-0.2 Ma pour contraindre aussi précisément que possible son volcanisme via la géochronologie. Or les âges K-Ar obtenus sur roche totale pour ce jeune complexe volcanique se sont avérés largement différents des résultats obtenus via d'autres chronomètres comme le (U-Th) /He sur Zircon. En effet, des études récentes ont mis en évidence des différences entre différents chronomètres notamment les âges K-Ar sur roche totale (Pécskay et al., 1995, 2006; Szakacs et al., 2015) et les âges U-Th/He sur zircon (Panaiotu et al., 2012; Karátson et al., 2013; Harangi et al., 2015; Molnar et al., 2016, 2018, 2019) (Fig. III-1 ;Table. III-1). Ces différences d'âge peuvent être liée à l'inadéquation des

datations sur roche totale pour dater le volcanisme récent car, les minéraux formés précocement dans la chambre et inclus dans la roche pourraient biaiser les résultats. Cette question sera largement traitée au cours de ce travail.



Official name	Method	Dated fraction	Age (ka)	Publication
Dealul Babei	K-Ar	whole rock	1046±270	Szakács et al. 2015
	(U-Th)/He	zircon	950±50	Molnár et al. 2016
Dealul Mare	K-Ar	whole rock	1020±70	Szakács et al. 2015
	(U-Th)/He	zircon	840±12	Molnár et al. 2016
Balvanyos	K-Ar	whole rock	920±180 1020±150	Pécskay et al. 1995
	(U-Th)/He	zircon	580±20	Molnár et al. 2016
Muntele Puturosu	K-Ar	whole rock	710±40	Szakács et al. 2015
	(U-Th)/He	zircon	710±50	Molnár et al. 2016
Dealul Cetăţii	K-Ar	whole rock	400±160; 430±190	Szakács et al. 2015
	(U-Th)/He	zircon	116-142?	Karátson et al.2013 Molnár et al.2016
Virful Comlos	(U-Th)/He	zircon	100-160	Karátson et al.2013 Molnár et al. 2016
Piscul Pietros	K-Ar	whole rock	560±110	Pécskay et al. 1995
	K-Ar	biotite	290±110	Szakács et al. 2015
	(U-Th)/He	zircon	42.9 (+1.4, −1.5)	Harangi et al. 2015

Fig. III-1: Comparaison des résultats K-Ar sur roche totale et (U-Th)/He sur zircon des dômes de laves du complexes volcanique de ciomadul ; ces résultats montrent une large différence de résultat entre les deux méthodes avec des datations K-Ar assez mal contraintes (barres d'erreurs très grandes) contrairement aux datations (U-Th)/He sur Zircon.
Table. III-1 : comparaison âges K-Ar roches totales et (U-Th) /He.

Au niveau de la partie occidentale des Carpates Pannoniennes de nombreuses études ont essayées de contraindre le volcanisme et proposent une activité évoluant entre 22 Ma-12 Ma (Karátson et al., 2000; Karátson and Németh, 2001; Lukács et al., 2015, 2018). Cette activité volcanique a été pour la plupart contrainte par les datations K-Ar sur roche totale (pour des coulées de laves) et sur biotites (issus des dépôts ignimbritiques) identifiés sur le secteur et grâces aux mesures paléomagnétiques (Márton and Márton, 1996; Márton et al., 2000, 2007).

Dans le but de valider ou d'infirmer les résultats précédents obtenus via différents chronomètres, nous avons dans cette étude utiliser le chronomètre K-Ar via la technique Cassignol-Gillot sur phase séparée pour contraindre l'activité volcanique du secteur.

La méthode de datation K-Ar utilisant la technique Cassignol- Gillot (Cassignol et al., 1978; Cassignol, 1979; Gillot and Cornette, 1986), dont les principes sont décrits ci-dessous, est parfaitement appropriée pour dater l'activité volcanique de la chaîne des Carpates. En effet, rappelons que cette méthode permet de détecter jusqu'à 0,1% d'argon radiogénique dans l'argon total extrait d'un échantillon. Des comparaisons entre les âges obtenus par cette méthode et d'autres méthodes de datation (thermoluminescence, carbone 14, paléomagnétisme, $^{40}Ar/^{39}Ar$ montrent que la technique Cassignol-Gillot permet de dater des évènements volcaniques de moins de 2 ka (Gillot and Cornette, 1986; Quidelleur et al., 2001; Gillot *et al.*,

2006). En ce qui concerne les échantillons de plus de 1 Ma, l'incertitude relative est de l'ordre de 1,5%.

III. 1.2 Présentation générale de l'horloge K-Ar

Les principes généraux de la méthode potassium-argon furent établis par Aldrich et Nier (1948) et reposent sur ceux de la radiochronologie (Faure, 1986 ; Dickin, 1997 ; Wagner, 1998). Depuis lors, elle est devenue d'un usage courant en raison de la diversité de matériel géologique qu'elle permet de dater, de la large gamme d'âge qu'elle peut couvrir (Fig. III-2), et d'une mise en œuvre relativement aisée comparé aux autres chronomètres comme le Rb-Sr, U-Pb, ou Sm-Nd (Fig. III-2).

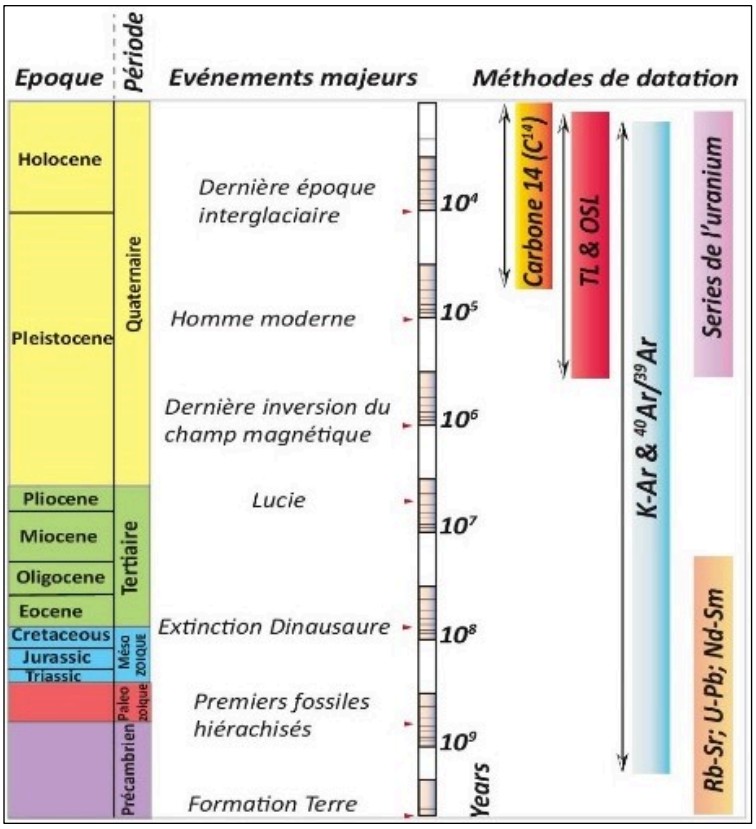


Fig. III-2: Les différentes méthodes de datations appliquées aux Sciences de la Terre

Le potassium (K) est un élément constitutif des roches de la croûte terrestre et possède trois isotopes en abondances variables : ^{39}K (93,2581%), ^{40}K (0,01167%) et ^{41}K (6,73020%) (Nier, 1950; Garner et al., 1975). Seul le ^{40}K est radioactif et se désintègre en ^{40}Ar et ^{40}Ca, avec des périodes de décroissance de $0{,}581.10^{-10}$ an^{-1} pour le couple ^{40}K-^{40}Ar et de $4{,}962.10^{-10}$ an^{-1} pour le couple ^{40}K-^{40}Ca (Steiger and Jäger, 1977; Fig. III-3). L'argon quant à lui est un gaz noble (chimiquement inerte), naturellement présent dans l'atmosphère, et constitué de trois isotopes : ^{40}Ar (99,600 %), ^{38}Ar (0,063 %), ^{36}Ar (0,337 %) où l'isotope 40 est 295,5 (~296) fois plus abondant que l'isotope 36 (Nier, 1950; Garner et al., 1975). L'argon occlus dans une roche volcanique provient de deux sources : 1) L'argon radiogénique (^{40}Ar*), qui est produit par

désintégration du ^{40}K. C'est celui donc qu'on veut quantifier. 2) L'argon atmosphérique ($^{40}Ar_{atm}$) qui provient de la contamination de la lave par de l'argon de l'atmosphère piégé lors du refroidissement du magma. A cela s'ajoute une petite contribution en argon des instruments de mesure (lignes d'extraction et spectromètre de masse). L'$^{40}Ar^*$ ne peut s'accumuler dans le réseau cristallin du minéral qu'à partir du moment où le système se ferme et qu'il n'y a plus d'échange avec l'extérieur, c'est-à-dire dès lors que la roche est totalement refroidie et cristallisée. Ainsi, pour que l'âge obtenu avec ce chronomètre corresponde à celui de l'évènement volcanique, il doit y avoir eu diffusion totale de l'$^{40}Ar^*$ produit par le ^{40}K lors de la formation du magma parent et durant son stockage en profondeur, permettant une remise à zéro du système. Logiquement, si le dégazage a été incomplet ou si le magma a incorporé des minéraux étrangers lors de sa remontée, il y a un risque d'héritage d'argon concourant donc à donner à ce matériel un âge apparent plus élevé que l'évènement volcanique associé (nous développerons cette notion plus loin dans le texte).

Pour s'affranchir donc de ce type de problèmes, la technique de datation K-Ar Cassignol-Gillot sur phase séparée est recommandée et utilisée ici pour contraindre l'activité volcanique. Elle s'applique sur des roches saines, rigoureusement sélectionnées, tout d'abord sur le terrain puis au laboratoire après un examen pétrographique. Cette analyse pétrographique permet de choisir les phases minérales adaptées au chronomètre K-Ar, dont le réseau cristallin fait montre d'une bonne capacité à retenir l'argon en son sein. On considère donc comme valable les datations réalisées sur des phases minérales et /ou phases pures et homogènes, principalement le verre, la mésostase, mais aussi les feldspaths (en l'occurrence des microlites de plagioclase, sanidine). En revanche, les minéraux précoces (premiers formés selon la suite réactionnelle de Bowen) c'est-à-dire qui ont tendance à cristalliser très tôt dans la chambre magmatique ou dans le conduit éruptif sont systématiquement éliminés (olivines, pyroxènes, amphiboles, biotite, etc.). Cependant, dans le cas des dépôts pyroclastiques (dépôts ignimbritiques, ponces et autres), les principales phases dater sont des feldspaths potassiques s'ils existent, avec en plus pour les formations récentes (< 1Ma), le verre s'il est resté suffisamment sain, et pour des formations anciennes (> 2 Ma), des phases telles que biotite ou amphibole.

Une fois ce décor planté, nous vous présenterons les grandes lignes de la technique K-Ar Cassignol- Gillot appliqué au secteur volcanique des Carpates Pannoniennes. On verra dans les paragraphes suivants que sa fiabilité repose autant sur ses spécificités analytiques qu'à la rigueur qui préside à la sélection de la fraction sur laquelle la datation est réalisée.

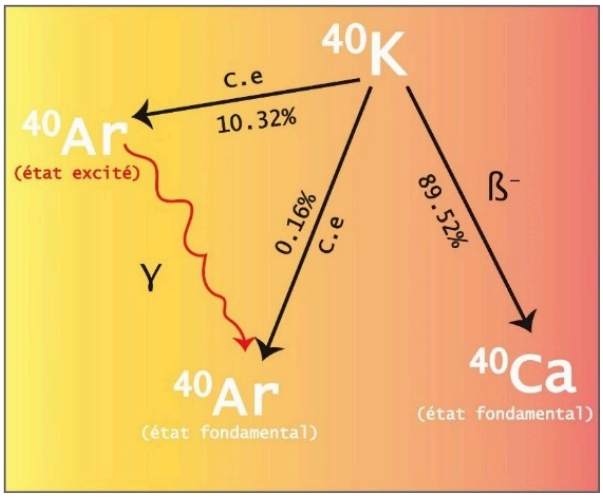


Fig. III-3 :: Radioactive decay of ^{40}K into ^{40}Ar and ^{40}Ca.

III. 1.2.1 Sélection et préparation

Dans le cas de matériels laviques, les échantillons sont composés de verre, de pâte microlitique plus ou moins fine (la mésostase) et de micro et phénocristaux de différentes familles minéralogiques. Rappelons que, le potassium étant un élément à fort rayon ionique donc incompatible, présente une très grande affinité avec le liquide résiduel, il va rester préférentiellement concentré dans ce liquide lors de la cristallisation. La mésostase est la dernière phase à cristalliser, par conséquent elle se sera enrichie en potassium lors du refroidissement de la coulée. Ainsi, parce qu'enrichie en potassium donc en argon radiogénique, et parce assurément elle n'accumule cet argon radiogénique que depuis l'éruption, c'est la mésostase qui est généralement retenue pour effectuer les analyses sur les différents types de roches volcaniques (basaltes, andésites, dacites et rhyolites). Il est tout de même possible d'obtenir des résultats fiables sur des phases minérales pures séparées telles que les microlites de plagioclase, de feldspath potassique ainsi que sur le verre volcanique (qui sont aussi contemporains du dernier événement thermique).

La toute première étape de sélection a lieu sur le terrain, où la partie interne des blocs (le cœur des prismes) est échantillonnée afin de minimiser le risque de contamination induit par l'altération. Dans un second temps (en laboratoire) un examen pétrographique minutieux des lames minces est indispensable. En effet, l'analyse des lames minces permet d'identifier les roches qui ne présentent pas des traces d'altération, la phase à dater (mésostase, feldspaths, ou autres), ainsi que la taille de grain optimale afin d'éviter l'incorporation de toute autre phase minérale. Une fois les échantillons validés, la roche est ensuite sciée en morceaux pluri-centimétriques tout en prenant bien évidemment soin d'enlever les impuretés (patine ou trace d'altération) puis ils sont broyés manuellement ou dans un broyeur à mâchoires et tamisées à 40-80 µm, 62,5-125 µm ou à 125–250 µm (en fonction du résultat de l'analyse de la lame-

mince), puis nettoyées d'abord dans de l'eau courante pour enlever le maximum de poussière et ensuite, dans une solution d'acide nitrique à 10% durant 15 minutes dans une cuve à ultrasons. On termine le protocole de nettoyage à l'eau distillée, puis à l'éthanol et enfin à l'acétone.

Une fois le matériel sec, les différentes phases minérales en présence sont séparées. Pour cela, nous avons recours tout d'abord aux liqueurs denses (Fig. III-4): le diodométhane (dont la densité pure est autour de d=3,30) pour séparer les phases minérales lourdes (olivines, pyroxènes, amphiboles, biotites, etc.) ainsi que la mésostase des roches présentant des affinités basaltiques (avec des densités > 2,85), et/ou du bromoforme (d=2,85) pour les phases minérales à densités inférieures à ce seuil comme les feldspaths, le verre, ou la mésostase des roches plus acides. Le mécanisme courant de séparation consiste à homogénéiser la poudre d'échantillon et le liquide dans une ampoule à décanter, les minéraux plus lourds que le liquide tombent, les plus légers flottent. On récupère les phases lourdes dans un filtre, puis on rajoute au liquide un solvant (de l'acétone pour le diodométhane, de l'alcool pour le bromoforme, pour deux de densité 0,8) pour faire diminuer la densité de la liqueur. On récupère alors dans un nouveau filtre les grains qui étaient auparavant plus légers que la densité précédente et qui sont à présent plus lourds que la densité obtenue après l'ajout du solvant. On procède ainsi jusqu'à séparation totale de l'échantillon. Des gammes de densité étroites typiquement de 0,05 ont été retenues pour ne sélectionner que la partie la plus fraîche de la mésostase et éliminer la fraction de densité inférieure potentiellement altérée ou contenant des produits hydrothermaux tels qu'argile, soufre, carbonate, zéolite, sel (le chlore qui possède des isobares de l'argon). Après nettoyage, évaporation et séchage, une ultime séparation avec un séparateur magnétique ou manuellement à l'aimant permet d'éliminer les quelques grains non désirés : par exemple, des grains de plagioclases amagnétique dans une fraction de mésostase magnétique, dans le cas où les plages de densités de ces deux phases se chevauchent. L'homogénéité des différentes fractions retenue est par la suite vérifiée sous loupe binoculaire avant validation finale.

Issu d'un bloc de 2-3 kg, l'échantillon se présente alors sous la forme d'une vingtaine de gramme de granulat de composition homogène, sur lesquels des mesures indépendantes de potassium et d'argon seront effectuées.

Les grains constitués de phase minérale pure (pyroxène, amphibole, biotite, oxydes ou plagioclase) ont donc été systématiquement exclu dans le cas de la préparation des échantillons correspondant aux coulées de lave car, ces phases auraient pu cristalliser plus tôt et plus en profondeur dans la chambre magmatique (Dalrymple and Moore, 1968). Généralement, dans de tels cas, ils ne sont pas représentatifs de l'âge de l'éruption et peuvent contenir un excès

d'argon hérité important (Dalrymple and Moore, 1968; Ozawa et al., 2006; Lahitte et al., 2019) (voir section III. 1.3).

Fig. III-4 : Etapes majeures de préparation d'échantillons pour des datations K-Ar

III. 1.2.2 Mesures du Potassium et de L'argon

Rappelons que, selon la technique de mesure conventionnelle, le potassium et l'argon sont dosés séparément, le potassium comme élément solide par voie chimique (spectrométrie de flamme en mode émission ou d'absorption), et l'argon en tant que gaz par spectrométrie de masse en phase gazeuse. Dans cette étude, le potassium et l'argon ont été mesurés au moins deux fois sur des aliquotes différents afin de valider un âge moyen reproductible. De plus, des

standards d'âge connus sont régulièrement mesurés afin de valider la chaine analytique : HDB-1 (K=7.995% ; Schwarz and Trieloff, 2007) daté à 24.18 Ma comme standard de calibration ; ISH-G, trachyte historique d'Ischia (coulée de l'Arso, 1301-1302) daté à 1 ± 3 ka (Gillot et al., 1992), pour valider l'absence de fractionnement isotopique dans la chaîne de traitement des échantillons lors de leur passage au spectromètre de masse.

III. 1.2.2.1 Mesure du potassium

Le dosage du potassium dans la phase à dater permet de déduire sa teneur actuelle en potassium (K) par gramme d'échantillon. Elément alcalin facilement excitable, il est dosé par spectrométrie de flamme qui consiste à mesurer l'émission photonique caractéristique de l'élément. Pour effectuer cette mesure, l'échantillon subit tout d'abord une attaque acide afin de permettre la mise en solutions des cations de l'échantillon, dont le potassium. En pratique, on pèse une fraction d'un cinquième à un vingtième de gramme de la fraction préparée dans un creuset en Téflon. Cette masse à attaquer est déterminée en fonction de la teneur en potassium estimée de l'échantillon. L'utilisation combinée d'acides fluorhydrique (10 ml), nitrique (10 ml) et perchlorique (2 ml) durant au moins 12 heures à chaud permet de déstabiliser les liaisons du réseau cristallin silicaté. On dilue ensuite le résidu solide de l'attaque (le calcinât) dans un volume bien précis, déterminé aussi en fonction de la teneur de K estimée. Par exemple, pour un échantillon de 1% de K, nous attaquerons 150 mg, puis nous diluerons le résidu dans 1L d'eau distillée. Un échantillon 6 fois plus potassique (typiquement une biotite) aurait nécessité 6 fois moins de masse soit 25 mg. Cependant, en pareil cas, pour réduire l'incertitude induite par la pesée de la masse d'échantillon utilisé, nous avons recours à une masse seulement 3 fois moindre (50 mg) et un volume de dilution double (2L). Ceci conduit à obtenir des solutions contenant 1 à 2 ppm de K.

Les solutions obtenues sont ensuite injectées dans la flamme du spectromètre à absorption (Agilent Série 240 AA). L'excitation est suivie d'une émission photonique isolée par un monochromateur et amplifiée par un photomultiplicateur. L'intensité du signal mesurée est convertie en teneur en K à l'aide d'une courbe d'étalonnage obtenue à partir de solutions de concentrations en K de 1,0 ; 1,2 ; 1,4 ; 1,6 ; 1,8 et 2,0 ppm préparées à partir d'une solution standard de K commercialisée avec une concentration initiale de 1000 ppm (1 mg/ml Fig. III-5). Pour chaque série d'analyses, sont systématiquement mesurés dans les mêmes conditions et à deux reprises deux échantillons standards internationaux : MDO-G (K = 3,510% ; Gillot et al., 1992) et BCR-2 (K = 1,481% ; Downes et al., 1995) pour corriger l'étalonnage (Fig. III-5). Ainsi, en tenant compte de leur masse, des volumes de dilution et la correction de la dérive de l'ensemble de la série de mesure par le biais des mesures de standard, on calcule la teneur exacte

en potassium de nos échantillons. Pour chaque échantillon, les mesures de potassium sont dupliquées pour vérifier la reproductibilité des analyses. Lorsque l'écart-type relatif d'un échantillon est supérieur à 1%, une (voire plusieurs) mesure supplémentaire est effectuée pour réduire la dispersion des données.

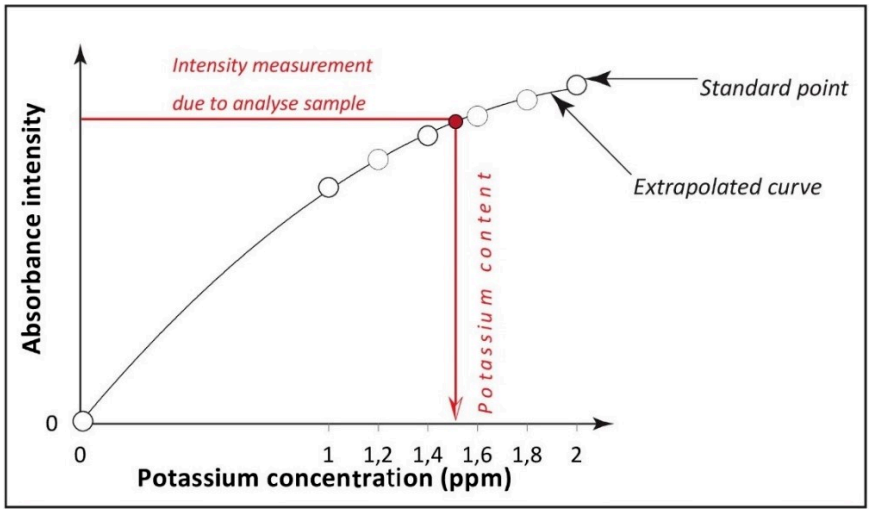


Fig. III-5: Courbe de calibration standard

III. 1.2.2.2 Mesure de l'argon

La mesure de l'argon occlus dans l'échantillon nécessite tout d'abord de libérer les gaz contenus dans celui-ci, puis d'isoler l'argon des autres gaz, et enfin d'en mesurer le contenu isotopique.

L'argon radiogénique ($^{40}Ar^*$) produit par désintégration du ^{40}K au sein des minéraux est extrait par fusion sous vide. La ligne de mesure d'Ar permet d'effectuer successivement (Fig. III-6) :

— 1) l'extraction des gaz (1)
— 2) leur purification (2)
— 3) La calibration (3)
— 4) la mesure isotopique de l'argon (4)

III. 1.2.2.2.1 Extraction (1) et Purification (2)

Avant toute extraction et purification de gaz de l'échantillon préparé, un pré dégazage et une mise sous vide sont indispensables. En effet, La ligne de mesure est mise sous vide secondaire au moyen d'une combinaison de pompage turbo-moléculaire et cryogénique. Elle est entretenue en permanence par des pompes getters qui piègent les gaz actifs résiduels. Une fois le vide dans la ligne ayant atteint des valeurs comprises entre 1,0. 10^{-7} et 5,0. 10^{-8} Torr après 3 jours en moyenne, l'argon est extrait du minéral par fusion sous vide à l'aide d'un four à induction haute fréquence. En pratique, une aliquote du minéral est placée dans un creuset en molybdène à l'intérieur d'une enceinte sous vide secondaire (< 2.10^{-7} torr) située au cœur d'un

solénoïde parcouru par un courant de haute fréquence. Celui-ci induit par conséquent un courant dans la structure métallique du creuset, la polarité du courant alternant à haute fréquence, elle crée de fait une agitation électronique et donc un échauffement de la masse métallique du creuset qui, par rayonnement, transmet sa chaleur à l'échantillon. On peut ainsi atteindre par ce procédé des températures de près de 2000° C. Notons toutefois que, la plupart des minéraux fondent entre 800 et 1200° C laissant ainsi échapper les gaz qu'ils contiennent tels que H_2O, O_2, N_2, hydrocarbures ou CO_2 pour l'essentiel, et les gaz rares dont l'argon qui nous intéresse largement dilué (Fig. III-6).

Il convient d'isoler l'argon, gaz rare, des autres gaz actifs en provoquant leur réaction chimique avec un métal chauffé au rouge. Pour cela, on utilise du titane chauffé à ~750 °C, très réactif et dont les composés sont stables en température. Au cours de la fusion, les gaz actifs libérés sont purifiés par réaction chimique sur cette mousse de titane, alors que les gaz rares, chimiquement inertes, restent libres. L'argon est par la suite concentré par condensation sur un charbon actif refroidi à la température de l'azote liquide (-195.79 °C). Après une purification à chaud d'une heure, les gaz résiduels de la première purification (essentiellement de l'argon) sont attirés sur deux autres doigts de charbon refroidis à l'azote liquide : ainsi l'argon et les autres gaz rares sont isolés. Le gaz rare le plus abondant après l'argon est l'hélium qui pourra être éliminé par pompage car sa température de condensation est très inférieure à celle de l'azote liquide. Les autres gaz rares (néon, krypton) sont en quantité si faible qu'ils n'ont aucune influence sur l'analyse, d'autant plus que leur inertie chimique n'affecte en rien les conditions de fonctionnement du spectromètre de masse.

III. 1.2.2.2.2 Analyse isotopique : spectrométrie de masse

Chaque secteur de la ligne de mesure possède ainsi que la cellule spectrométrique un getter permettant de purifier continuellement les gaz éventuellement désorbés des parois (Gillot and Cornette, 1986). La spectrométrie de masse (Fig. III-7) permet de détecter et d'identifier des éléments chimiques par mesure de leur masse. Son principe réside dans la séparation en phase gazeuse de molécules chargées en fonction de leur rapport masse/charge (m/z). Les spectromètres de masse comportent une source d'ionisation, d'un secteur magnétique qui sépare les ions produits selon leur rapport m/z, de détecteurs (coupelles de Faraday) qui mesurent l'intensité du faisceau d'ions pour chaque isobare (36 et 40) séparés (Fig. III-7). Le résultat obtenu est un spectre de masse représentant les rapports m/z des ions détectés selon l'axe des abscisses et l'abondance absolue de ces isobares selon l'axe des ordonnées.

Avec la technique Cassignol-Gillot, nous mesurons directement la hauteur maximale des pics des signaux d'argon 40 et 36 en faisant un réglage manuel de la tension d'accélération des ions.

Contrairement à la technique K-Ar conventionnelle, les isotopes de l'argon sont ici mesurés individuellement et non en rapports isotopiques, ce qui supprime le besoin du spike d'argon 38 de cette méthode (Gillot and Cornette, 1986).

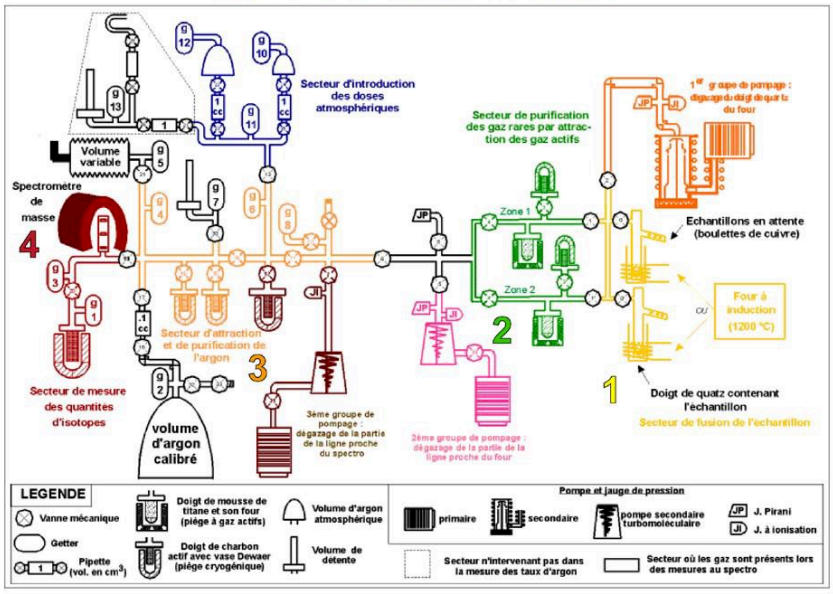


Fig. III-6: Shéma ligne de mesure (Lahitte P., 2000)

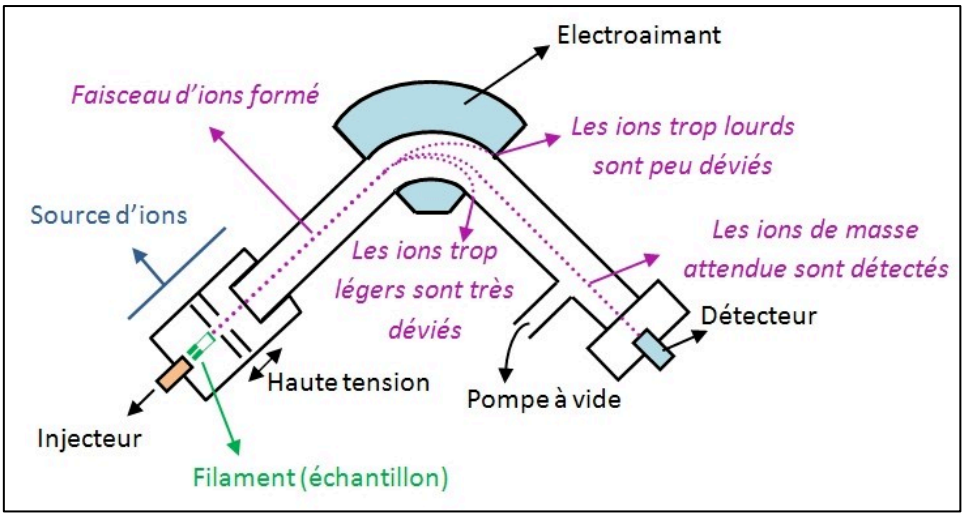


Fig. III-7 : Schéma d'un spectromètre de masse (http://acces.ens-lyon.fr/acces/thematiques/limites/Temps/datation-isotopique/comprendre/le-spectrometre-de-masse)

III. 1.2.2.2.3 Calibration et correction atmosphérique

Pour rappel, la quantité d'argon radiogénique augmente avec l'âge et la teneur en K des échantillons. On parle de chronomètre accumulatif pour qui plus l'échantillon est jeune plus la teneur en $^{40}Ar^{*}$ est faible et donc sa mesure est délicate. Pour les roches cénozoïques, la part de l'argon 40 provenant de la contamination atmosphérique est conséquente et doit être évaluée avec précision afin de déterminer précisément la fraction $^{40}Ar^{*}$. Cette contamination correspond

à l'argon atmosphérique piégé dans le minéral lors de sa formation, adsorbé à sa surface ou même intégré dans les zones d'altération, ajouté lors de sa préparation (manipulation, broyage, lavage, etc.) ou par les différents matériaux chauffés au cours de la procédure expérimentale d'analyse. L'incertitude sur l'âge étant corrélé à la teneur en $^{40}Ar^{*}$, Il est important d'utiliser des minéraux/phases frais et sains minimisant au maximum la part d'argon atmosphérique.

Transmuté depuis que la Terre s'est formée à partir du ^{40}K, le ^{40}Ar libéré s'accumule dans l'atmosphère depuis 4.5 Ga. C'est pour cette raison que cet isotope de l'argon est aujourd'hui le plus abondant (et qu'à l'inverse le ^{40}K est relativement si rare). La correction atmosphérique, et donc le dosage de l'argon radiogénique, se fait grâce à l'isotope 36 (5 fois plus abondant que le 38) et dont la mesure est plus précise. Le rapport $^{40}Ar/^{36}Ar$ dans l'atmosphère étant déterminé à 296, il est possible de corriger de la contamination atmosphérique (Gillot and Cornette, 1986). En multipliant la valeur du 36 mesuré par le rapport de cet isotope à l'argon 40 dans l'air ($^{40}Ar/^{36}Ar = 296$) on pourrait donc déduire la quantité de ^{40}Ar issu de la contamination atmosphérique dans l'échantillon (Fig. III-8), et par déduction la quantité d'argon 40 radiogénique par :

$$^{40}Ar_{\ total} = {}^{40}Ar^{*} + {}^{40}Ar_{atm}$$

Cependant, étant donné que l'on mesure simultanément les isotopes 36 et 40 de l'échantillon d'une part, et les isotopes 36 et 40 d'une dose atmosphérique d'autre part dans les mêmes conditions de pression, on s'affranchit du même coup de l'utilisation du rapport de Nier (Nier, 1950), en comparant les rapports isotopiques de ces deux gaz. Une phase de calibration est réalisée afin de convertir tout signal électrique mesuré en nombre d'atomes. Lors de la mesure de chaque échantillon (chaque fusion donc), on calibre les teneurs en argon de l'échantillon (Ar_{Ech}) avec une dose de ^{40}Ar de référence (Cassignol et al., 1978; Gillot and Cornette, 1986). On prélève, par pipetage, une aliquote de 0.1 cm^3 depuis une bonbonne de 33L. Cette dose calibrée (DC) est détendue dans le même volume que le gaz issu de l'échantillon afin que les pressions de mesure soient identiques. Le nombre d'atomes d'argon 40 d'une DC est lui-même calibrée (mensuellement) par mesures répétées du standard international BCR-2 (Schwarz and Trieloff, 2007) à $1{,}533.10^{13}$. Ceci permet de connaître le nombre d'atomes d'argon 40 équivalents à une certaine valeur de signal électrique, et d'en déduire ensuite la teneur en Ar total par gramme d'échantillon.

On effectue une deuxième troisième mesure (après la calibration et l'échantillon) pour déterminer la correction atmosphérique avec une dose d'argon atmosphérique (Atm) stockée dans des bonbonnes différentes de celles de la DC. On détend une ou plusieurs aliquotes de

dose Atm dans un volume adéquat (en utilisant les différents secteurs de la ligne) afin d'introduire dans le spectromètre de masse un signal d'Atm d'intensité équivalente à celle du signal mesuré pour l'échantillon (Fig. III-8). Ainsi les rapports $^{40}Ar/^{36}Ar$ de l'échantillon et de la correction atmosphérique seront mesurés dans les mêmes conditions ce qui permet une évaluation optimale de la teneur relative en Ar radiogénique (Gillot and Cornette, 1986). On peut noter que cette comparaison directe des rapports d'argon $^{40}Ar/^{36}Ar_{Ech}$ et $^{40}Ar/^{36}Ar_{Atm}$ nous permet de nous affranchir de l'utilisation de la valeur de référence du rapport isotopique de l'atmosphère.

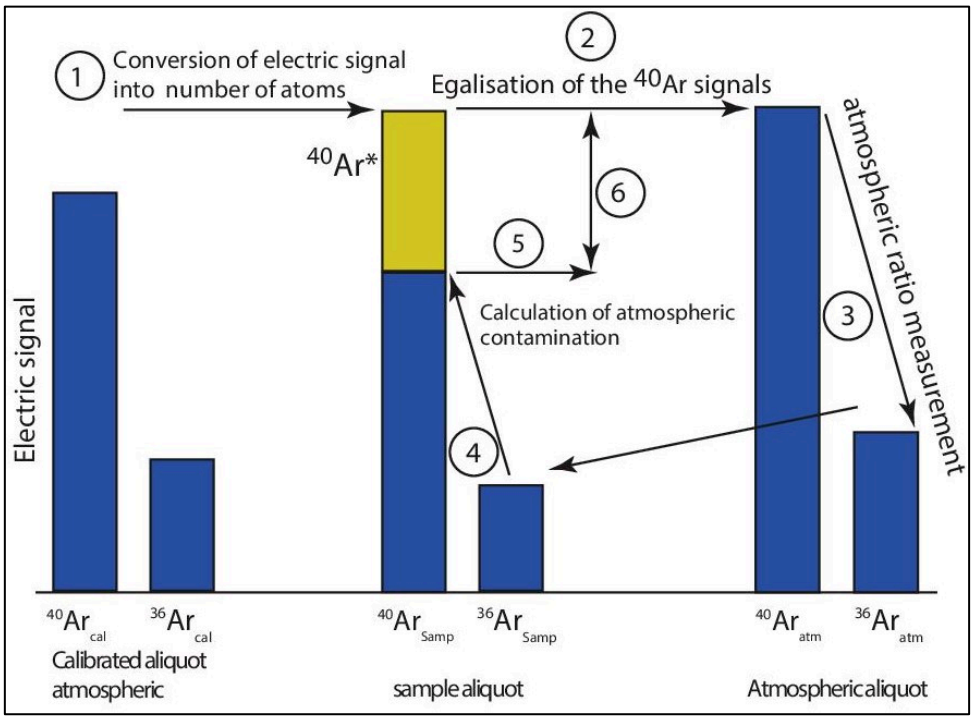


Fig. III-8 : Principle of the K-Ar dating

III. 1.2.2.3 Calcul de l'âge et de l'incertitude

Connaissant la teneur en K mesurée par spectrométrie de flamme, et les constantes de désintégration du ^{40}K en ^{40}Ar (λ_ε) par capture électronique et du ^{40}K en ^{40}Ca (λ_β) par désintégration β-, on introduit le résultat dans la formule de l'âge :

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln\left[1 + \frac{\lambda}{\lambda_\epsilon}\left(\frac{^{40}Ar^*}{^{40}K}\right)\right] \quad \text{avec } \lambda = \lambda_\varepsilon + \lambda_\beta$$

On déduit la teneur d'Ar* en nombre d'atomes par gramme d'échantillon en multipliant simplement les deux valeurs T (pourcentage d'argon radiogénique) et Q (quantité d'argon par gramme d'échantillon) obtenues précédemment :

$$T = \%^{40}Ar^{*} = \left(\frac{R_{40/36Ech} - R_{40/36Atm}}{R_{40/36Ech}}\right) X\ 100$$

$$Q = {}^{40}Ar_{total/gramme} = \frac{Ar_{Ech} \times 1.606E{+}13}{Ar_{Cal} \times masse_{Ech}}$$

$$Ar^{*}\ (at/g) = Q \times T = \%Ar^{*} \times Ar_{total/gramme}$$

En ce qui concerne l'incertitude, elle dépend de l'erreur sur la mesure du potassium (estimée à 1% eu égard à la dispersion de la mesure des standards, σ_K = 1%), de l'erreur sur la valeur de la DC (estimée à 1% eu égard à la dispersion de la mesure des standards, $\sigma^{40}Ar_{cal}$ = 1%), et de la teneur en argon radiogénique ($\sigma^{40}Ar^*$). Cette dernière ($\sigma^{40}Ar^*$) est fonction de la teneur en argon radiogénique de l'échantillon (% Ar*). L'incertitude relative de chaque âge est calculée selon (Quidelleur et al., 2001) comme :

$$\sigma_t = \sqrt{\sigma_K^2 + \sigma_{^{40}Ar_{cal}}^2 + \sigma_{^{40}Ar^*}^2}$$

$$\sigma_{^{40}Ar^*} = \frac{0.15}{\%^{40}Ar^*}$$

Ainsi, la teneur en $^{40}Ar^*$ augmentant avec l'âge, l'incertitude liée à cette correction de la contamination atmosphérique tend à devenir négligeable vers 3 Ma.

III. 1.3 Limites de la méthode

Il existe néanmoins des limites dues à la relative instabilité du couple potassium-argon dans le temps, lié à une modification quantité d'argon radiogénique et/ou au lessivage du potassium. Ainsi, si les roches ont subi des transformations ultérieures à leur mise en place, la fiabilité de la datation peut être remise en cause (Gillot *et al.*, 2006).

III. 1.3.1 Perte d'argon

Les pertes d'argon ont pour conséquence principale de donner des âges apparents plus jeunes que l'âge de fermeture isotopique initiale du minéral ou de la phase affecté(e). Cette perte peut être soit totale, soit partielle et s'effectue le plus souvent sous l'effet de différents évènements perturbateurs d'origine thermique (réchauffement, métamorphisme) ou tectonique (déformation et/ou recristallisation) et par l'altération (Montigny, 1985). Les perturbations dues à la déformation, la recristallisation ou l'altération des échantillons sont beaucoup plus efficaces que les perturbations essentiellement thermiques (i.e., réchauffement, perte d'argon par diffusion) qui produisent très rarement la remise à zéro totale du système isotopique du cristal (Hames and Cheney, 1997). Si l'événement perturbateur est important en durée ou intensité, il peut provoquer une perte totale de l'argon radiogénique initial et ainsi, produire une remise à

zéro du système isotopique (McDougall and Harrison, 1999). Dans le cas de perte totale, l'âge isotopique mesuré correspond à l'instant où le minéral après avoir été chauffé une dernière fois et/ou avoir recristallisé à haute température, repasse le seuil en dessous duquel l'accumulation est complète. Cet âge représente donc celui du dernier refroidissement. Dans le cas d'une perte partielle, la température atteinte, et/ou la recristallisation qui peuvent survenir, sont insuffisantes pour que les isotopes radiogéniques soient entièrement évacués. Dans ce cas, l'âge mesuré, est tout simplement corrélé à l'intensité du (des) phénomène(s) mis en jeux ; i.e., l'âge mesuré sera d'autant plus proche de l'âge « réel » du dernier événement thermique, et par ricochet plus éloigné de l'âge de la première cristallisation, que l'intensité du phénomène mise en cause sera élevée. Le lecteur pourra lire ces articles qui abordent la notion de perte dans un cadre plus spécifique (Gaber et al., 1988; Lee, 1993; Wartho, 1995; Hames and Cheney, 1997; McDougall and Harrison, 1999; Kramar et al., 2001; Reddy et al., 2001).

III. 1.3.2 Lessivage du potassium

En surface et à température ambiante, il peut y avoir une perte de potassium par lessivage lié à l'altération, alors que l'argon déjà accumulé restera dans le minéral : l'âge potassium-argon apparaîtra alors trop vieux. Pour s'affranchir de ces deux problèmes on a recours à une étude pétrographique attentive de l'échantillon en question, aux analyses chimiques si possible et une étude minutieuse du contexte géologique dans lequel il se trouve pour avoir des idées solides sur l'état d'altération ou non de la roche.

III. 1.3.3 Excès d'argon

L'excès d'argon se définit comme de ^{40}Ar non atmosphérique incorporé dans les phases minérales ou roches par un processus autre que la désintégration radioactive in situ du ^{40}K et produit des rapports isotopiques donnant des âges apparents plus vieux (Harrison and McDougall, 1980; McDougall et Harrison, 1988). Il est donc possible d'avoir un âge trop vieux s'il y a un excès d'argon lié à l'intégration de phases minérales cristallisées précocement ou arrachées à la roche encaissante lors de la remontée du magma.

Cet excès d'argon vue comme de l'argon étranger selon la nomenclature de (Lippolt et al., 1990), est subdivisé selon son origine en argon « hérité », c'est à dire stocké à l'intérieur du minéral avant toute désintégration, ou en « excès » sensu stricto, i.e. de source extérieure au minéral analysé, transporté par des fluides ou provenant de minéraux voisins et intégré lors ou après la désintégration in situ normale. L'argon étranger se loge le plus souvent dans des sites peu rétentifs (i.e., partie superficielle, déformée ou altérée). La présence d'excès d'argon est fréquente dans les feldspaths et biotites, mais se retrouve aussi parfois dans d'autres phases comme les muscovites et amphiboles (Montigny, 1985 ; McDougall et Harrison, 1988). Avec

le chronomètre K-Ar, seul un échantillonnage rigoureux couplée à une séparation minéralogique et l'analyse de plusieurs phases minérales d'un même échantillon permet de s'affranchir au maximum de ce problème.

La remise à zéro imparfaite du chronomètre, c'est-à- dire lorsque les phases minérales n'ont pas complètement dégazé l'argon qu'elles contenaient lors de leur séjour dans la chambre magmatique peut contribuer aussi à l'obtention des âges trop vieux.

Dans tous ces différents cas, la technique K-Ar ne permettra d'avoir que des âges apparents intermédiaires entre l'âge de formation de la phase minérale et l'âge réel de sa cristallisation. D'ailleurs, ce problème s'est posé avec acuité dans le cas du volcanisme récent (Plio-Quaternaire) du complexe volcanique de Ciomadul dans la partie terminale du segment CGH à Harghita du Sud (voir chapitre IV). Dans cette étude nous avons pu démontrer à partir de telles observations que les âges obtenus sur le secteur volcanique de Ciomadul par le chronomètre K-Ar sur roches totales étaient significativement impactés par ce type de problème d'excès d'argon ; résultant principalement de l'incorporation des minéraux formés précocement et de la présence des amas de minéraux (glomérocristaux ; textures glomérоporphyrique) pluri-centimétriques incorporés au magma juvénile lors de son ascension.

Pour mettre en exergue ce problème, la démarche a été multiple : analyser la composition minéralogique des roches du secteur, établir une étude comparative avec les études précédentes, procéder à une analyse de la distribution de la taille des cristaux pour mettre en évidence la dualité de la population de grains présents dans la roche. Par la suite, nous avons utilisé un échantillon proxy sur lequel nous avons daté toutes les phases en présence (mésostase, amphibole, biotite, plagioclase (Fig. III-9) pour montrer le contraste d'âge qui pouvait exister entre ces phases au sein d'une même roche et l'âge obtenue sur la mésostase. Ainsi sur la base de la moyenne pondérée, nous avons été capable de déduire de façon sommaire un âge roche totale par cette démarche (voir chapitre IV).

Nous avons pu montrer que l'âge obtenu sur roche totale n'était donc qu'une moyenne pondérée de tous ces minéraux en fonction (
Fig. III-9) et que par conséquent, les âges obtenus précédemment par le chronomètre K-Ar sur roche totale ne représentaient pas l'âge de l'éruption mais un âge biaisé. Cette démarche démontre, s'il était encore besoin de le faire, en quoi la datation sur roche totale n'est pas indiquée et a fortiori pour un volcanisme récent où la moindre fraction héritée biaiserait significativement le résultat.

La mise en cause de ce problème d'excès d'argon a été aussi indirectement validé dans sa démarche par l'échantillon 16CIO08 (Puturusu ; voir chapitre IV). En effet, pour cet échantillon (16CIO08) ne présentant ni phénocristaux ni glomérocristaux exprimés responsables d'argon hérité, les ages K-Ar obtenus sur roches totales et sur mésostase ont donnés systématiquement le même résultat (voir chapitre IV) ; montrant aisément le rôle significatif que jouent ces minéraux tôt formés en apport d'excès d'argon (Fig. III-9).

Cette problématique des excès d'argon est largement développée dans le chapitre IV où tous les détails et principes d'analyses seront donnés. Les lecteurs peuvent aussi se reporter aux articles traitant de cette thématique (Burgess et al., 1992; Cumbest et al., 1994; Harrison et al., 1994; Kelley, 2002).

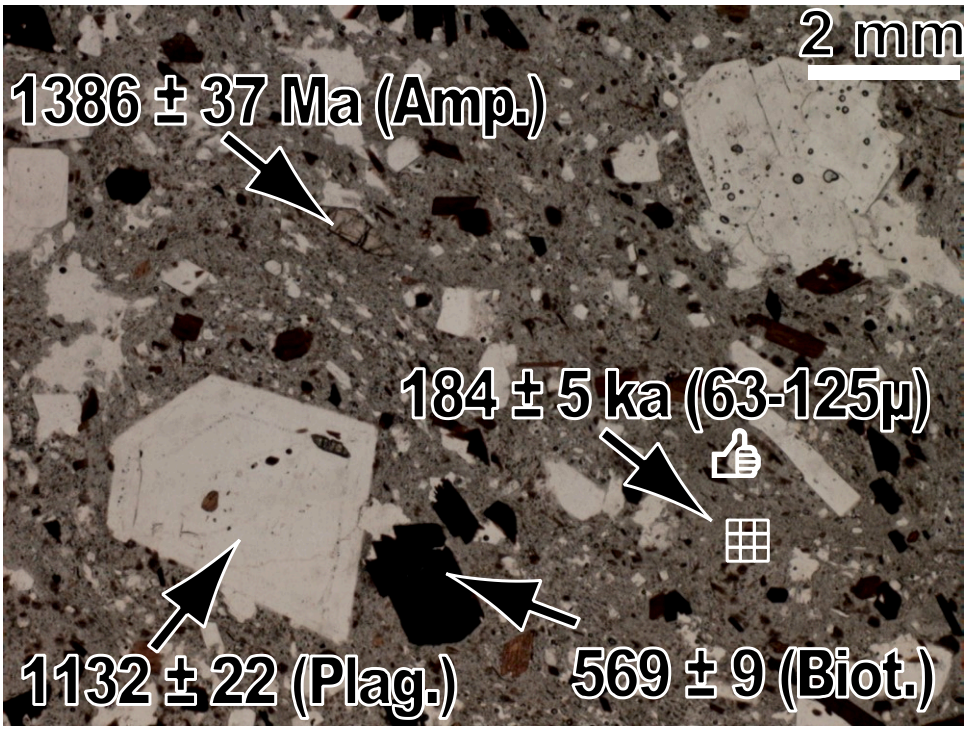


Fig. III-9 : Analyse of the origin of the biasing of whole-rock age by presence of phenocrysts. Amp=amphibole; Plag. = plagioclase; Biot. = Biotite and the small white grids represent age of groundmass. (Sample 15CIO01; Dealul Cetăţii).

III. 1.3.4 Problème de la Contamination atmosphérique

Le problème de contamination atmosphérique se pose de façon accentuée dans le cas de volcanisme récent où, toute légère variation à une incidence visible sur l'âge calculé. Elle se manifeste le plus souvent pas des âges anormalement bas et dans le cas du volcanisme récent, si le rapport atmosphérique de l'échantillon est inférieur à celui de la correction atmosphérique, conduire à des âges aberrants (valeur négative). Ce problème s'explique le plus souvent de différentes façons ; soit qu'il y a un excès de ^{36}Ar par rapport à ^{40}Ar, ou alors une perte de ^{40}Ar par rapport à ^{36}Ar. De plus, comme mentionné plus haut, le signal Ar des jeunes âges est fortement influencé par la contamination atmosphérique (Ar_{atm}), avec une quantité de 40Ar*

assez faible. Par conséquent, toute légère déviation de cette contamination par rapport au rapport atmosphérique $^{40}Ar/^{36}Ar$ conduira à des âges anormaux. Une légère altération de l'échantillon peut induire un fractionnement qui par répercussion affectera le rapport $^{40}Ar/^{36}Ar$ de l'échantillon donc l'âge. Il peut aussi résulter d'une contamination fournissant un isobare du ^{36}Ar, telle que sous forme de chlorure d'hydrogène (HCl) ou même de sulfure d'hydrogène (H_2S), des gaz volcaniques assez communs.

Au cours de cette étude, deux échantillons parmi la quinzaine d'échantillon de la partie méridionale de la chaîne volcanique CGH au niveau du complexe volcanique de Ciomadul (voir Chapitre IV), ont présenté des mésostases de moindre qualité et, nous avons opté de ne pas travailler sur la mésostase car les âges obtenus dans ces conditions auraient pu souffrir du problème de contamination atmosphérique (sous-estimation de l'âge) et par conséquent n'auraient eu aucune signification géologique. Pour pallier ce problème, les mésostases des 2 échantillons en question (16CIO01 et 16CIO04 ; (Fig. III-10A et B) n'ont pas été retenues comme phase à séparer pour s'affranchir de tels problèmes. En contrepartie, nous avons privilégié dans ces deux cas de travailler sur les microlites de plagioclases, fraction dont la cristallisation est contemporaine de l'éruption. Isoler ces microlites est bien plus laborieux et exigent ce que nous appelons une double séparation, dont le protocole analytique est présenté en détail dans le chapitre IV.

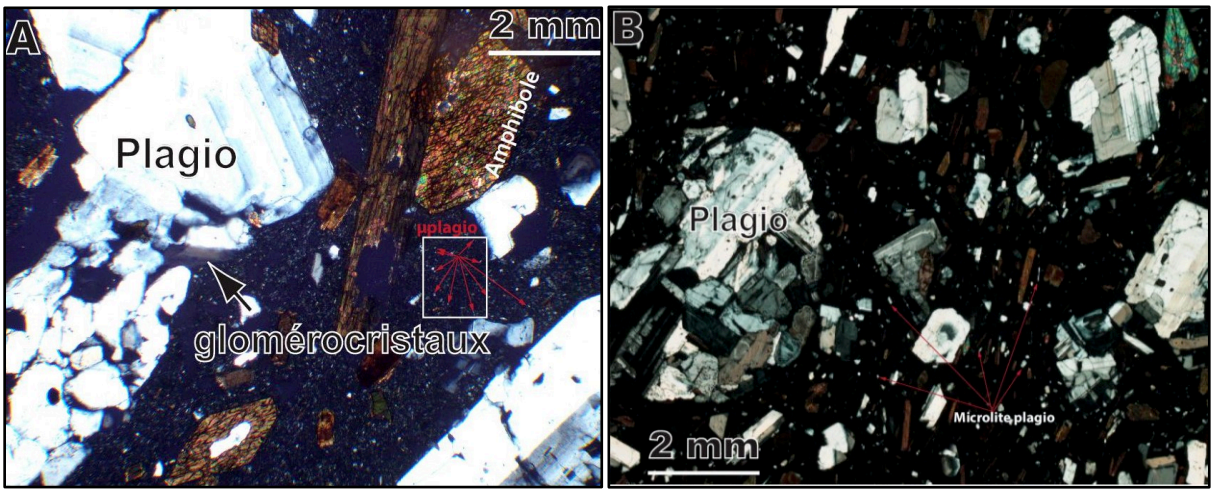


Fig. III-10: Lame mince ; A) Haramul Mic (16CIO01) et B) Ciomadul Mare (16CIO04) ; voir détail dans chapitre IV

III. 2 Géomorphologie

III. 2.1 Définition et concepts

La géomorphologie (du grec, "gé", la Terre, "morphé", la forme et, "logos", l'étude) est donc étymologiquement l'étude des reliefs au niveau du système terrestre en particulier, et au niveau des planètes telluriques en général y compris l'ensemble des processus ayant permis de les façonner. L'approche géomorphologique en domaine volcanique consiste donc principalement à corréler l'évolution des formes passées et actuelles de reliefs avec les processus géologiques impliqués au cours de leur évolution et, si possible, de quantifier ces processus. Elle est une discipline qui trouve des domaines d'application dans tous les environnements géologiques et pour ce qui concerne tout particulièrement ce chapitre, volcanique.

L'un des premiers sujets volcaniques de l'étude géomorphologique et géo-morphométrique a été l'étude des cônes pyroclastiques, certainement parce qu'il s'agit là des structures volcaniques aériennes les plus répandues sur notre planète. L'une des premières études (Porter, 1972) s'intéressait aux volcans Hawaïens et à la relation entre leur morphologie et leur formation (Self et al., 1974; Settle, 1979), ainsi qu'à la relation entre leur morphologie et leur dégradation (érosion) (Wood, 1980). Ce domaine de recherche a continué de croître grâce à l'amélioration de la collecte de données via l'utilisation des LiDAR (Light Detection and Ranging ; Favalli et al., 2009a; Favalli et al., 2009b) et également grâce à la combinaison de Modèles Numérique de Terrain (MNT) à haute résolution avec l'augmentation des capacités de calcul géospatial (Kervyn et al., 2012).

Avec l'émergence des satellites artificiels d'observation de la Terre, son étude a vu l'un de ses paradigmes passer de la simple collecte manuelle de données suffisantes dans une zone restreinte, au traitement efficace de mégadonnées à haute résolution couvrant de vastes zones (grand ensemble de données nécessitant une informatique spécialisée pour découvrir des éléments ou paramètres parfois cachés). Ce changement a positivement incité les scientifiques à repenser leur approche dans le traitement des données topographiques. Ainsi donc, comme le traitement manuel peut prendre trop de temps sachant que ce que nous faisons intuitivement visuellement en observant un MNT (sur la base de notre système sensoriel visuel) n'est rien d'autre que trivial pour un algorithme spécialisé (systèmes d'informations géographiques ; SIG), des descripteurs topographiques ont été largement développés permettant d'analyser différents processus qui génèrent des formes de relief à différentes échelles. Le MNT est donc un outil essentiel en géosciences et en géomorphologie en particulier pour l'étude des formes

de relief (Melelli et al., 2017), et s'appuie fortement sur les possibilités qu'offrent la télédétection du paysage depuis l'espace et applique des calculs mathématiques, le plus souvent via l'utilisation de plateformes SIG.

L'analyse à plusieurs échelles des MNT peut fournir des informations sur les processus géomorphologiques (Doglioni and Simeone, 2013). Il est utilisé pour définir des irrégularités topographiques qui sont la signature de processus tectoniques combinés à des processus de surface (Doglioni and Simeone, 2014). Pour le cas des stratovolcans, il peut aider à identifier les processus qui ont généré ces reliefs en fonction de l'échelle à laquelle le premier opère.
L'utilisation des MNT permet de calculer de bon nombre de paramètres, comme l'analyse morphométrique, utilisée pour étudier les événements et leurs dépôts résultants sur les volcans, tels que les dépôts de coulée de lave en utilisant des LiDAR (Tarquini et al., 2012), et plus récemment, même le mécanisme de mise en place pour les coulées de lave à évolution lente par Photogrammétrie (James and Robson, 2014).

La morphologie des édifices volcaniques est donc caractérisée par de nombreux paramètres tels que l'altitude, la largeur de l'édifice, le diamètre, la circularité du cratère et de l'édifice, les pentes moyennes (Pike, 1978 ; Davidson and De Silva, 2000 ; (Grosse et al., 2009, 2014; Karátson et al., 2010, 2016b) ou encore le contexte géologique, la nature du substratum sur lequel ils se développent et bien évidemment des conditions climatiques régnantes. Etudier par conséquent la morphologie ainsi que la morphométrie (c'est-à-dire la géomorphologie quantitative) d'un volcan permet d'apporter de nombreuses informations sur sa genèse, son évolution, son âge, sa lithologie, son dynamisme éruptif ou encore sur les différentes phases de construction et de destruction ayant marquées son histoire (Thouret, 1999; Grosse et al., 2009; Karátson et al., 2010).
De plus, dans des domaines volcaniques présentant des surfaces facilement datables (géochronologie), on peut contraindre avec une grande précision leur dynamisme de construction et de destruction. Certes, contraindre à la fois le dynamisme de construction volcanique et les degrés de démantèlement dépendra de la période d'observation dans le temps. De toute évidence, les volcans récents (de courte durée de vie), et bien datables (c'est-à-dire du Quaternaire supérieur) peuvent être étudiés avec un haut niveau de précision, tandis que pour les systèmes plus anciens (Miocène par exemple), la précision diminuera.

La construction et la destruction des volcans sont contrôlées, par des processus endogènes (c'est-à-dire, forces tectoniques, éruptions volcaniques) ou exogènes (érosion contrôlée par des facteurs climatiques) (Thouret, 1999). Des études géomorphologiques réalisées sur les volcans situés en contexte de subduction (Van Wyk de Vries et al., 2007;

Grosse et al., 2009; Hildenbrand et al., 2008; Germa et al., 2011, 2015; Lahitte et al., 2012; Karátson et al., 2012; Salvany et al., 2012; Ricci et al., 2015) sont le plus souvent caractérisés par une morphologie complexe modélisée par des phases de construction (éruption et/ou intrusion), mais surtout par des évènements destructifs, soit catastrophiques et d'une durée quasi instantanée (effondrement de flanc), soit de plus long terme (érosion fluviatile). Ils sont généralement caractérisés par une forme plus ou moins conique ayant des pentes raides dans la partie supérieure, et une rupture de pente près de la base (Davidson et De Silva, 2000 ; Karátson et al., 2016).

En domaine volcanique tout particulièrement, l'utilisation des Modèles Numériques de Terrain (MNT) depuis ces deux dernières décennies, a largement contribué à une approche plus systématique de l'étude de la morphologie des massifs volcaniques dans la mesure où, le traitement des MNT permet de caractériser les modifications du relief au cours du temps, de caractériser les variations et taux d'érosion et surtout permettent d'extraire des informations géomorphologiques et structurelles à grande échelle difficilement accessibles ou identifiables parfois sur le terrain (Favalli et al., 1999, 2009a, 2009b; Székely and Karátson, 2004; Hjort and Luoto, 2012; Kervyn et al., 2012; Melelli et al., 2017). Ainsi, de nombreuses études ont utilisé l'analyse des MNT pour des études quantitatives en géomorphologie, telles que le calcul des volumes construits et érodés pour estimer la production de magma, les taux de construction ainsi que les taux d'érosion dans les environnements volcaniques divers : dans les Carpates avec un climat actuel continental humide: (Karátson and Timár, 2005; Karátson et al., 2019) ou ailleurs sous tout type de climat (Christian, 1989; SMITH, 1994; Aranda-Gómez et al., 2003; Le Friant et al., 2004; Fevre, 2005; Samper et al., 2007; Hildenbrand et al., 2008; Germa et al., 2010, 2015; Karátson et al., 2012a; Lahitte et al., 2012; Salvany et al., 2012; Kereszturi et al., 2013; Ricci et al., 2015b, 2015a; Ackerer, 2017; Grosse et al., 2018).

Toutefois, s'il est vrai qu'aujourd'hui le challenge vise à produire des MNT de plus en plus précis (c'est-à-dire avec des résolutions optimales pour les observations géomorphologiques fines (0.5 m, 1 m, 4 m, etc.), de nombreuses études telles que (Wright et al., 2006; Kervyn et al., 2008, 2012; Grosse et al., 2009; Karátson et al., 2010) ont montré à suffisance que les reconstructions numériques de volcans réalisées grâce aux MNT de 90 m voir 30 m de résolution, étaient suffisantes pour l'analyse géomorphologique des volcans composites. En effet, les volcans composites étant représentés par des volumes et structures relativement importants, les résolutions de 90 ou 30 m permettent d'identifier tous ces paramètres. Par contre, en fonction du détail d'information recherché (comme l'identification des ruptures de pentes par exemple), une résolution grossière (90 m et plus) ne permet pas

d'extraire ce type de paramètre. Le choix de la résolution d'un MNT dépendra donc largement du type d'analyse et d'étude que l'on souhaite effectuer dans un environnement volcanique.

Dans le but de contraindre les volumes post-éruptifs des édifices volcaniques, les taux de construction et d'en déduire les volumes démantelés et les taux d'érosion de la chaîne volcanique des Carpates Pannoniennes (CGH), nous avons analysé la topographie entière du segment volcanique. Cette analyse a été rendu possible via le MNT Shuttle Radar Topography Mission (SRTM) ayant une résolution de 30 m, et un système de projection « WGS 1984 35th North zone of Universal Transverse Mercator (UTM) » afin de réaliser des reconstructions numériques pour chaque édifice volcanique identifié le long de ce segment.

Pour cela, les secteurs (points) du MNT actuel considérés comme représentatifs de la surface initiale des édifices volcaniques ont été sélectionnés suivant un protocole rigoureux puis, interpolés tel que décrit ci-dessous. Les différentes investigations géomorphologiques ont été réalisées principalement sous le logiciel ArcGIS.

III. 2.2 Reconstructions numériques des volcans

III. 2.2.1 Définition et limites

Estimer le volume d'un volcan nécessite de calculer en chacun de ses points la différence d'altitude (Dz_i) entre la surface la plus haute de chaque volcan (modèle reconstruit) et la surface topographique telle qu'elle était avant le début de la construction volcanique. Cette surface est appelée surface de base anté ou pré-volcanique (SBPV). Ces différences élémentaires Dz_i sont ensuite intégrées sur toute la surface de l'édifice ce qui implique d'identifier et déterminer sa limite ou extension. Afin d'attribuer à chaque volcan son juste volume, il convient donc de les reconstruire dans l'ordre chronologique de leur édification (du plus ancien au plus récent). Ceci permet de prendre correctement en compte, le cas de figure où un volcan s'est construit sur les flancs d'un volcan voisin plus ancien.

L'estimation des volumes volcaniques construits et par ricochet des volumes érodés dépend donc du tracé de la limite de l'édifice. Il convient d'objectiver autant que possible sa délimitation afin qu'elle ne soit pas biaiser par un choix subjectif de l'analyste et de son interprétation de la morphologie actuelle (Davidson et De Silva, 2000; Grosse et al., 2012, 2014; Euillades et al., 2013).

Pour cela, plusieurs méthodes peuvent être utilisées, pour identifier des limites d'un volcan, comme la délimitation manuelle basée sur des observations de terrain (l'extension maximale des produits volcaniques), des cartes géologiques de hautes précisions ou encore l'utilisation des courbes de niveau (Pike, 1978; Grosse et al., 2009, 2012; Karátson et al., 2010, 2016).

Cependant, parmi toutes ces méthodes, l'une les plus utilisées consiste aussi à considérer la limite du volcan à sa rupture de pente (Smith and Clark, 2005; Favalli et al., 2009b; Grosse et al., 2009, 2012; Völker et al., 2011; Kervyn et al., 2012; Karátson et al., 2012, 2016).

Afin d'effectuer des calculs volumétriques de volcan, l'étendue spatiale (l'extension) de chaque volcan d'intérêt doit être définie. Ceci est donc une étape clef car il s'agit d'une source potentielle de variabilité qui affectera certains paramètres (aire, volume et tous les autres paramètres y relatifs). La notion de délimitation de l'étendue d'un volcan peut parfois paraître au premier ordre évident mais en pratique souvent difficile et subjective ; ce qui soulève d'ailleurs la cruciale question de savoir :

Où débute et où «se termine » un volcan ?

Pour tenter de répondre à cette question, Plusieurs méthodes peuvent être utilisées, pour identifier des limites d'un volcan, comme la délimitation manuelle basée sur des observations de terrain (l'extension maximale des produits volcaniques). Si le critère choisi pour délimiter un volcan est de considérer tous ses produits, les données topographiques ne sont pas suffisantes et, des données géologiques de terrain sont nécessaires. D'ailleurs, même avec ces connaissances, il serait presque impossible de rendre compte avec précision de la totalité des produits (par exemple, les produits volcaniques enfouis sous d'autres dépôts plus récents, des dépôts pyroclastiques de grande portée, les dépôts de débris d'avalanches, coulées de lave le long des vallées sont difficilement quantifiables dans toute leur totalité).

Pour essayer de parer à cette limite, une approche plus cohérente, largement utilisée dans le domaine, consiste à ne considérer que les édifices volcaniques comme des reliefs constructifs spécifiques qui sont délimités par des ruptures concaves de pente autour de leur base (Favalli et al., 2009b; Grosse et al., 2009, 2012; Kervyn et al., 2012; Karátson et al., 2012a). Avec une telle approche, les structures en tabliers qui bordent souvent les édifices volcaniques et autres produits de grande portée sont volontairement ignorés.

Ce critère (rupture de pente) a l'avantage de reposer uniquement sur la topographie, et donc de le rendre raisonnablement objectif favorisant des comparaisons sur une base uniforme.
En outre, une séparation de l'édifice central et des tabliers volcanoclastiques n'est pas géologiquement arbitraire et est judicieuse car, ces tabliers sont le plus souvent formés d'un mélange de produits provenant de différentes sources (sources éruptives par exemple). Ainsi, il paraît plus approprié de les mettre de côté afin de limiter l'incorporation de matériel ne reflétant par un volcan uniquement. Malheureusement, cette approche a comme inconvénient qu'elle ne considère que l'édifice central (la structure volcanique au sens strict du terme) et non tous les produits volcaniques. Ainsi, la quantification de matériel produit par un volcan conduira à une

sous-estimation de la production totale du volcan et ne reflétera que la taille de l'édifice. Néanmoins, cette approche reste celle largement utilisé notamment pour les volcans polygéniques avec de nombreuses études qui utilisent les ruptures de pente comme limites des édifices (Pike, 1978; Plescia, 2004; Smith and Clark, 2005; Favalli et al., 2009b; Grosse et al., 2009, 2012; Völker et al., 2011; Karátson et al., 2010, 2016b).

En pratique, les ruptures de pente basales de l'édifice sont parfois obstruées parce qu'elles se confondent avec les tabliers, les volcans voisins ou d'autres dépôts non volcaniques, et / ou en raison de leurs propres histoires complexes de migration des évents, de l'effondrement du secteur, de l'érosion et bien d'autres. Ils sont généralement facilement identifiables, au moins autour de la plupart de la base de l'édifice. Cette procédure est communément réalisée en considérant conjointement deux produits dérivés du MNT : la courbure du profil et la pente (Favalli and Fornaciai, 2017; Karátson et al., 2016b).

Hélas, cette méthode de rupture de pente ne prend néanmoins pas en compte les produits distaux, tels que les avalanches de débris, les cendres, les coulées pyroclastiques ou même parfois les coulées distales, et ne considère que l'édifice principale. Certes la non prise en compte du matériel totale du volcan contribue à réduire les volumes ainsi que les taux de production magmatique, mais, elle permet de proposer à défaut , des taux de constructions qui peuvent être considéré comme de bon proxy pour analyser les vitesses et mécanismes magmatique à l'échelle d'un volcan (Wadge, 1982, 1984; Grosse et al., 2018). Toutefois, si aucune activité secondaire n'est venue recouvrir l'édifice, la rupture de pente sur le flanc d'un volcan est facilement identifiable et constitue un très bon outil pour délimiter les limites des édifices volcaniques.

Afin de parer à la subjectivité de l'utilisateur, plusieurs algorithmes ont vu le jour comme MORVOLC (Grosse et al., 2009, 2012) et NETVOLC (Euillades et al., 2013; Grosse et al., 2014) *entre autres* dans le but de faciliter l'identification automatique cette fois-ci des morphologies et limites des volcans à partir d'un MNT.

Dans le cadre de cette étude, la délimitation des limites de volcans a été réalisée en tenant compte des activités volcaniques antérieures, de l'analyse approfondie du MNT, mais surtout de l'utilisation de la carte géologique la plus récente du secteur (Seghedi et al., 2019) permettant d'identifier du Nord au Sud de CGH une vingtaine d'édifice volcanique (Fig. III-11).

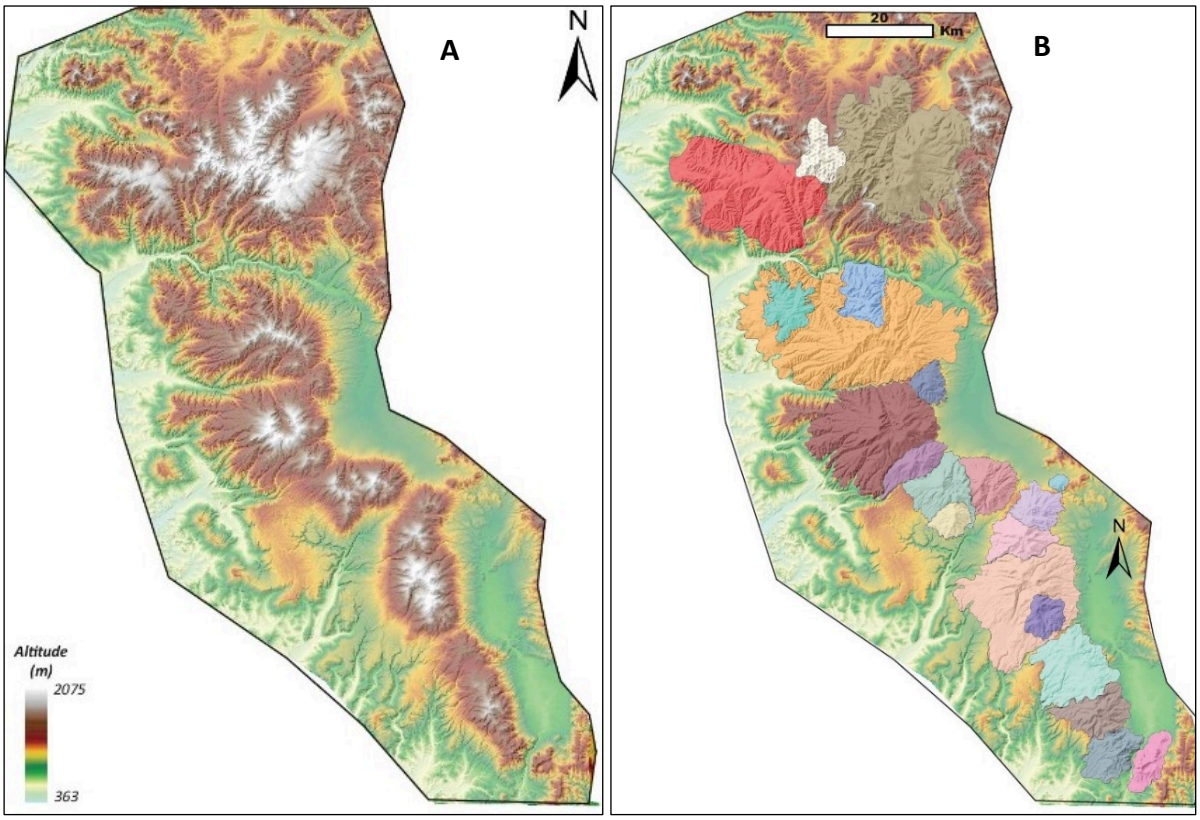


Fig. III-11: A) MNT du segment volcanique de CGH (30 m de résolution montrant les différents volcans). B) MNT avec l'identification des limites de chaque volcan du segment ; chaque couleur correspondant à l'extension d'un édifice volcanique identifié le long du segment.

Le but de cette étude étant de quantifier les volumes construits et perdus via des processus d'érosion de surface, il était nécessaire de définir par l'entremise des méthodes indirectes (connaissance géologique, interpolation) le niveau de base (SBPV) sur lequel s'est construit tous les volcans du segment volcanique CGH. La définition d'une telle surface requiert une bonne connaissance du secteur étudié et est principalement basée sur des méthodes d''interpolation (IDW [Inverse Distance Weighting], Krigeage, etc.) des différentes structures géologiques observées pouvant nous renseigner sur le paléoenvironnement.

Toutes ces notions nous montrent l'importance de mener un travail méticuleux en vue de produire des résultats en conformité non seulement avec les attentes mais aussi avec les données de terrains car, qu'elle soit infinitésimale, toute erreur au niveau de la définition de la surface de base du volcan (mauvaise identification de structures) ou d'altitude, modifierait significativement les volumes des édifices calculés pour la simple raison que le volume est intimement corrélé à sa surface et sa hauteur.

III. 2.2.2 Définition et sélection de la surface de base des volcans de CGH

III. 2.2.2.1 Principe

La surface de base anté-volcanique représente l'une des surfaces la plus significative et la plus importante dans la modélisation d'un volcan et pour les calculs de volumes des édifices.

Alors, cette surface parfois facilement identifiable dans le cas des volcans récents (Plio-Quaternaire par exemple) devient de plus en plus difficile à identifier voire définir pour les volcans Miocène (vieux) ceci à cause de l'effet marqué de l'érosion sur elle au fil du temps. Cette surface est la plus souvent représentée au niveau des arc insulaires par le niveau marin (le niveau zéro) simplifiant aisément sa définition. Par contre, dans le cas d'un volcanisme intracontinental la définition de cette surface pour une période de plus de 10 Ma n'est pas aisée et nécessite donc de faire appel aux connaissances géologiques du secteur étudié et des méthodes indirectes en vue d'en avoir accès.

Son identification passe par la reconnaissance préalable de l'édifice volcanique et par la suite la recherche des points de contraintes représentant de façon indirecte cette surface.
Sa démarche consiste le plus souvent de sélectionner des structures ou éléments géologiques représentant les vestiges de cette surface comme, les intersections des limites de volcans avec d'autres faciès géologiques (les points jaunes sur la Fig. III-12). Une fois l'identification de cette surface terminée, le défi majeur est de proposer une surface de base validée par une approche méthodique et établie. Pour le trait de coupe (AB) de la Fig. III-12 par exemple, nous utiliserons différents éléments pertinents pour proposer une surface de Base.

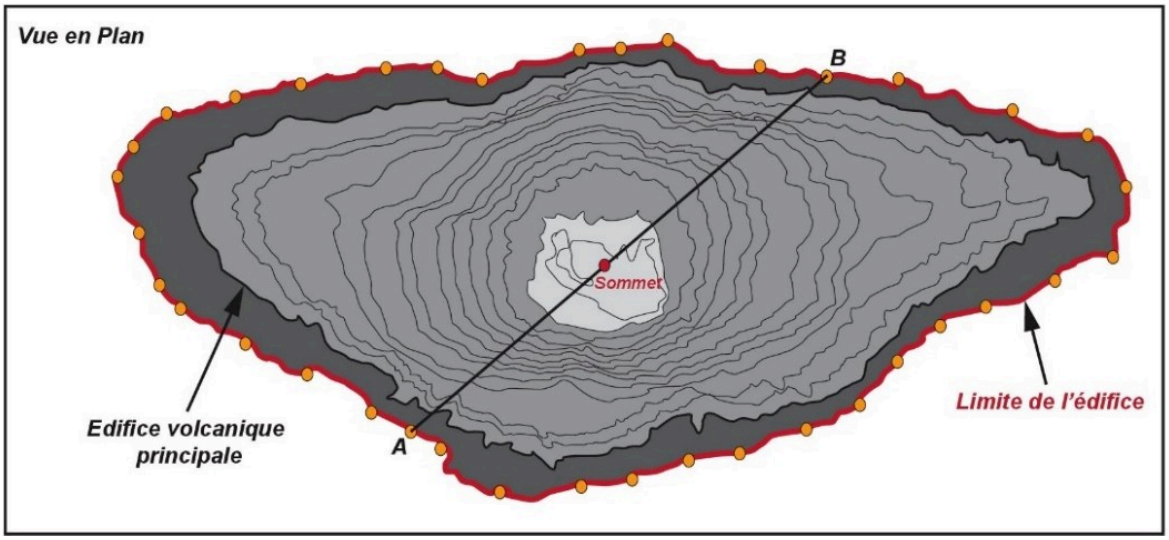


Fig. III-12 : Schéma illustrant une vue en plan d'un édifice volcanique representé par la structure volcanique principale (gris clair) et la limite du volcan (trait rouge) ; Les points jaunes représentent les éléments marqueurs de la surface de base du volcan (surface sur laquelle le volcan s'est construit)

1) Surface de base simple/ monoclinale (Fig. III-13)

Une telle surface propose tout simplement de relier les différents points de contraintes situées de part et d'autre du volcan par une droite. Bien que simpliste, une telle surface de base reflèterait difficilement une réalité géologique car une telle linéarité dans la nature serait quasi irréaliste.

2) Surface de base plus complexe (rugueuse) mais tout de même monoclinale (Fig. III-13)

Une telle surface contrairement à la première propose une surface de base plus complexe qui tient compte de considération secondaire et vise à proposer une surface beaucoup plus rugueuse ce qui a le mérite de refléter une réalité géologique. Bien que considérant la réalité topographique géologique, le volume calculé avec une telle surface ne serait pas drastiquement différent de la première (H1~H2 et VI ~V2).

3) Surface de base convexe

Ici, pour la même surface, l'analyste serait aussi légitime de proposer une surface de base convexe (Fig. III-13) avec en plus un rayon de courbure qui peut varier aussi selon l'analyste. La particularité d'une telle surface est qu'elle va contribuer à modifier drastiquement les volumes calculer avec elle.

4) Surface de base concave (Fig. III-13)

Par ces mêmes points de contraintes, on pourrait tout aussi bien proposer une surface concave avec en plus une courbure variable. Une telle surface de base aurait comme conséquence majeure la quantification des volumes plus importants.

Ainsi donc, définir la surface de base nécessite au minimum une bonne connaissance de la géologie, la tectonique du secteur étudié en vue de proposer un modèle de surface de base qui est en accord avec les données de terrain. Cette démarche rigoureuse a été suivie et appliqué tout au long de cette étude afin de proposer une surface de base à partir des éléments pertinents.

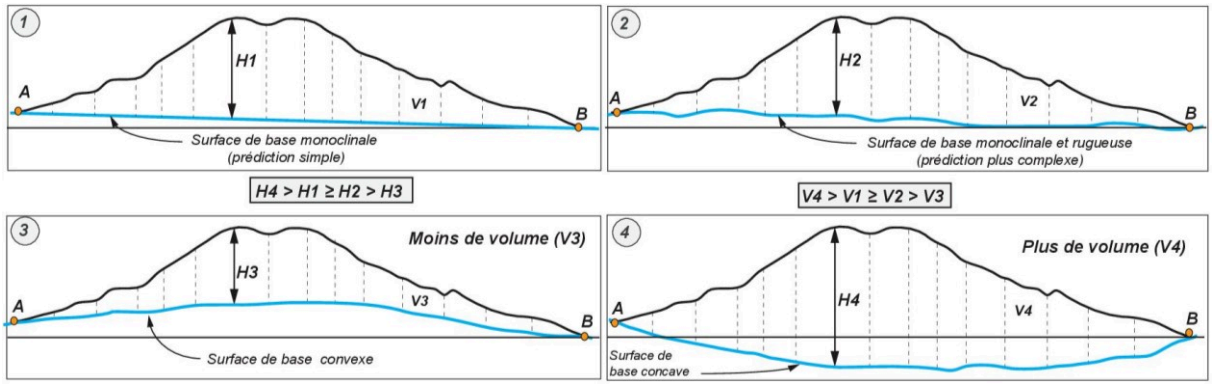


Fig. III-13 : Schéma illustrant les différentes possibilités de définition de surface de base pour un même volcan (Dibacto et al.,)

Notons aussi que, si le volcan est érodé avec des vallées qui pénètrent profondément dans la structure de l'édifice et, si on dispose une carte géologique, on aura une meilleure connaissance des altitudes internes de la surface de base donc parfois un meilleur contrôle de son volume que pour un volcan encore parfaitement préservé pour lequel on ne connait l'altitude de sa base qu'à la périphérie.

III. 2.2.2.2 Sélection des points

Dans le cadre de ce travail où le secteur étudié (CGH) montre une activité volcanique s'étendant sur près de 11 Ma, définir la surface de base anté volcanique n'a pas été simple. Cette définition a été rendu possible par des méthodes indirectes c'est-à-dire, l'identification et l'interpolation principalement des structures géomorphologiques et/ou géologiques représentant le substratum sur lequel s'est construit les différents volcans de la chaîne.

Dans cette étude, l'observation de la plupart des édifices volcaniques de la chaîne CGH, en particulier ceux situés dans les secteurs de Gurghiu et Harghita (Fig. III- 14A), sont le plus souvent entourés d'éléments étendus appelés volcanoclastiques (Szakács and Seghedi, 1990) caractérisés principalement par leur forme convexe (Fig. III- 14B). Cette forme convexe leurs confèrent d'ailleurs une aptitude importante à résister à l'érosion.

Une telle surface c'est bien mis en place avant le volcanisme Miocène de la chaîne de CGH et a été décrit comme la surface de base sur laquelle tous les volcans de CGH se sont construits ultérieurement. Cette surface aujourd'hui masquée au niveau de la chaîne par la construction des volcans n'est donc plus visible ce qui complique la tâche pour connaître sa paléo-altitude.

La partie visible de cette surface quant à elle affleure au niveau du bassin de Transylvanie et a aussi subi une érosion importante ce qui a contribué à leur effacement partiel. Mais, compte tenu de leurs structures convexes, il a été possible d'identifier les vestiges de cette surface de base ce qui fait une information cruciale pour avoir une idée sur leurs paléo-altitudes.

Être donc capable d'extrait de telles structures nous permettrait d'avoir une idée robuste de la paléo-altitude de la surface de base anté-volcanique car, elles sont les vestiges préservés de cette surface de base recherchée. Rappelons tout de même que malgré leur forme convexe qui leur confèrent une résistance à l'érosion, ils ont néanmoins au fil du temps dû subir une érosion bien qu'elle soit faible ; mais elle peut être considérée comme minime ici et est d'ailleurs prise en compte dans le calcul d'incertitude associé à son estimation.

La quasi-majorité de ces structures sont identifiables dans la partie axiale et occidentale de la chaîne (bassin de Transylvanie), et très peu dans la partie orientale (Fig. III- 14), où les édifices volcaniques sont bordés de bassins d'effondrement dans lesquels, la sédimentation a sans doute enterré la plupart de ces structures.

Dans le détail, au niveau de cette partie axiale de la chaîne, nous avons non seulement identifié et sélectionné ces structures convexes mais aussi sélectionné certains éléments représentant le contact entre l'extension latérale des structures volcaniques (contour des édifices) et le flysch Carpathique du crétacé du côté oriental (Fig. III- 14). En revanche, dans la région de Călimani, très peu de volcanoclastiques ont été identifiés et d'ailleurs ceux identifiés se localisant préférentiellement à l'Ouest de l'édifice volcanique de Moldovanul (Fig. III- 14). Du fait aussi

de l'absence de ces structures dans d'autres secteurs de Călimani, nous avons sélectionné en plus de ceux-ci, des zones de contact entre les limites de volcans (central Călimani) préalablement identifiés et la ceinture de roches métamorphiques cristallines du Mésozoïque des Carpates orientales (Fig. III- 14) décrites par (Seghedi and Szakács, 1990; Seghedi et al., 2019).

Une fois les secteurs des surfaces interprétés comme prolongement, en dehors des édifices, de la surface anté volcanique oblitérée par la construction de ces derniers sélectionnés, toutes les cellules du MNT appartenant à ces secteurs ont été isolés. Constitués soit de volcanoclastiques ou de la ceinture cristallo-métamorphique du mésozoïque (Călimani), soit étant au contact entre l'extension latérale des édifices volcaniques et le flysch Carpathique du crétacé, ils ont été considérés comme représentatifs de la paléo-altitude de la surface de base pré-volcanique. Convertis en un fichier de points XYZ (coordonnées géographiques X et Y, altitude Z, Fig. III- 14), où l'on s'efforce de sélectionner les points le plus souvent situé sur le toit de la convexité ; ils permettent d'interpoler par krigeage (Krige, 1951) l'altitude de la surface de base sur l'ensemble de la zone d'étude afin de générer le modèle de surface de base anté-volcanique. La carte d'incertitude associée à cette interpolation a également été modélisée ce qui constitue un atout majeur de l'interpolation par Krigeage (voir section chapitre V).

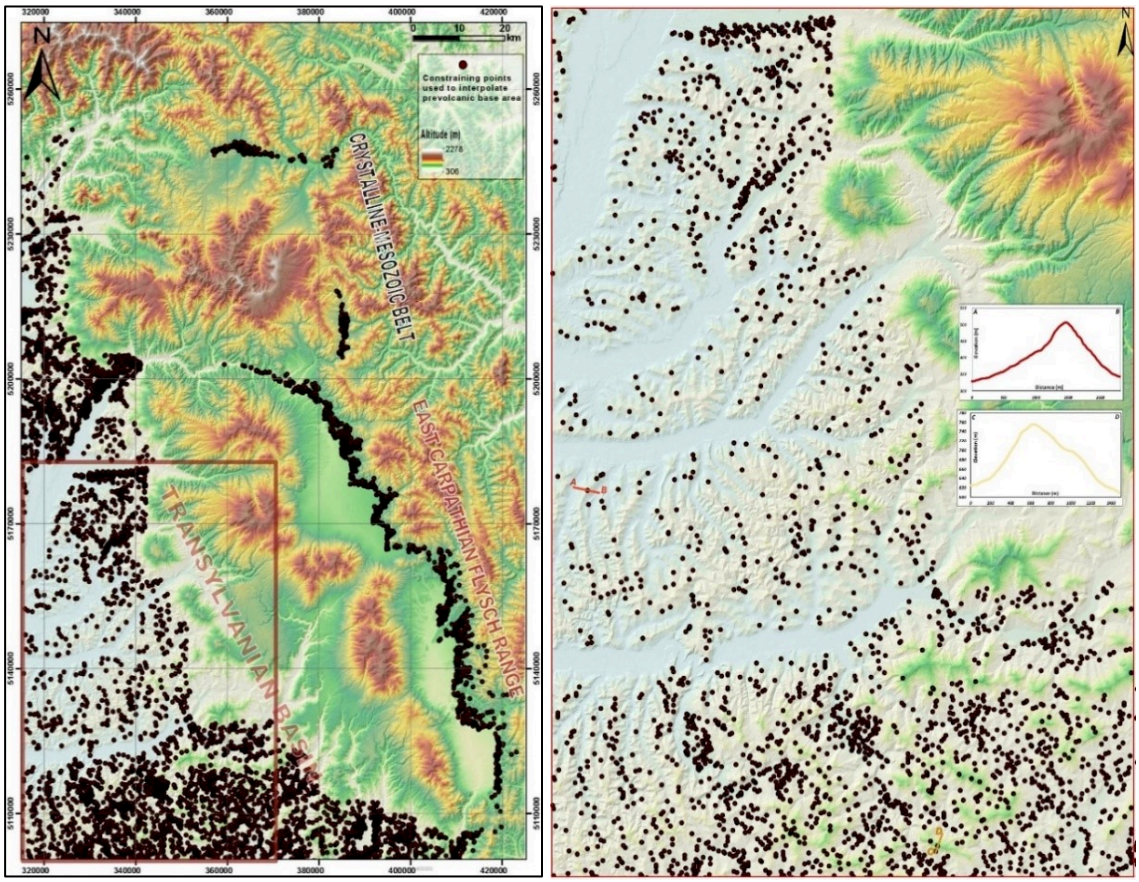


Fig. III- 14 : A) Illustration du protocole de sélection et de définition de l'extraction des éléments structuraux (volcanoclastiques) représentant les témons de la surface de base des volcans de CGH ; B) représente le zoom d'un des secteurs localisé au niveau du bassin de Transylvanie avec leur forme convexe caractéristique (AB et CD)

Une fois cette surface de référence définie, les reconstructions numériques de volcans ont pu être entamées.

III. 2.2.2.3 Sélection des points de contraintes : reconstructions numériques des édifices volcaniques

L'une des premières étapes vers la modélisation des surfaces volcaniques pré érosionnelle consiste à sélectionner les points du MNT actuel considérés comme représentatifs des paléo-surfaces de l'édifice et qui serviront ainsi à l'interpolation. Ces points correspondent aux éléments de surface actuelle non érodées ou du moins, les moins érodées. Le choix des points sélectionnés (appelés points de contraintes ou CP) influencera drastiquement sur l'ensemble des interpolations numériques effectuées, rendant cette étape cruciale. Ils se situent préférentiellement sur les secteurs de planèzes (secteur rose Fig. III- 15 par exemple) ou sinon le long des crêtes des massifs volcaniques autrement dit en limite des bassins-versants.

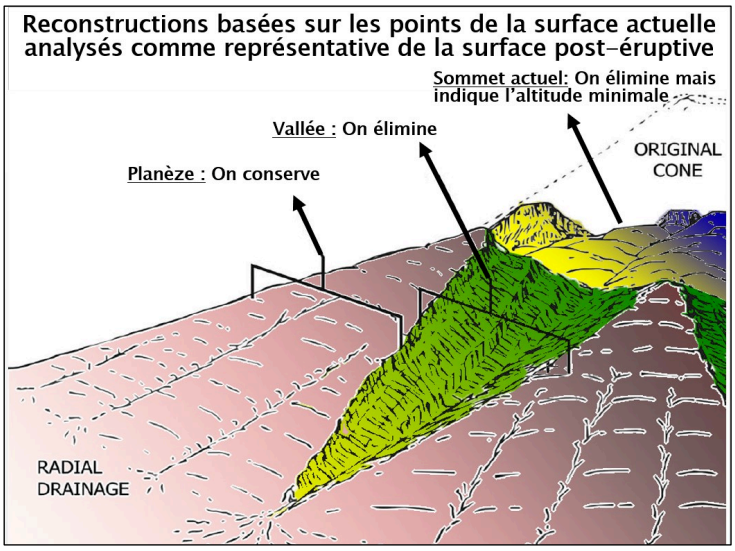


Fig. III- 15: Illustration d'un volcan avec des secteurs en roses représentatif de la surface post-éruptive (modifiée d'après Hampton and Cole, 2009)

Le principe général est que, chaque cellule du MNT considéré comme un CP sera convertie en un point auquel seront associés comme attributs ses trois informations X, Y, Z de position formant une énorme base de données d'entrée pour la reconstruction numérique de nos volcans.

Dans la pratique, c'est en couplant différents paramètres morphométriques (développés ci-dessous) tels que la pente topographique, l'indice de position topographique (TPI), l'angle d'ouverture (Op) que nous avons été capable de sélectionner uniquement des secteurs des volcans représentant les surfaces non-érodées. Chacun de ces paramètres est calculé pour chaque cellule du MNT et associée comme attribut à cette dernière. Ils permettent de définir autant de critère de sélection ou d'exclusion de cette cellule comme potentiel point de contrainte.

III. 2.2.2.3.1 La pente topographique

L'information de pente (dérivée première de l'altitude, Fig. III-16) permet de mettre en évidence les variations du relief. La courbure du profil est le taux de changement de pente mesuré dans un plan vertical orienté le long de la ligne de gradient (Wood, 1996; Olaya, 2009). Il cartographie ainsi directement les ruptures de pente, à la fois convexes et concaves. Nous considérons également les valeurs de pente réelles afin de favoriser les ruptures de pente dans les zones à faible gradient, généralement trouvées autour de la base de l'édifice. Par conséquent, les ruptures de pente dans les zones à gradient plus élevé, qui sont plus fréquentes dans les parties intérieures de l'édifice, sont pénalisées. Ainsi pour extraire les cellules appartenant à des secteurs représentant des planèzes, nous avons sélectionné uniquement celles dont la pente est inférieure à 15 °. Ces points correspondent bien en grande majorité à des lieux qui nous intéressent. Mais, y figurent aussi des cellules « parasites » localisés en fond de vallées ou dans des plaines ayant des pentes inférieures à 15 ° (Fig. III-16) qui seront éliminés par la suite avec d'autres outils.

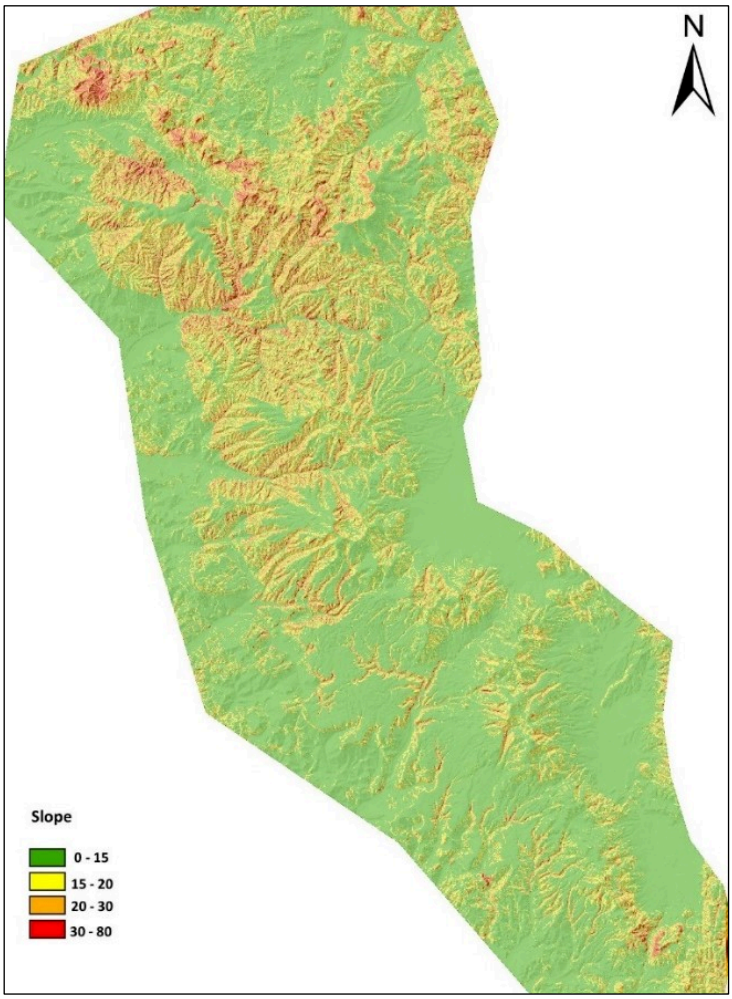


Fig. III-16: Carte des pentes

III. 2.2.2.3.2 L'indice de position topographique

L'indice de position topographique (Topographic Position Index en anglais ; TPI), (Weiss, 2001) est la base du système de classification des reliefs. Il est calculé comme la différence entre l'altitude de la cellule et l'altitude moyenne de son voisinage, différence ensuite normalisé à l'écart-type des valeurs de ce voisinage :

$$(Alt_{MNT} - Moy_{Alt_voisinage}) / Ecart\text{-}type_{Alt_voisinage} \quad (Eq_1)$$

Les valeurs de TPI positives représentent des cellules supérieures à la moyenne de leur environnement, tels que définis par le voisinage (généralement des crêtes, des sommets ou des haut de pente). Les valeurs de TPI négatives représentent des emplacements plus bas que leurs environnements (vallées, bas de pentes). Les valeurs de TPI proches de zéro sont soit des zones plates soit des zones de variation d'altitude homogène. Ces deux cas sont distingués par la valeur de pente de la cellule (Fig. III-17A).

La définition de la géométrie du voisinage obéit à plusieurs critères comme la méthode du proche voisin utilisant un critère de recherche circulaire, en anneau ou même rectangulaire dans lesquels seules les cellules situées dans une gamme de distance bien spécifiée sont prises en compte. Cependant, il est néanmoins utile de noter que parmi tous ces critères, les critères de recherche circulaires ou annulaires sont les plus adéquats et raisonnables (Weiss, 2001).

Comme la seule entrée requise est un modèle numérique de terrain, le TPI peut donc être facilement généré. C'est aussi un paramètre intrinsèquement dépendant de l'échelle d'observation. En effet, pour une localité donnée avec un paysage caractéristique, le calcul de TPI avec une zone de recherche fine (150 m par exemple ; Fig. III-17B), serait différent par rapport à celui obtenu avec une zone de recherche plus large (1050 m ; Fig. III-17B). Par exemple la Fig. III-17B montre que le résultat de calcul d'un TPI à une échelle de 150 m est constitué d'un ensemble de relief de vallée, crête, zone à forte ou faible pente et de plaine à fond plat tandis que, pour la même localité et pour un TPI plus large (1050 m), il montre que les secteurs préalablement de faibles pentes peuvent devenir des crêtes, des crêtes devenant des Vallées, tandis que les fonds plats de vallées deviennent des crêtes (Fig. III-17B). Toutefois, le choix de l'une de ces échelles (fine ou grossière) est étroitement lié au type de problème à résoudre car, nous voyons aisément que les caractéristiques géologiques d'un site peuvent être affectées par le TPI à plusieurs échelles.

En seuillant donc les valeurs de TPI à une échelle donnée et en vérifiant la pente pour des valeurs proches de zéro, les paysages peuvent être classés en classes (Fig. III-17B).

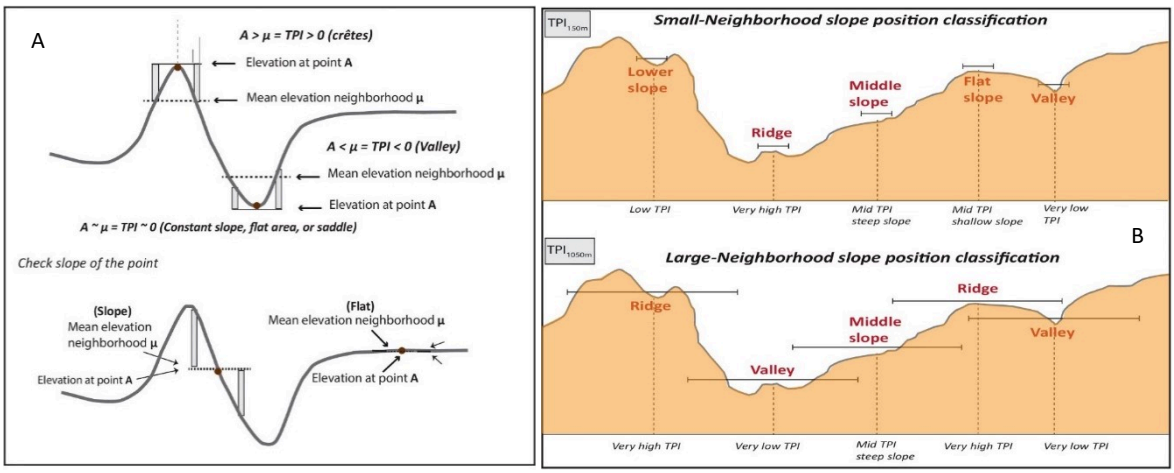


Fig. III-17: A) Topographic Position Index estimation modified from (Weiss, 2001); B) classifying the landscape using 2 TPI grids at different scales (150 m and 1050m) acc. to (Jenness, 2006)

Dans le cadre de la détermination du TPI de cette étude, nous avons utilisé des TPI à 150 m et à 1050 m comme suggéré par (Weiss, 2001). Ainsi, en utilisant un TPI à 150 m (Fig. III-18), de nombreuses lignes de crêtes et vallées sont délimitées à l'échelle fine, y compris les écoulements latéraux dans les principales vallées et les fonds des principaux canyons ou vallées sont classés en zones planes (Fig. III-18). Quant au TPI à 1050 m, la classification montre les principaux reliefs (Fig. III-19) : les sommets, les principales lignes de crêtes et les principales vallées et canyons. Les plus petites caractéristiques latérales disparaissent et les fonds des canyons sont maintenant classés dans les vallées (Fig. III-19). La définition des seuils doit donc prendre en compte plusieurs facteurs : le paysage spécifique, l'échelle de l'index (150 m ou 1050 m dans ce cas-ci) ; et le problème particulier abordé.

Sur la base de ce TPI (150-1050 m) nous avons déterminé une carte de TPI présentant les caractéristiques morphométriques de chaque secteur (Fig. III-20). De plus, comme nous recherchions des secteurs représentants des zones d'altitudes élevées, nous avons retenues uniquement les secteurs codés 6 : open slope (pente ouverte) ; 7 : upper slope (pente supérieure) ; et 10 : high ridges (crêtes supérieures) (Fig. III-20). Le TPI, comme la carte de pente, permet donc de sélectionner les secteurs qui correspondent au mieux aux secteurs quasi préservés. Sur ces dernières, restait à éliminer les cellules parasites présentes sur des planèzes par exemple mais ayant subi une érosion telle que cela les rende inéligible en tant que surface volcanique pré érosionnelle.

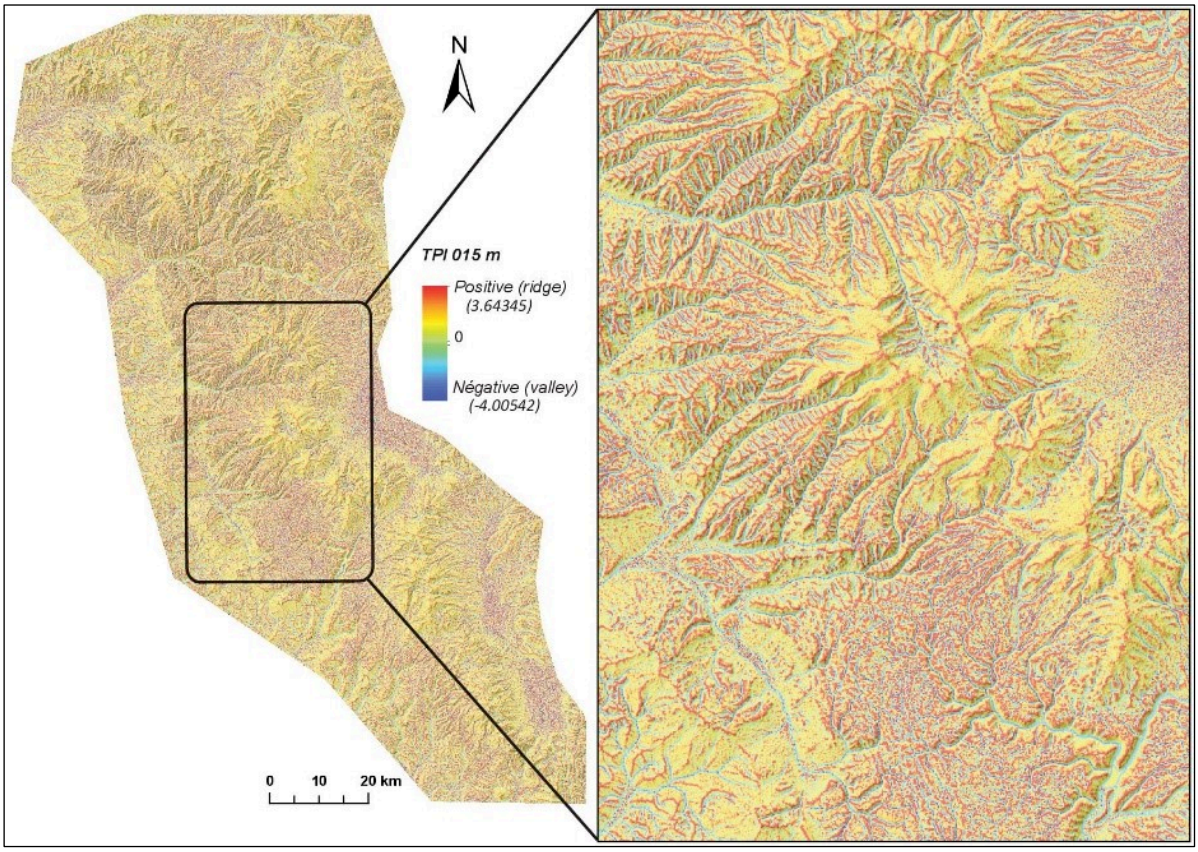


Fig. III-18 : Carte de TPI au niveau du segment CGH avec une échelle fine (150 m) ; TPI variant de -4.00542 et 3.64345

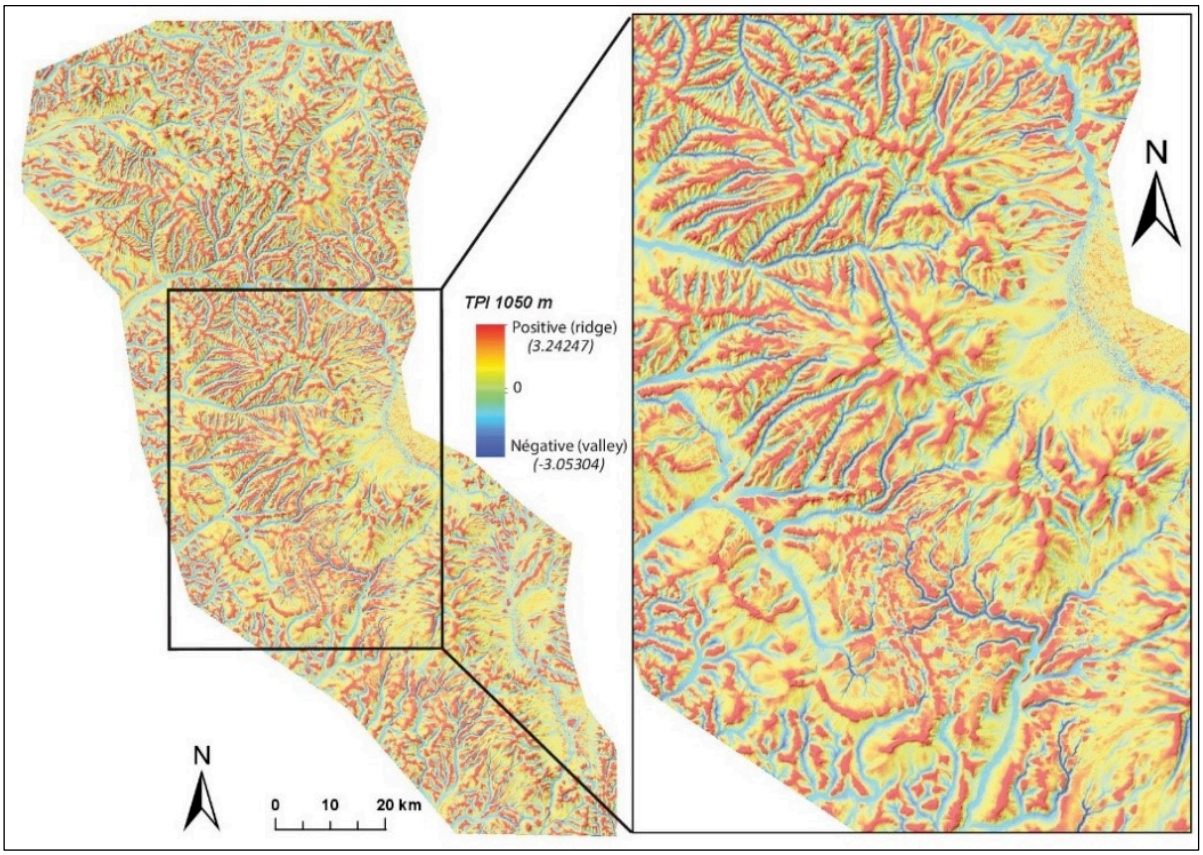


Fig. III-19 : Carte de TPI au niveau du segment CGH avec une échelle d'observation plus large (1050 m). TPI varaiant entre -3.05304 à 3.24244)

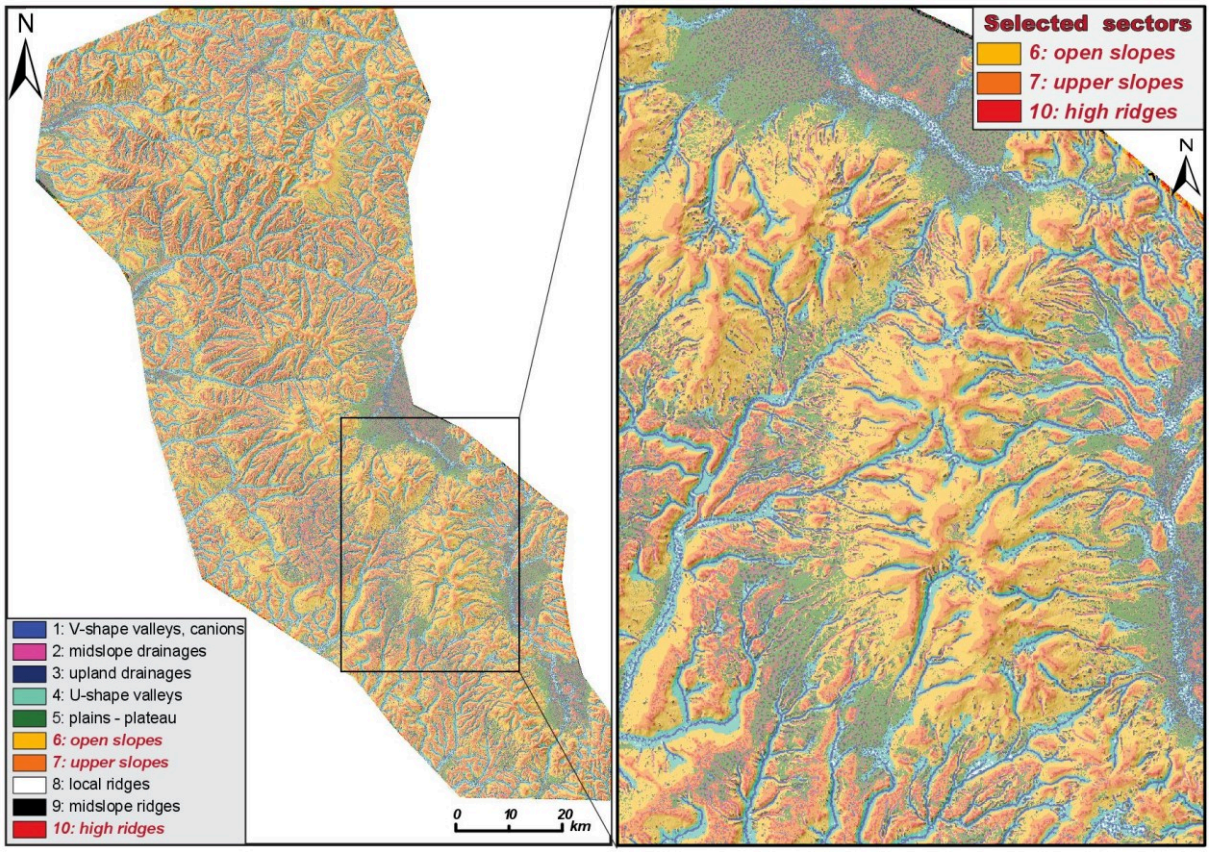


Fig. III-20: Map of final TPI resulting for the combination of TPI at 150 m and 1050 m thresholded by standard deviation units into 10 slope position classes where 3 classes are selected (see the red text on the legend)

III. 2.2.2.3.3 L'angle d'ouverture topographique (Op)

L'ouverture topographique (Topographic Openness en anglais) est un paramètre morphométrique développé par (Yokoyama et al., 1999, 2002), exprimant le degré d'ouverture ou de clôture d'un lieu sur une surface irrégulière. En d'autres termes, c'est une mesure angulaire de la relation entre le relief de la surface et la distance horizontale. Sa mesure intègre le principe de la ligne de visée du terrain et est calculée à partir des angles de zénith et de nadir le long des huit directions azimutales (N, NO, O, SW, S, SE, E, NE). En effet, l'angle d'ouverture a deux perspectives pour l'observateur. Les valeurs positives, exprimant l'ouverture au-dessus de la surface sont élevées pour les formes convexes (Fig. III-21), alors que les valeurs négatives décrivent cet attribut sous la surface et sont élevées pour les formes concaves (Fig. III-21). Pour déterminer la valeur d'ouverture pour chaque cellule du MNT, les profils topographiques locaux dans les huit directions azimutales sont extraits du MNT sur une distance radiale définie (r). À partir de ces 8 profils, on détermine l'angle le plus grand possible du zénith (Fig. III-21, α_r) ou du nadir (Fig. III-21, β_r) le long de chaque profil. La valeur moyenne de tous les angles du zénith est égale à l'ouverture positive, de même que la valeur moyenne du nadir désigne l'ouverture négative (Fig. III-21).

$$\alpha = ({}_{N}\alpha + {}_{NO}\alpha + {}_{O}\alpha + {}_{SW}\alpha + {}_{S}\alpha + {}_{SE}\alpha + {}_{E}\alpha + {}_{NE}\alpha) / 8$$

$$\beta = ({}_{N}\beta + {}_{NO}\beta + {}_{O}\beta + {}_{SW}\beta + {}_{S}\beta + {}_{SE}\beta + {}_{E}\beta + {}_{NE}\beta) /8$$

$$\mathbf{Op = (\alpha + \beta) /2} \qquad (Eq_2)$$

Les valeurs ainsi dérivées peuvent théoriquement varier de > 0 ° à <180 °. Les surfaces parfaitement planes, qu'elles soient horizontales ou inclinées, ont des valeurs d'ouverture de 90 °. La distance radiale (r) choisie définit un noyau circulaire ou une fenêtre mobile qui est déplacée sur le modèle pour calculer l'ouverture pour toutes les cellules de la grille. Le choix de la valeur appropriée de (r) est important pour obtenir les détails topographiques à partir des données, mais il n'y a pas de règle qui puisse être utilisée pour la déterminer, aussi elle se détermine le plus souvent empiriquement. Les entités topographiques en dehors de ce cercle de recherche (c'est-à-dire > r) seront ignorées lors du calcul d'une valeur d'ouverture pour l'emplacement spécifique. Par conséquent, le choix de la longueur de la distance radiale aura une incidence sur les résultats du calcul. De manière générale, les petites distances (quelques cellules de rayon) amélioreront la qualité micro-topographique locale, alors que les valeurs élevées (10 – 20 cellules de rayon) mettront en valeur les vallées et les collines. Par conséquent, la taille du paramètre radial dépend directement de l'échelle spatiale de la question de recherche, ce qui nécessite parfois le calcul de l'ouverture avec différents paramètres radiaux.

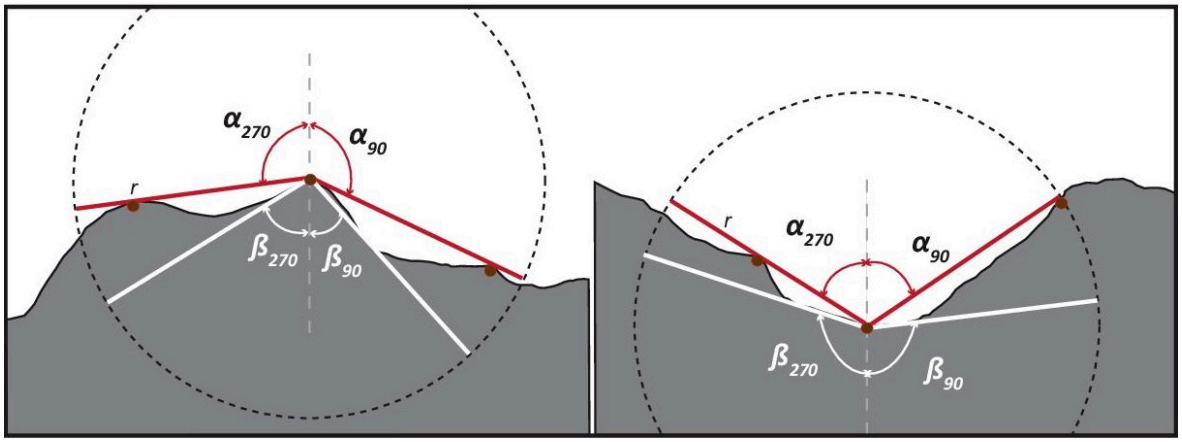


Fig. III-21 : Calculation of positive (α) and negative (β) openness along two profiles (along East (α 90, β90) and West (α270, β270) direction) within a given radial distance (r) in two different topographic situations (modified after (Doneus, 2013)).

Nous avons donc déterminé et privilégié une faible distance radiale (r=10 cellules i.e., 300 m pour un MNT de 30 m) pour la détermination de l'angle d'ouverture dans notre secteur d'étude (Fig. III-22).

Puisque nous visions des secteurs localisés principalement sur des planèzes (angle d'ouverture légèrement positif) et secondairement sur les crêtes et/ou en limite de bassins versants (angle d'ouverture positif), nous avons retenus comme cellules adéquates toutes celles présentant un angle d'ouverture positif compris entre 0 °et 20 ° (secteur rouge sur Fig. III-22). Toutes cellules

à valeur négative (vallées) et ceux > 20° (crêtes très acérées donc ayant manifestement subi une érosion significative) ont été écartées (Fig. III-22).

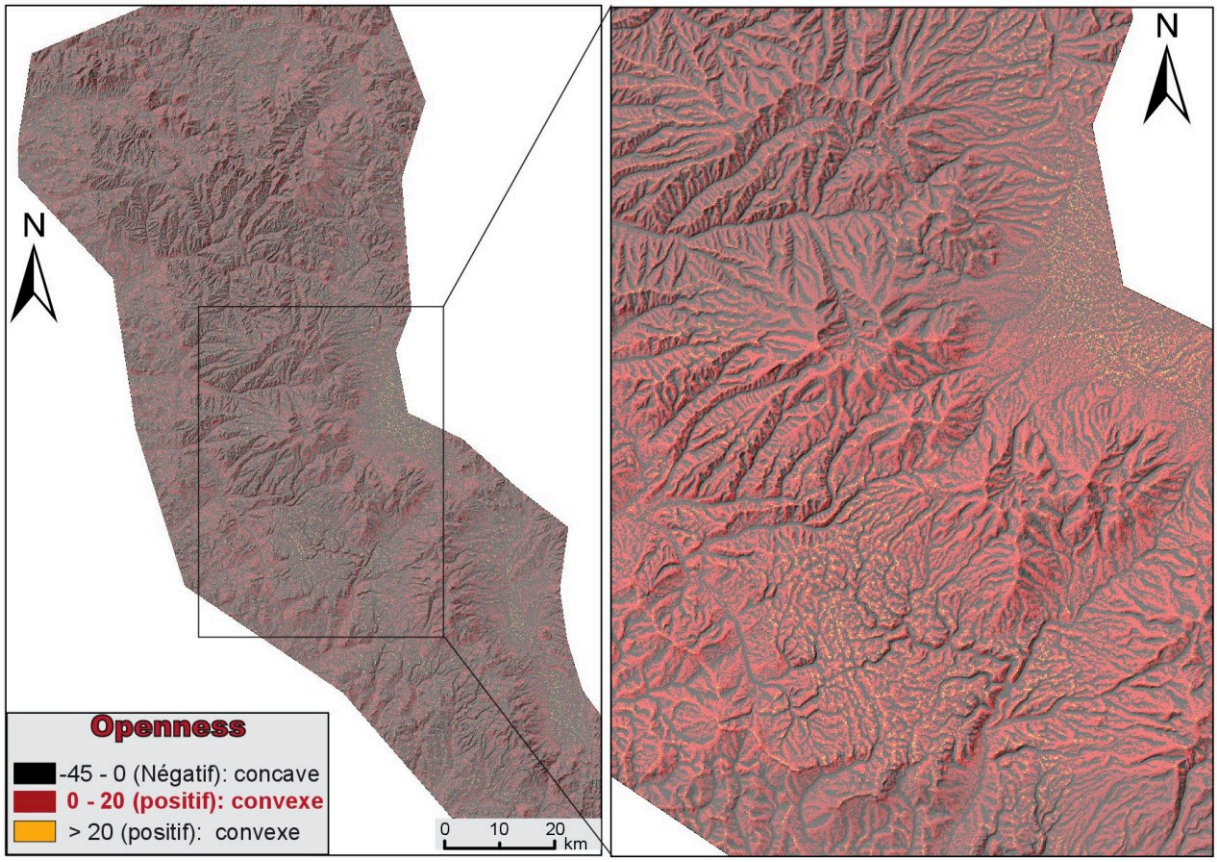


Fig. III-22 : Map of openness along CGH volcanic range

Une fois la sélection des cellules par les différents outils effectués, nous les avons combinés tous ensemble afin de ne retenir que les points qui remplissaient les trois critères à savoir :

- Pente < 15 ° (Fig. III-16)
- TPI (open slopes [pentes ouvertes ; code 6], upper slopes [pentes supérieures ; code 7] et high ridges [crêtes supérieures ; code 10] ; Fig. III-20).
- Angle d'ouverture comprise entre 0° et 20° (Fig. III-22)

De fait, c'est en couplant ces trois critères morphométriques que nous avons été capable de sélectionner uniquement des secteurs des volcans représentant les surfaces non-érodées c'est-à-dire des surfaces représentant les lieux sur lesquels se sont basés les reconstructions (Fig. III-23). Une fois ces secteurs utiles sélectionnés (secteurs roses Fig. III-23), ils ont été convertis en un fichier de points XYZ (coordonnées géographiques X et Y, altitude Z) pour l'ensemble de la chaîne volcanique représentant une base de données d'environ 20 millions de points (Fig. III-24).

Une fois cette étape effectuée, la détermination des bassins versants à l'échelle du segment volcanique a été effectuée (Fig. III-25A). Connaissant les limites de chaque volcan ainsi que leur

emplacement, nous avons donc sélectionner parmi ces bassins versants uniquement ceux qui se situaient sur et à proximité des volcans de la chaîne (bassins versant coloriés sur la Fig. III-25A ; avec chaque couleur correspondant à un volcan unique de la chaîne). Ainsi donc, en couplant le fichier de points de la Fig. III-24 avec les bassins versants utiles (coloriés ; Fig. III-25A) nous avons pu ne sélectionner que les points nous permettant de reconstruire les paléo-surfaces des volcans de la chaîne (Fig. III-25B).

Les limites de bassins-versants ont aussi permis d'affiner le travail de sélection tout en excluant manuellement des points situés dans des positions topographiques basses et localisés dans des ravinements qui pouvaient avoir échappé aux critères d'exclusion précédent. Ainsi, pour l'ensemble de la chaîne volcanique de CGH, 200 000 points de contraintes (sur un total de 20 millions de points du MNT, soit 1 % de points retenus) ont été extraits (Fig. III-25B et C).

Pour des raisons pratiques, et compte-tenu de leur redondance locale, ces points de contraintes ont été réduits à un dixième (environ 20 000 ; Fig. III-26) sans toutefois compromettre l'homogénéité de leur distribution le long du segment volcanique et finalement, chaque point de contraintes a reçu un attribut correspondant, en fonction de sa localisation, à un code unique pour chaque édifice volcanique de la chaîne (Fig. III-26).

C'est cette base de points de contraintes qui constitue le jeu de données numériques (Fig. III-26) nécessaires aux reconstructions numériques pour chacun des volcans identifiés.
Toutes les interpolations furent réalisées grâce à l'algorithme ShapeVolc (Lahitte et al., 2012 ; Germa et al., 2015 ; Ricci et al., 2015 ; Bablon et al., 2018), excepté pour le volcan le plus irrégulier, modélisé par krigeage (krige 1951).

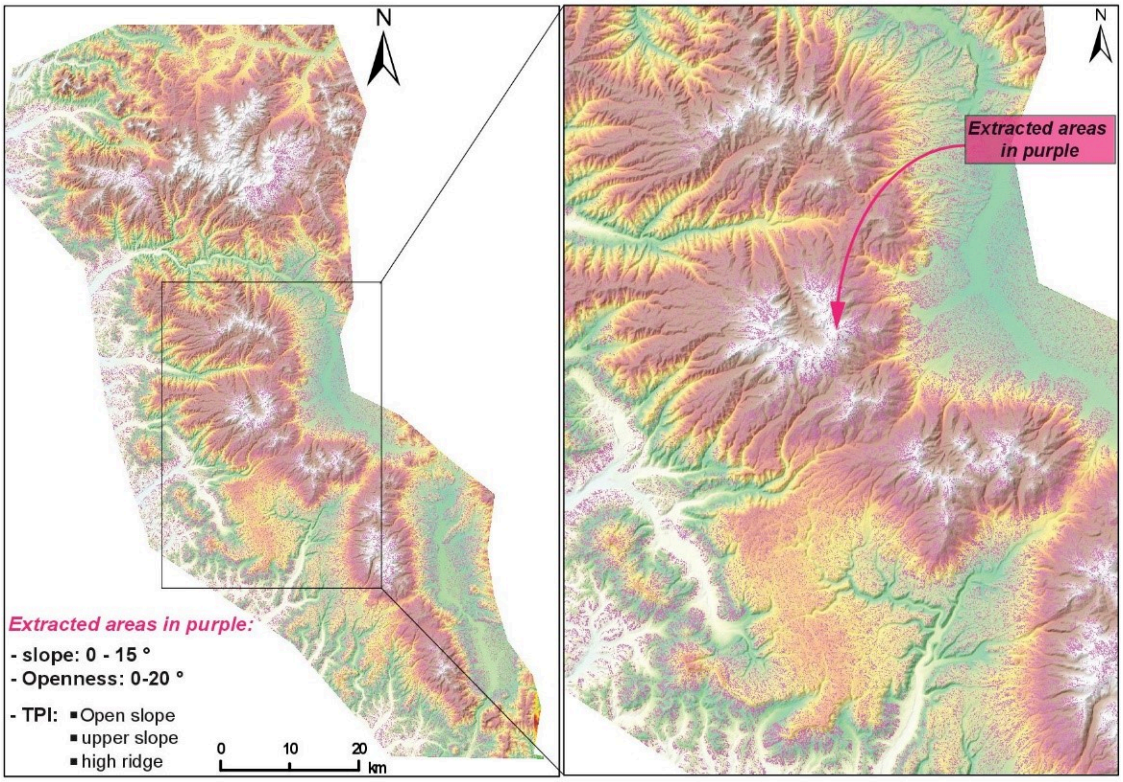


Fig. III-23: A) Map of selected areas after combining all morphometric parameters (slope, openness and TPI) to extracts non-eroded areas (purple) B) Zoom on A) around the axial part of the CGH range.

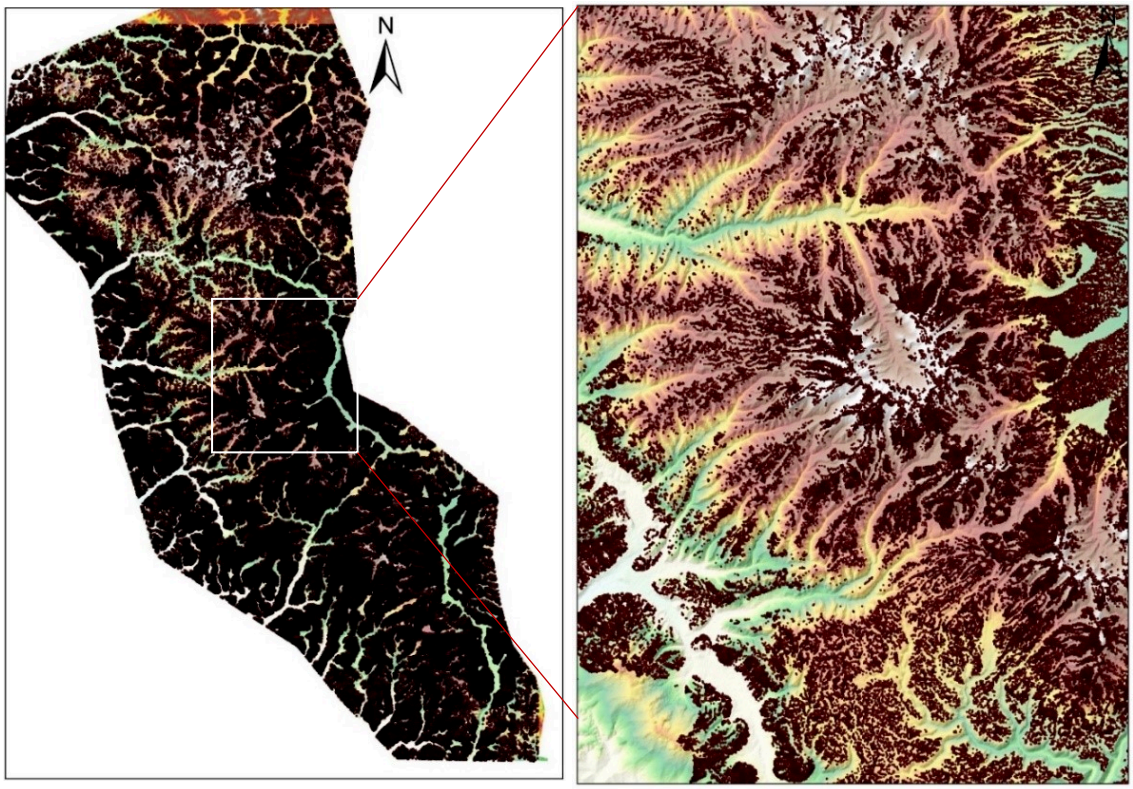


Fig. III-24 : A) Conversion of the extracted areas of Fig. III-12A into points files with XYZ coordinates (~20 million points). B) zoom around the axial part on Seaca Tatarca volcano)

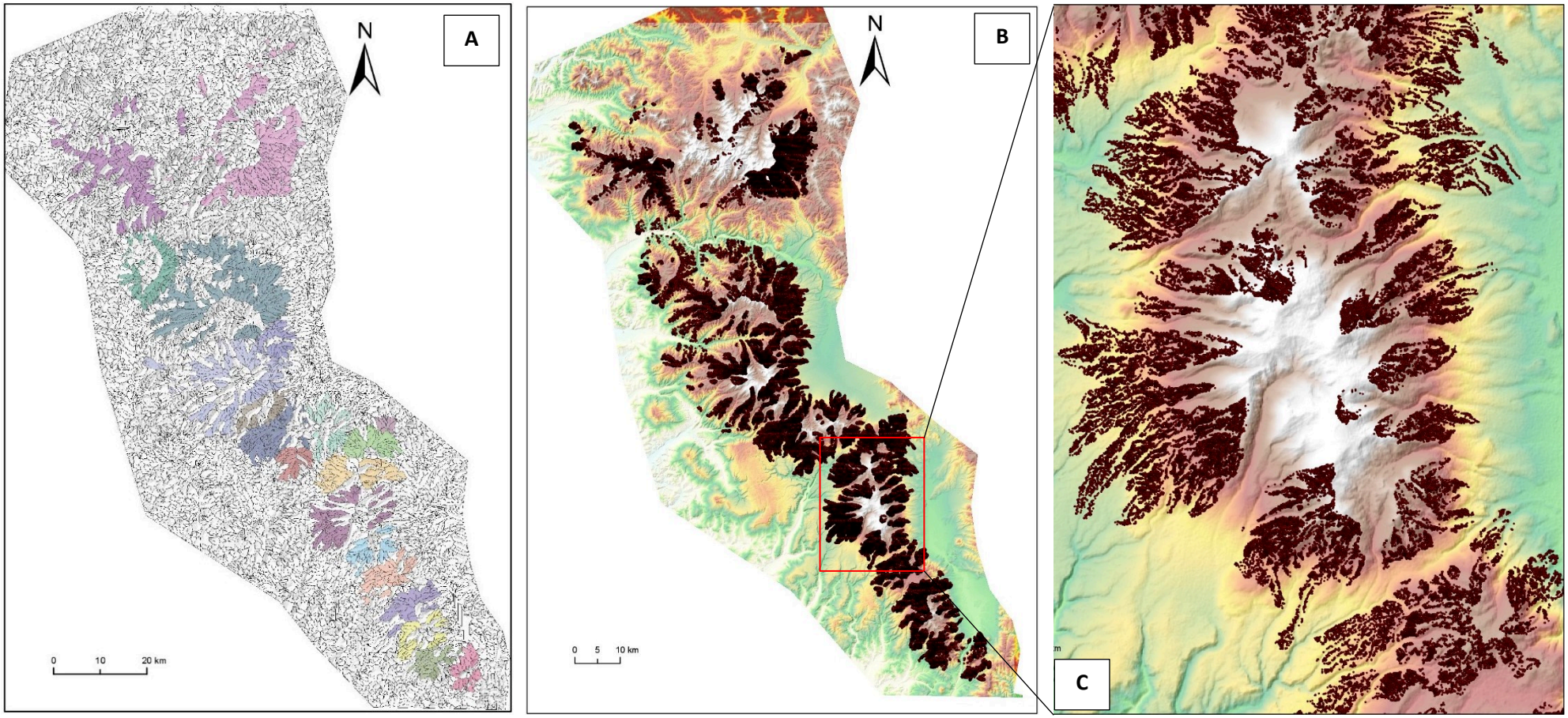


Fig. III-25 : A) Watershed delimitation along the CGH segment; the coloured Watershed represents the useful watersheds (located at the level of the identified volcanoes and each colour corresponding to a unique volcanic edifice. B) Resulting constraining points from the combination of points of Fig. III-12 and coloured watersheds on Fig. III-13 (~ 200 000 points). C) zoom to the level of North Harghita

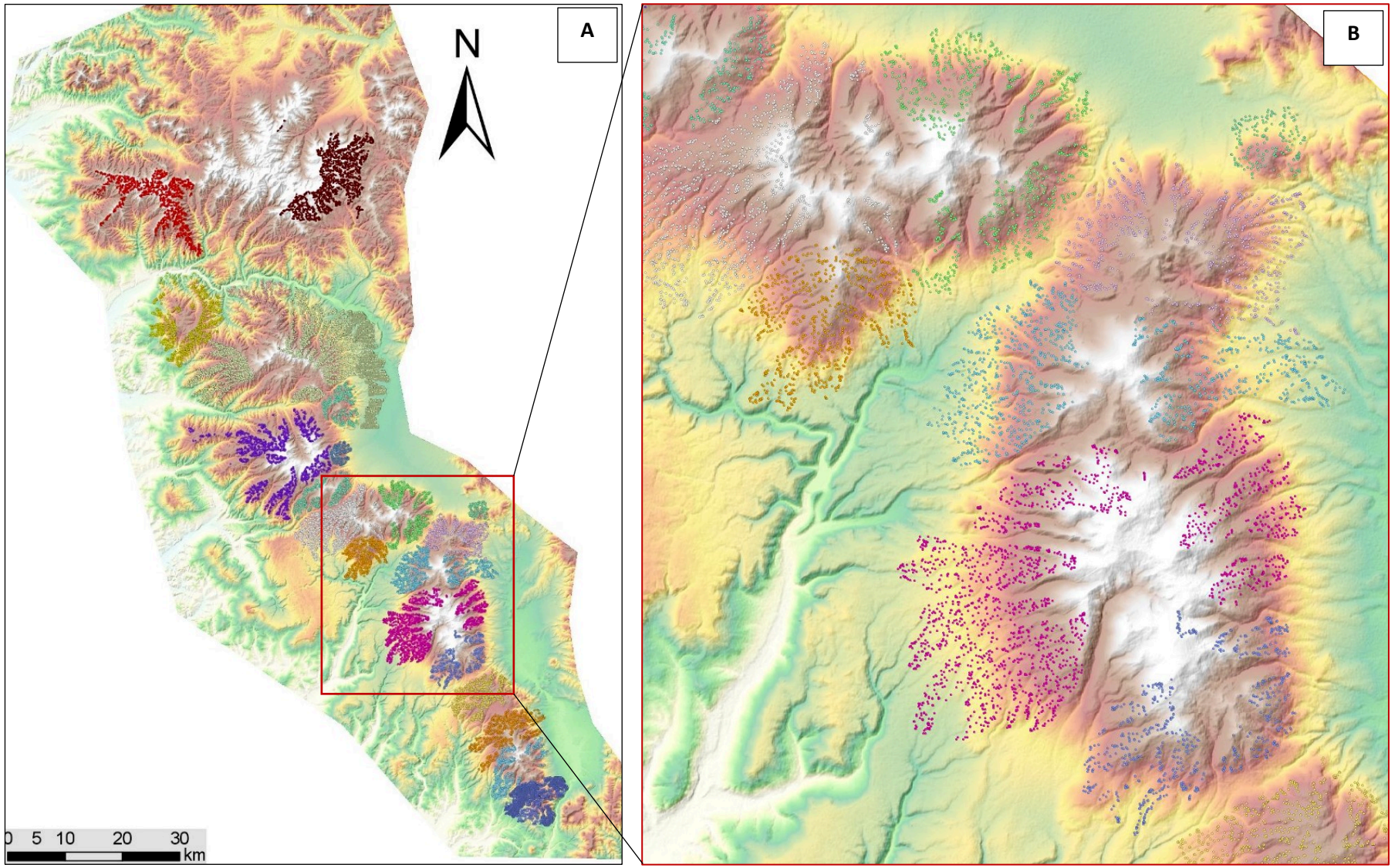


Fig. III-26 : A) Final database of Constraining points (CPs) of each single volcanic edifice (~20 000 points). B) zoom around the Gurghiu area

III. 2.2.3 Outils et méthodes d'interpolations

III. 2.2.3.1 Interpolation par krigeage ou Kriging

Au cours de ce travail, le krigeage a été essentiellement utilisé pour modéliser dans un premier temps la surface de base sur laquelle s'est construit l'ensemble des volcans de la chaîne de CGH et dans un second temps, pour la reconstruction numérique d'un des 20 volcans identifiés le long de la chaîne. Ces grands principes sont rappelés ici brièvement.

III. 2.2.3.1.1 Principes

Le krigeage est une méthode géostatistique d'interpolation spatiale, qui génère une surface à partir d'un ensemble de points dispersés. Cette méthode se base sur des modèles statistiques comprenant l'autocorrélation, c'est-à-dire les relations statistiques entre les points mesurés. Ainsi, le krigeage est considéré comme une méthode d'estimation linéaire objective, garantissant le minimum de variance et tenant compte non seulement de la distance entre les données et le point d'estimation, mais également de la distance entre les données elles-mêmes. Pour réaliser la couche de surface, le krigeage considère que les données proviennent d'un processus stochastique stationnaire et que la distance liant les points d'échantillonnage reflète une corrélation spatiale pouvant expliquer les variations de la surface. Il applique alors, une fonction mathématique à l'ensemble des points situés dans un rayon de recherche bien précis. Il est très souvent qualifié de meilleur estimateur linéaire non-biaisé. D'ailleurs, Pour estimer l'autocorrélation spatiale des points d'échantillonnage mesurés, le krigeage utilise un semi-variogramme définit par la relation :

$$\gamma\,(x,y) = 0.5 \text{ x moyenne } [(Z_x - Z_y)^2] \qquad (Eq_3)$$

Le diagramme du semi-variogramme empirique est défini par les valeurs de semi-variogramme moyennes sur l'axe des ordonnées et la distance (ou décalage) sur l'axe des abscisses (Fig. III-27). Basées sur le principe géographique que plus les éléments sont proches, plus ils se ressemblent, les paires de valeurs les plus proches (distance faible entre les données, à gauche sur l'axe des x) devraient ainsi avoir des valeurs similaires (situé en bas de l'axe y). Au contraire, plus elles seront éloignées et plus elles deviennent dissemblables (Fig. III-27).

Le semi-variogramme obtenu est ensuite modélisé par une fonction continue, tel qu'une fonction circulaire, sphérique, exponentielle, gaussienne ou linéaire. Le modèle utilisé influence la prévision des valeurs inconnues. Plus la courbe décline près de l'origine et plus les voisins les plus proches influenceront la prévision, et par conséquent la surface en sortie sera moins lisse. Un des paramètres primordiaux dans la caractérisation du modèle est l'effet dit de

pépite (nugget en anglais). En théorie, lorsque la distance de séparation (axe des abscisses) est nulle, la valeur du semi-variogramme est également nulle (Fig. III-27 ; Fig. III-28A). Or dans certains cas, on observe une ordonnée à l'origine (donc pour les petites distances) qui est non nulle (par exemple si le modèle de semi-variogramme intercepte l'axe des y à 2, alors la pépite ou l'effet pépite est 2 ; Fig. III-27 ; Fig. III-28B). Ce décalage (effet pépite) correspond soit à des erreurs de mesure inhérentes le plus souvent à l'appareil de mesure ou à une variation significative des valeurs du paramètre modélisé (ici la surface) entre deux mesures effectuées pourtant à des emplacements très proches.

L'interpolation par krigeage étant basé sur un modèle statistique, elle permet également de fournir une incertitude sur la surface générée. Cette dernière correspond à la variance du krigeage (σk^2), qui dépend du variogramme et de la position des points de données, mais pas des valeurs de celles-ci.

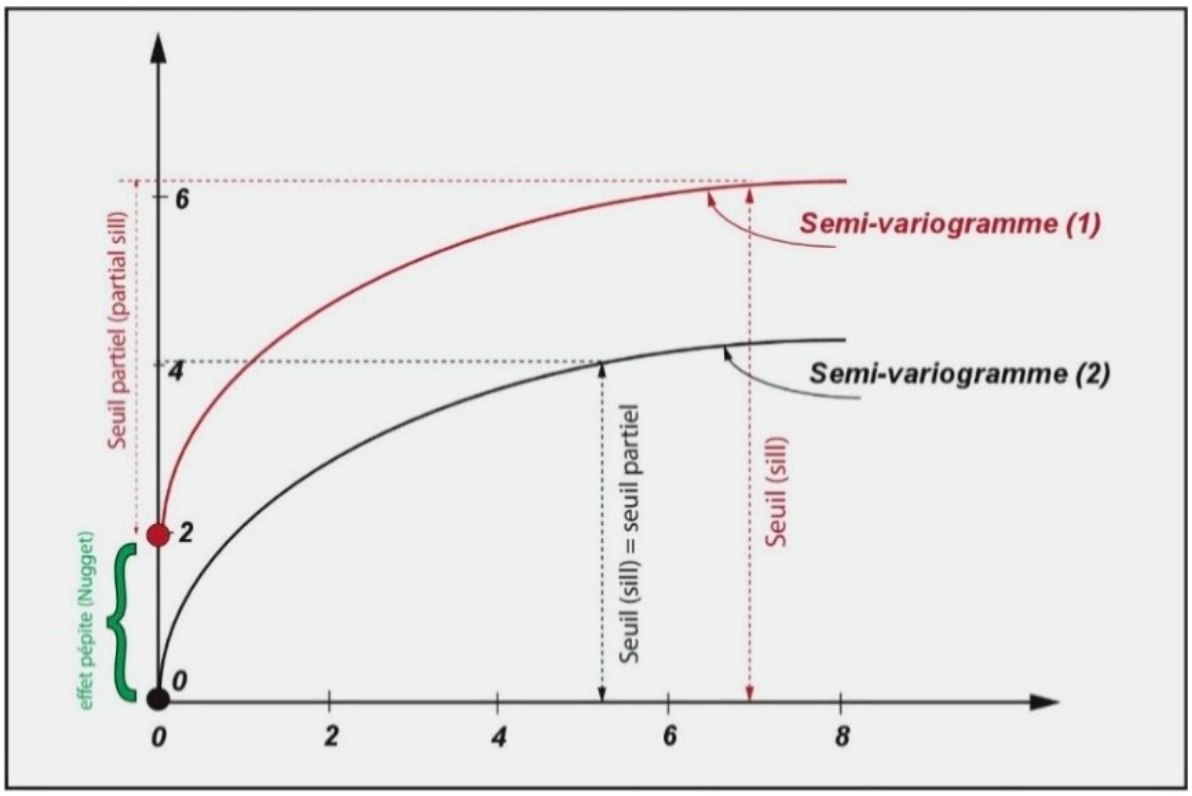


Fig. III-27 : Illustration des composants Plage, Seuil et Pépite (nugget)

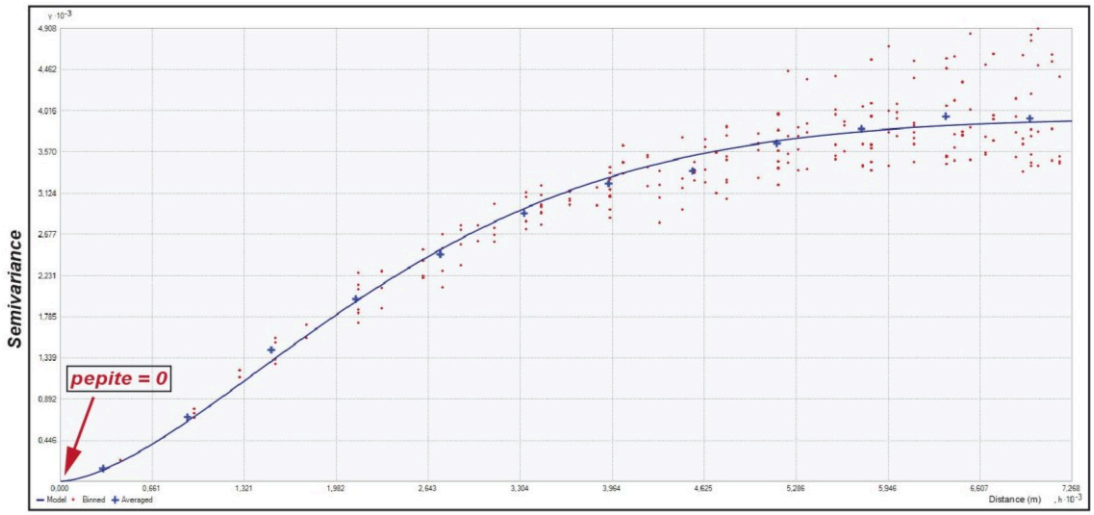


Fig. III-28: A) Example of a semi-variogram with an exponential model obtained for the SBPV reconstruction. Selected points (CP) are shown in Fig. III- 14

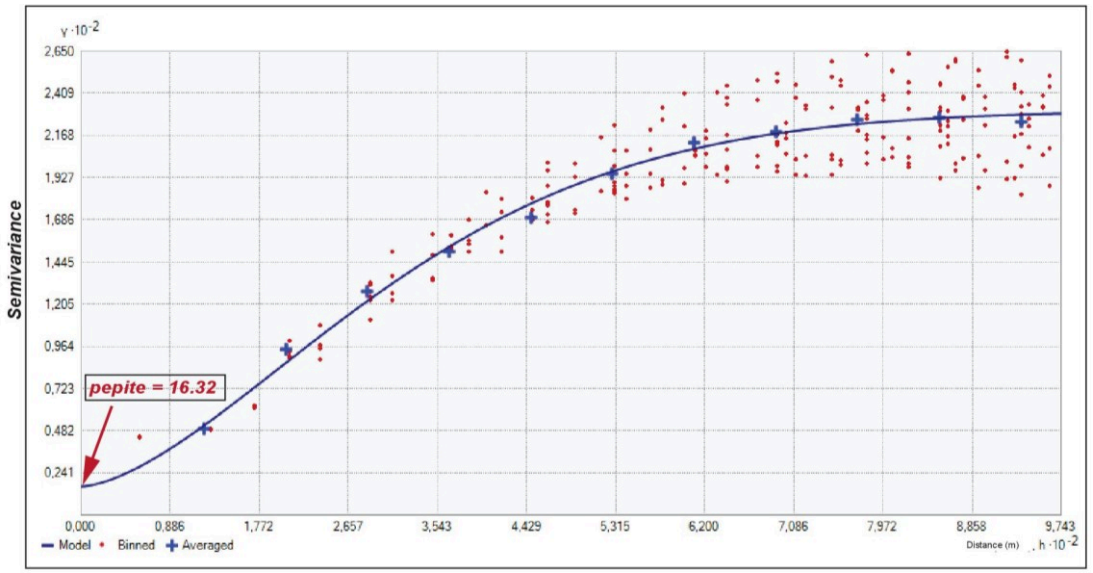


Fig. III-28 : B) Example of a semi-variogram with an exponential model obtained for the Pilisca volcano reconstruction. Selected points (CP) are shown in Fig. III-31

En domaine volcanique, la reconstruction numérique des édifices est basée sur l'interpolation de points préalablement sélectionnés dans le but de reconstruire les paléo-surfaces des édifices. L'objectif est donc d'obtenir une valeur d'altitude (Z) en chaque point du model. Le krigeage déduit par pondération des données existantes, les valeurs probables d'emplacement non métrés. Ainsi, il apparait comme l'une des méthodes d'interpolation adéquate pour la reconstruction des édifices volcaniques. De plus, la création d'une carte d'incertitude liée à la surface interpolée nous permet de définir une incertitude en chaque point du model, qui pourra être reportée pour contraindre les volumes calculés par la suite.

III. 2.2.3.1.2 Les limites

Si l'interpolation par la méthode du krigeage apparait comme celle qui génère des prévisions spatiales les plus justes, il est à noter que dans le cas des reconstructions des paléo-

surfaces volcaniques, elle présente certaines limites qui peuvent du même coup concourir à limiter son utilisation dans certaines conditions.

Tout d'abord, le krigeage déduit par pondération des données existantes les valeurs manquantes ce qui nécessite donc la présence d'un certain nombre de contraintes. En géomorphologie volcanique, l'un des objectifs étant de reconstruire les édifices préalablement érodés ou même de définir les surfaces de bases de ces édifices, le manque de contraintes (points de contraintes) peut empêcher l'application du krigeage. Pour des volcans très démantelés, généralement caractérisés par l'absence d'un ou plusieurs flanc entier (cas du volcan Rusca-Tihu du secteur de Călimani, Fâncel-Lăpuşna de Gurghiu), le krigeage n'aurait pas permis la construction d'un modèle. En effet, le krigeage ne peut créer de surface correcte par interpolation en absence de points de contraintes sur un important secteur. Ainsi, dans le cas de la reconstruction numérique, le krigeage ne peut être appliqué à l'ensemble des édifices volcaniques.

De plus, le modèle résultant d'une interpolation par krigeage passe, dans l'ensemble, au niveau des points sélectionnés ce qui est en contradiction avec la modélisation d'une surface pré érosionnelle. En effet, cette surface pré érosionnelle se doit d'être au minimum aussi haut que l'ensemble des points de contraintes dont l'altitude actuelle ne peut mathématiquement être moindre que celle de la surface avant les effets de l'érosion. Ainsi, même si ces points de contraintes correspondent, autant que possible, aux surfaces non érodées, une méthode d'interpolation qui ne pourrait envelopper ces points ne respecterait pas le « cahier des charges ». Par conséquent, les calculs volumétriques issus d'une telle interpolation ne permettront pas d'obtenir des volumes réalistes au sens strict du terme mais plutôt des volumes minima de la morphologie post-éruptive de l'édifice volcanique en question. C'est le cas, de nombreux volcans de ce segment volcanique qui présentent des grandes dépressions centrales qu'il s'agisse de caldera/cratère d'effondrement ou d'érosion (exemple zoom sur le volcan Seaca-Tătarca, Fig. III-29). De tel manque de contraintes dans les zones centrales induirait par krigeage un aplanissement du modèle (tracer rouge, Fig. III-30), entrainant une importante sous-estimation des volumes construits comme érodés.

Enfin, (voir ci-dessous) le mode de construction des volcans induit au premier ordre, une symétrie de révolution que le krigeage ne saurait reproduire correctement si un large secteur de l'édifice devait se trouver sans point de contrainte (Fig. III-29).

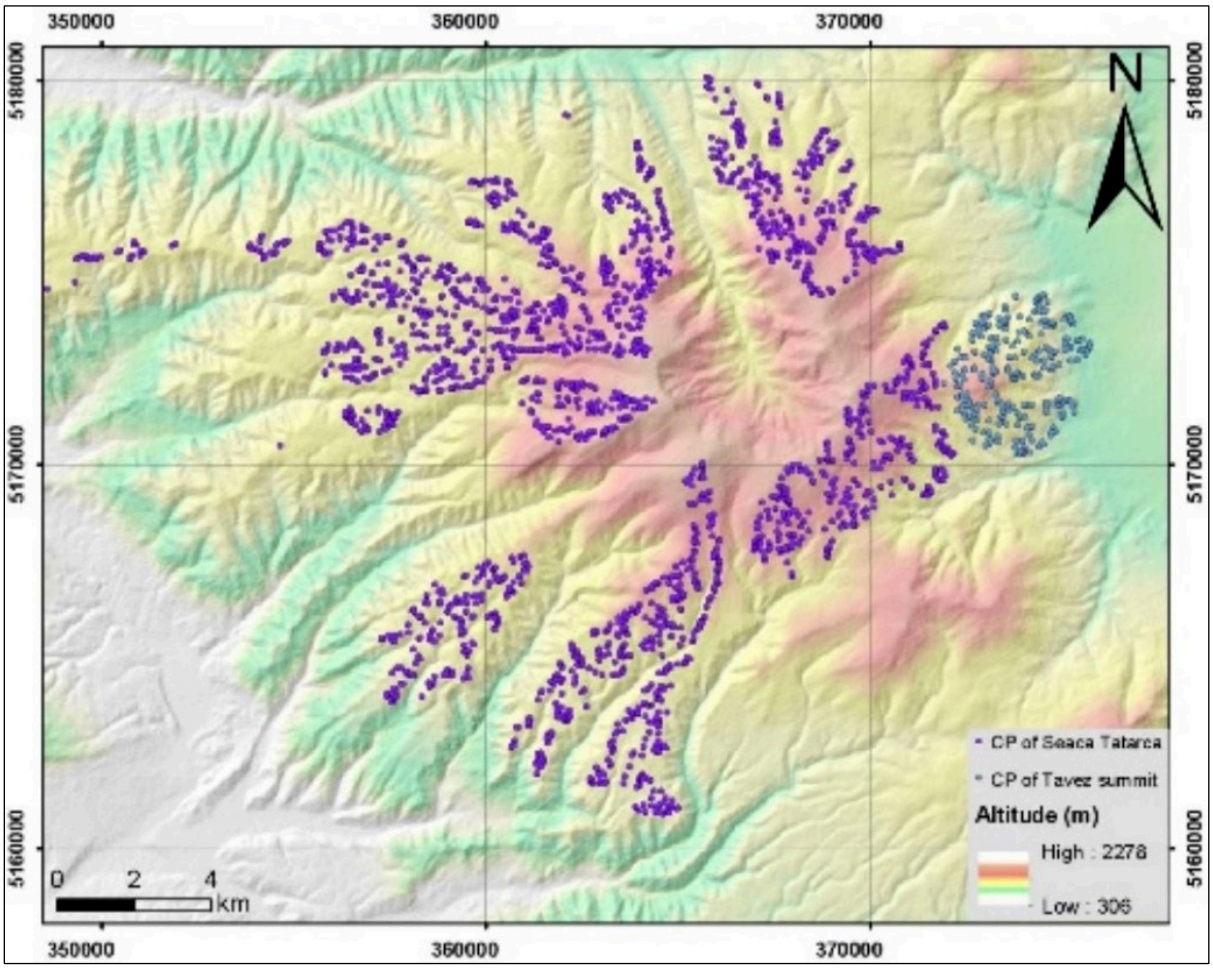


Fig. III-29 : Représentation du volcan Seaca-Tătarca avec les points de contraintes ainsi que belle dépression sommitale

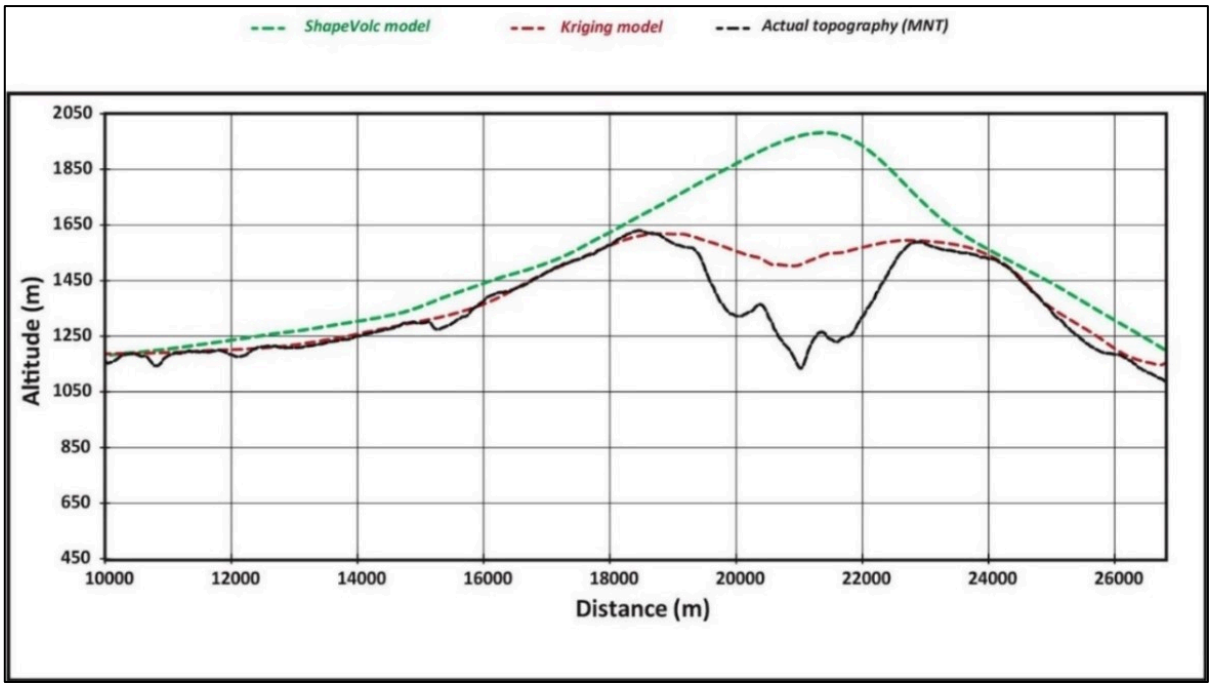


Fig. III-30 : Exemple de graphe altitude versus distance montrant la différence entre un modèle reconstruit par kriging (courbe rouge) et celui reconstruit via ShapeVolc (courbe verte) dans le cas d'un volcan d'une dépression sommitale prononcée (volcan de Seaca Tatarca ; Fig. III-29)

Toutefois, dans les cas les plus favorables c'est-à-dire des cas où les points de contraintes sont uniformément distribués, ou alors le cas des édifices volcaniques ne présentant pas de grandes dépressions telles que mentionnés plus haut, (cas du volcan Pilisça ; South Harghita. Fig. III-31A et B), l'interpolation par krigeage permet d'obtenir une quantification de volumes post-éruptifs des massifs volcaniques (voir chapitre V).

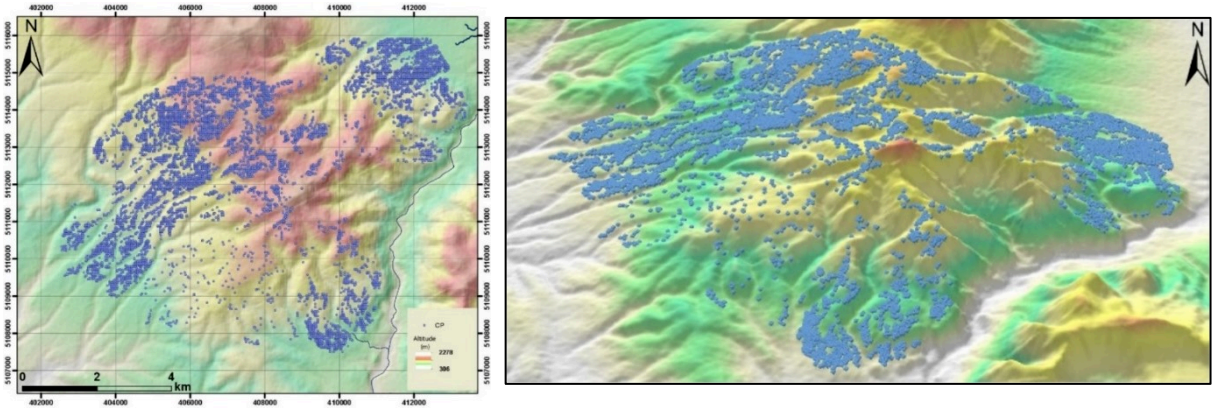


Fig. III-31 : A) Distribution quasi uniforme des points de contraintes le long du volcan Pilişca (2D). B) Vue en 3D de Pilişca avec les points de contraintes.

Enfin, les édifices volcaniques se construisant autour d'un point d'émission magmatique qui peut être vu comme ponctuel au regard de la taille final du volcan, cela confère à ces derniers une géométrie au premier ordre qui s'apparente à une symétrie de révolution. Or ce critère premier de la géométrie volcanique n'est pas pris en compte dans l'interpolation par krigeage.

En définitif, une méthode d'interpolation différente est préférable si les points de contraintes définissent une paléo-topographie volcanique lisse et surtout si seul un petit secteur de l'édifice en grande partie démantelé est préservé ou alors si les dépôts volcaniques préservés sont limités dans l'espace.

III. 2.2.3.2 Interpolation via l'algorithme ShapeVolc

III. 2.2.3.2.1 Présentation

Afin de s'affranchir des problèmes inhérents à l'interpolation par krigeage, les reconstructions numériques de ce travail ont été élaborées à partir d'une autre méthode d'interpolation via l'algorithme ShapeVolc (Lahitte et al., in prep.). Cette démarche, développée par P. Lahitte (Lahitte et al., 2012) pour la modélisation numérique de la surface des volcans, a déjà été utilisée avec succès dans divers contextes de démantèlement : effondrement de flanc important (Lahitte et al., 2012), formation de caldera (Lavigne et al., 2013), effondrement d'avalanches de débris (Germa et al., 2015) ou dans le cas de l'érosion régressive (Salvany et al., 2012; Ricci et al., 2015a, 2015b). Les bénéfices qu'apporte cet algorithme sont les suivants :

- Il recherche la position optimale du centre éruptif, y compris sur les édifices dont cette partie n'est plus apparente (masqué ou démantelée).
- Il génère une surface respectant au premier ordre la symétrie de révolution de l'édifice (Fig. III-33).
- Il crée une surface qui peut envelopper les points de contraintes (ou non selon la volonté de l'analyste) et ainsi n'est pas biaisé s'il reste au sein de la population de point de contrainte des lieux qui ont en fait subit une érosion et auraient dû être exclus en amont (Fig. III-32).

Cette méthode d'interpolation consiste à rechercher, via l'algorithme du simplex (Nelder and Mead, 1965), le jeu de paramètre qui minimise une fonction de coût, laquelle est paramétrable par les éléments de géométrie de l'édifice volcanique que sont (Fig. III-32) :

- La localisation de l'axe de révolution (X, Y)
- L'altitude du sommet
- Une forme circulaire ou elliptique de l'édifice dans un plan horizontale
- Le cas échéant l'orientation spatiale du grand axe et l'excentricité des ellipses.
- Les paramètres (1-4) du profil moyen appelé génératrice définissant la variation d'altitude en fonction de la distance au centre (Fig. III-32).

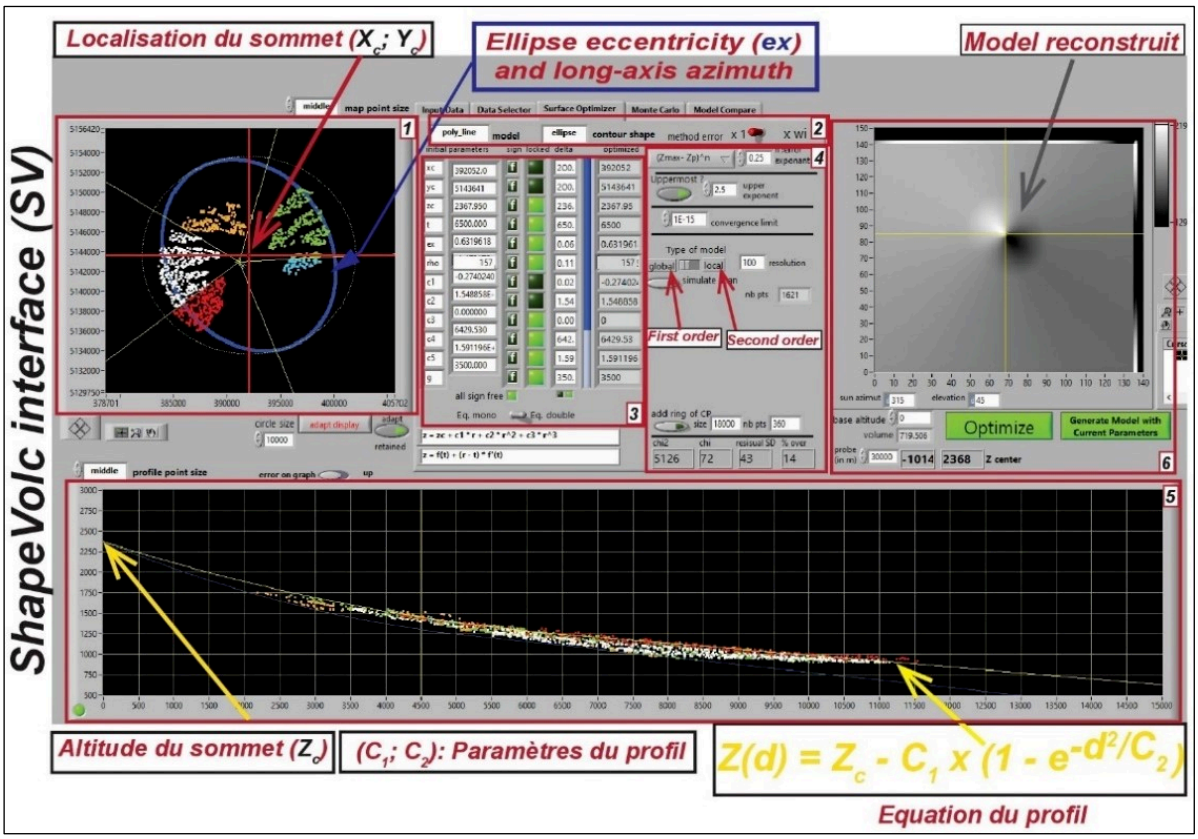


Fig. III-32 : L'interface du logiciel ShapeVolc, dédié à la modélisation des surfaces volcaniques (Lahitte et al., in prep.)

Dans le détail, dans l'environnement ShapeVolc, en supposant qu'un volcan affiche au premier ordre une symétrie axiale tel que suggéré par (Karátson et al., 2012), il trouve

simultanément l'ensemble des paramètres qui définissent cette géométrie au premier ordre d'un volume défini par une surface de révolution. L'érosion minimale qui aurait sans doute affecter nos points de contraintes au fil du temps est prise en compte par ShapeVolc par une contrainte supplémentaire qui oblige le profil à passer par le niveau maximum des points de contraintes (Fig. III-34). En effet, comme l'altitude actuelle de chaque point de contrainte est un minimum local de la surface pré érosionnelle, les paramètres sont calculés afin de trouver la surface de révolution la plus basse possible passant néanmoins juste au-dessus de ces points (Fig. III-34). Choisi comme coplanaire (dans le même plan) à l'axe z à partir d'un ensemble d'équations prédéfinies, ce profil peut être une droite pour modéliser des cônes parfaits, une exponentielle ou polynomiale pour modéliser des volcans de type andésitique (Cas de Vârghiş au Nord de Harghita ; Fig. III-34), ou même une courbe gaussienne pour le cas des dômes de lave ou des massifs évolués (Lahitte et al., 2012; Karátson et al., 2012a; Favalli et al., 2014; Grosse et al., 2009). Ensuite, l'algorithme crée une surface de révolution en faisant pivoter le profil le long de l'axe vertical passant au toit du centre éruptif optimal trouvé. Introduire une géométrie elliptique consiste à étirer et contracter la génératrice le long d'une ellipse (les paramètres de laquelle sont alors calés) pour ajuster au mieux la forme du volcan dans les cas, nombreux, d'un édifice ne présentant pas une symétrie centrale parfaite. Cette question s'est d'ailleurs drastiquement posée dans le cas des volcans de CGH où certains édifices de la partie axiale ont expérimentés le mécanisme d'étalement (spreading) unidirectionnel des volcans (Szakács and Krézsek, 2006) qui implique une perte de la symétrie centrale. A noter que ce spreading n'affecte pas le volume total de l'édifice mais seulement la répartition de ces masses (c'est l'exemple du volcan Seaca-Tătarca ; (Fig. III-30).

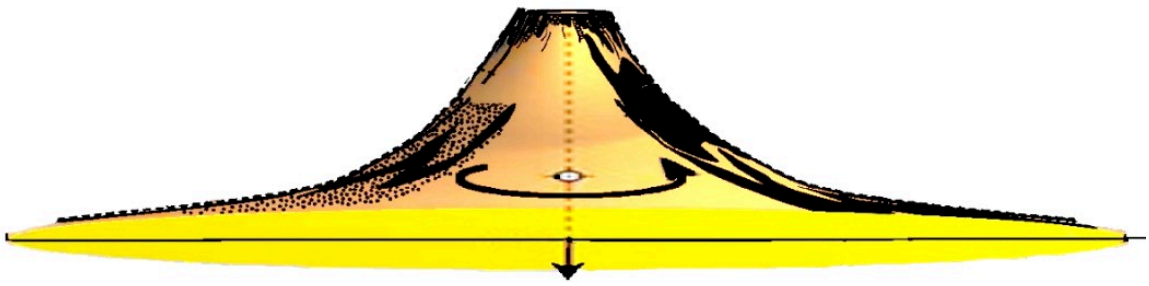


Fig. III-33 : Illustration d'un volcan illustrant sa géométrie de révolution

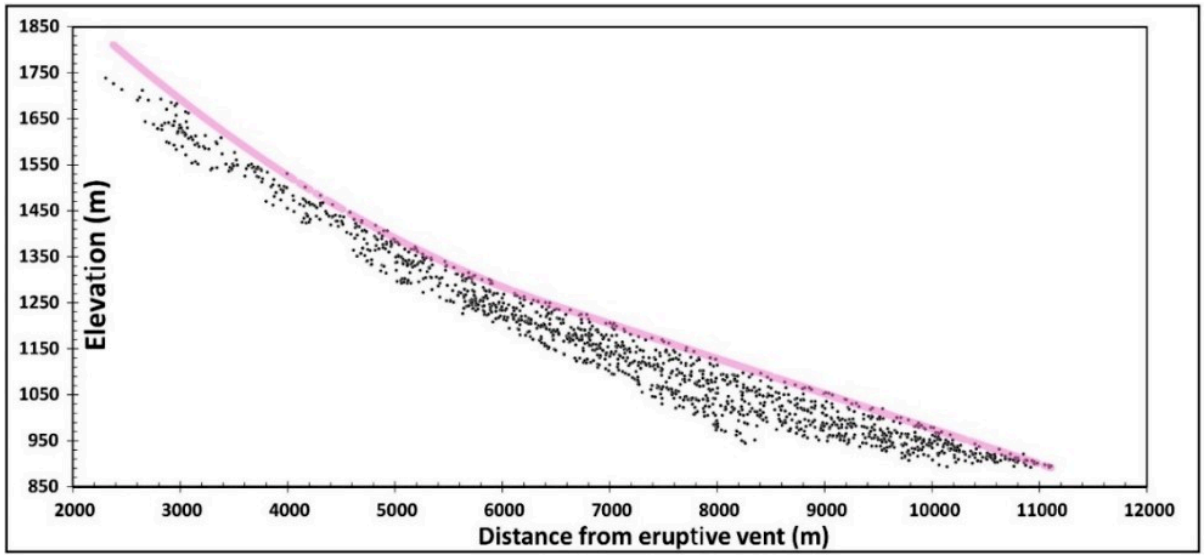


Fig. III-34: Un exemple de génératrice calculée comme étant la courbe la mieux adaptée à la surface paléo-Varghis. Les points noirs sont les points de contrainte choisis comme étant représentatifs de la surface la plus élevée du stade paléo-Varghis. La ligne rose est la génératrice contrainte de dépasser le plus grand nombre de points contraignants.

Rappelons que la fiabilité de l'algorithme ShapeVolc dans la modélisation des volumes démantelés a été préalablement testée par la reconstruction de la paléo-topographie du volcan Saint-Helens effondré lors de l'éruption de mai 1980 (Lahitte et al., in prep.). Pour cela, le MNT actuel du volcan, affecté par l'effondrement de flanc, a été analysé. Les points de contraintes en ont été extraits et ont été utilisés pour modéliser la géométrie complète de l'édifice antérieurement à l'effondrement. L'altitude du modèle du volcan reconstruit ne diffère du MNT précédent avant la destruction de 1980 que de seulement 11 m, et le volume effondré calculé à partir du modèle, ne diffère du volume réel que de 0.7% (Lahitte et al., in prep.).
Ainsi, sur cette base et vue la large application de cet algorithme dans divers environnements géologiques, nous l'avons trouvé adéquat pour les reconstructions numériques des volcans de la chaîne des Carpates.

De plus, contrairement à la version précédente (Lahitte et al., 2012; Germa et al., 2015), d'importantes améliorations ont permis de prendre en compte le second ordre de grandeur de la surface volcanique, laquelle n'est que rarement une surface « mathématique parfaite » (Fig. III-35). En effet, si la majeure partie du volcan peut être définie par une surface de révolution (premier ordre), la complexité de l'histoire de sa construction introduit une certaine hétérogénéité dans cette représentation mathématique idéalisée. Ainsi, la capacité de ShapeVolc à prendre en compte la complexité volcanique de la surface au second ordre est cruciale dans nos reconstructions pour calculer des volumes justes et asymptotiquement réalistes. Dès lors, la prise en compte du second ordre a été d'ajuster localement la surface pour trouver l'altitude de chaque cellule du modèle reconstruit en utilisant uniquement des CPs localisés près de cette cellule de recherche et sélectionnés par des critères classiques (typiquement les 20 CPs les plus proches, dans chacun des huit secteurs angulaires de 45 ° ;

Fig. III-35). Cette étape fastidieuse (cas des grands volcans avec près de 120000 points d'altitude à modéliser) nous permet à la fois de proposer le PEVS le plus haut et de prendre en compte les irrégularités de la surface telles que les variations d'altitude locales et les petits détails de la structure volcanique (présence de rugosité, de cônes ou dômes parasites et / ou adventifs, comme dans le cas du sommet de Tarvez au volcan Seaca-Tătarca ; Fig. III-29). En conséquence, la forme volcanique quasi originale obtenue est généralement simplifiée sous la forme d'une courbe unique (le profil moyen appelé ci-après génératrice) tournant autour d'un axe (la ligne droite qui définit la position du sommet).

Ainsi donc, dans le but de prendre en considération la complexité et l'irrégularité de ces surfaces volcaniques, la modélisation de chaque édifice du segment CGH a été effectuée en deux étapes par l'algorithme ShapeVolc (voir chapitre V pour plus de détail).

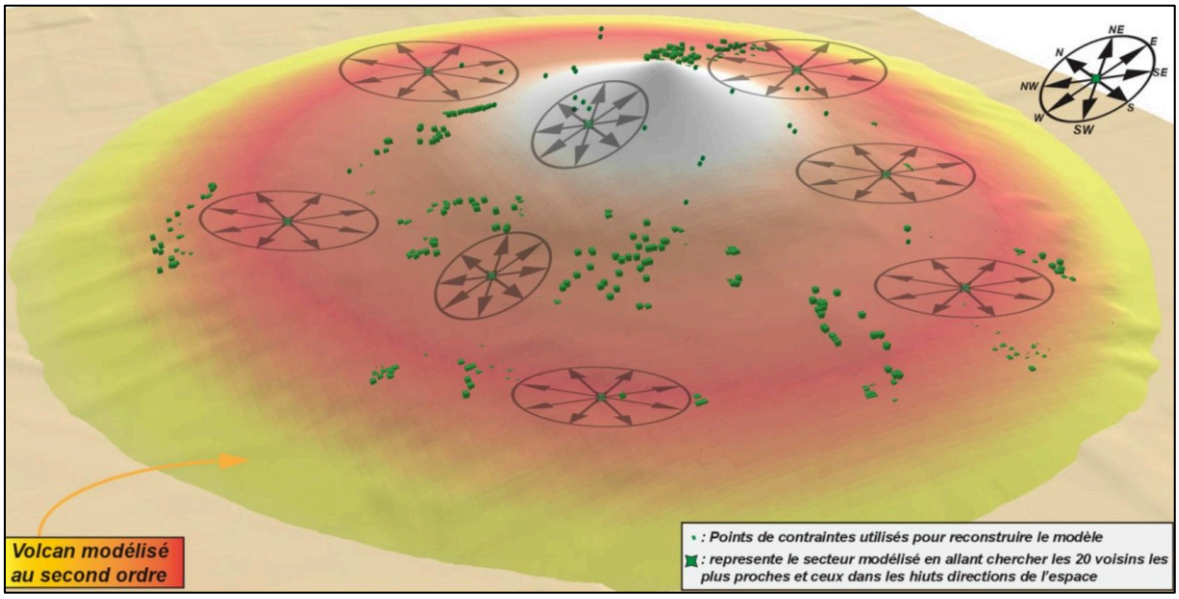


Fig. III-35 : Exemple d'illustration du protocole de modélisation de volcan au second ordre (Cas du volcan Ciumani au niveau de Gurghiu)

Cependant, ce type de modélisation ne prend pas en compte l'excentricité du volcan qui est une caractéristique commune aux édifices volcaniques (Grosse et al., 2012, 2014; Favalli et al., 2014; Grosse and Kervyn, 2018). Pour souligner l'importance de la prise en compte de l'excentricité des volcans dans nos reconstructions, nous avons comparés différents modèles obtenus avec et sans paramètres d'excentricité.

L'exemple choisi du volcan Seaca-Tătarca découle de sa régularité, mais aussi de sa forme elliptique marquée (Fig. III-36A) et a permis d'établir une bonne corrélation avec les formes elliptique montrant une assez faible dispersion comparée à la forme circulaire.

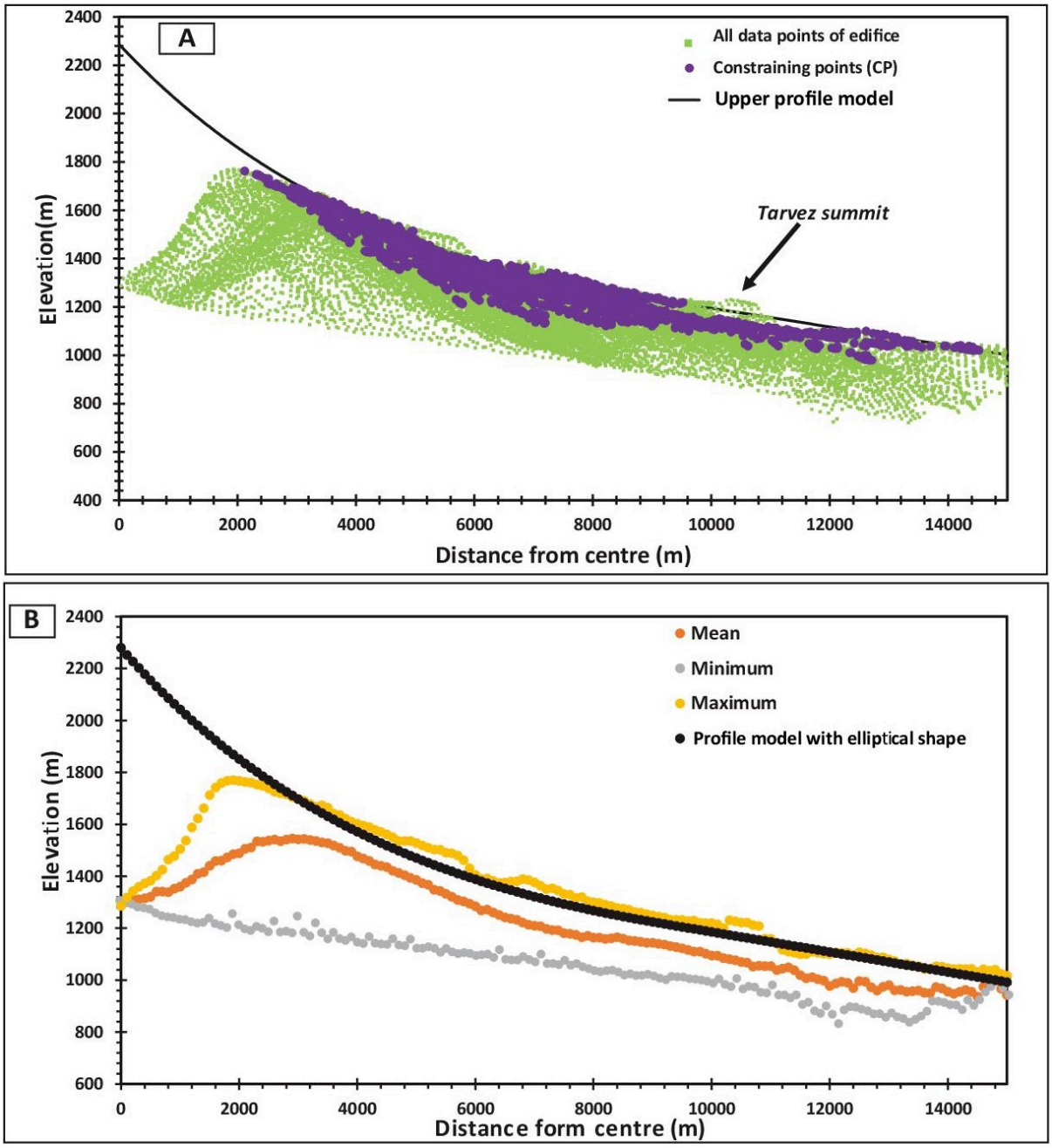


Fig. III-36 : Modelling of the best fitting surface with all relevant parameters, example of Seaca-Tătarca volcano: A) Elevation versus distance to centre diagram, green dots project the whole volcano surface, purple dots are CPs and black dots are the best model profile. B) Projection of mean (orange), max (yellow) and min (grey) elevation of the whole volcano surface, after a summarization by a 100m-long window. Note how the best model profile (black dot) fit well with the upper surface (yellow dots; Dibacto et al., 2020).

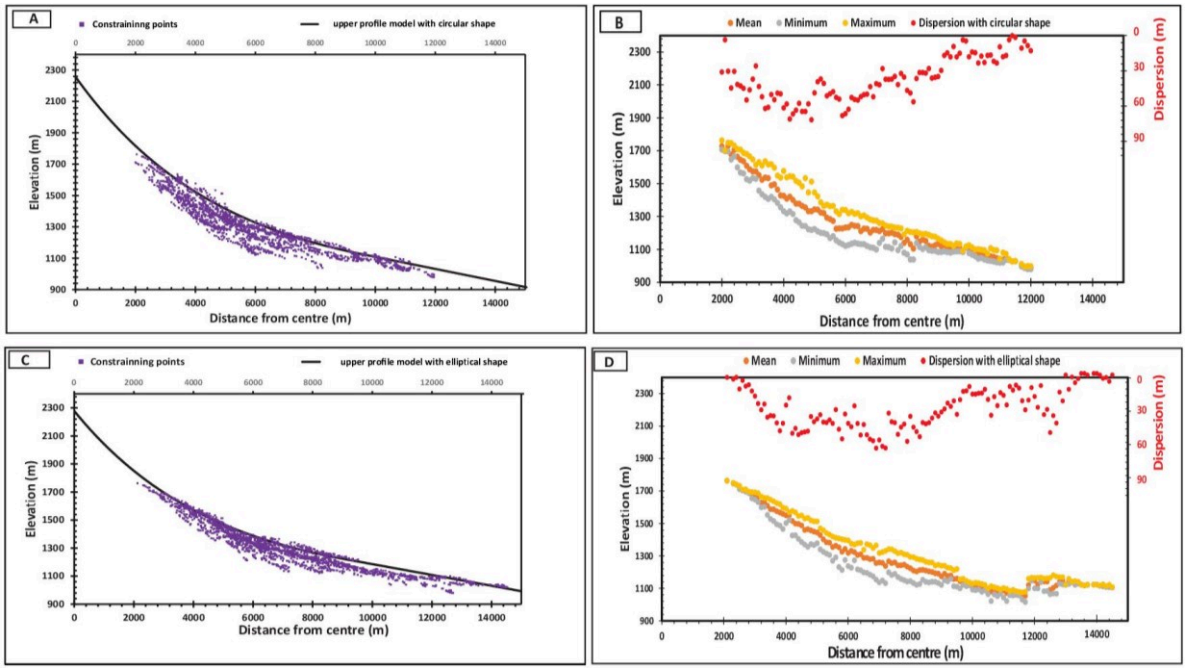


Fig. III-37 : Modelling of the best fitting surface with all relevant parameters, example of Seaca-Tătarca volcano: A) CPs projection from the best eruptive centre position without consideration of the eccentricity parameters. B) Projection of CPs elevation only in case of no computation of eccentricity parameters: yellow, orange and grey are the max, mean and min elevation, red dots show the range of CPs elevation. C) Same as A) in case of additional adjustment of eccentricity parameters. D) Same as B) in case of computation of eccentricity parameters (Dibacto et al.,).

La Fig. III-37A montre la projection des points de contraintes (CP) après avoir trouvé les meilleurs paramètres mais sans tenir compte des paramètres d'excentricité, ce qui équivaut basiquement à effectuer un simple graphe altitude en fonction de la distance du centre éruptif. La Fig. III-37C quant à elle affiche les mêmes CP mais avec un ajustement supplémentaire des paramètres d'excentricité (avec des courbes de niveau elliptiques).

La comparaison des deux modèles révèle que le modèle généré uniquement en considérant la forme circulaire présente une dispersion plus grande que celle obtenue en considérant les paramètres d'excentricité (points violets sur les Fig. III-37A et Fig. III-37C), c'est-à-dire la plage d'altitude des CP à une distance donnée, affichée par l'écart entre les points gris (représentant l'altitude minimale des CP) et jaunes (altitude maximale de CP) sur la Fig. III-37B et Fig. III-37D, est significativement réduit lorsque l'excentricité est ajustée.
Numériquement, la dispersion moyenne de l'altitude des CP (par rapport à celles du meilleur profil) diminue de 37 m à 28 m si l'on considère l'excentricité. Dans le modèle de forme elliptique, on remarque le bon ajustement entre le profil modélisé (points noirs sur la Fig. III-37D) et la surface la plus haute du volcan (points jaunes sur la Fig. III-37D).

Ainsi, pour tous les volcans de CGH étudiés et modélisés via cet algorithme, nous avons appliqué le même protocole (géométrie elliptique et ajustement au second ordre) ce qui a permis le meilleur ajustement possible. De plus, comme mentionné au chapitre I, certains volcans de

la partie axiale (Gurghiu et North Harghita) se sont construits sur une paléo-topographie à pendage ouest qui a influencé la distribution asymétrique des formations volcanoclastiques du faciès médial (Szakács and Seghedi, 1995) et, en outre, ont subi une propagation unidirectionnelle conférent à ces volcans impactés, un caractère asymétrique (exemple du volcan Seaca-Tătarca (Fig. III-36) .

Chacun des modèles reconstruits au cours de cette étude est associé à une incertitude respective (σZ_{SV}) calculée comme étant l'écart type de la différence (Δ_{ZP}) entre l'altitude des points de contrainte (Z_{CP}) et l'altitude de celle modélisé (Z_{SV}).

$$\Delta_{ZP} = Z_{SV} - Z_{CP} \qquad (Eq_5)$$

Cette valeur peut être considérée comme une bonne estimation de l'incertitude affectant le model topographique à proximité des points de contraintes. Ainsi, lors des reconstructions numériques des surfaces volcaniques, nous calculons la différence entre l'altitude des points de contraintes et celle du model. L'écart-type de cette différence est alors utilisé dans nos reconstructions comme l'incertitude du modèle ($\sigma\Delta ZSV$). Sur cette base donc, un édifice présentant une bonne régularité de forme (donc fidèlement ajusté par la génératrice) aura une incertitude moindre qu'un édifice au profil moyen irrégulier.

III. 2.2.4 Quantification des volumes construits et érodés

Une fois les reconstructions numériques de volcans effectuées, l'estimation du volume des volcans nécessite de connaître la surface de base avant le début de sa construction (la surface de base dite anté ou pré-volcanique, SBPV). Dès lors, les comparaisons entre la surface de base anté-volcanique, les modèles de volcan reconstruits et le MNT actuel (Fig. III-38) permettent de calculer des volumes construits (V_C) ou érodés (V_E).

Ces volumes V_C et V_E sont calculés en intégrant sur la surface totale de l'édifice le dénivelé entre la surface supérieure et la surface inférieure. Pour le volume de construction par exemple, la différence considérée (ΔZ_C) se situe entre la surface modélisée via ShapeVolc (Z_{SV}) et la surface de base pré-volcanique (Z_{SBPV}) (Fig. III-38) :

$$\Delta Z_C = Z_{SV} - Z_{SBPV} \qquad (Eq_6)$$

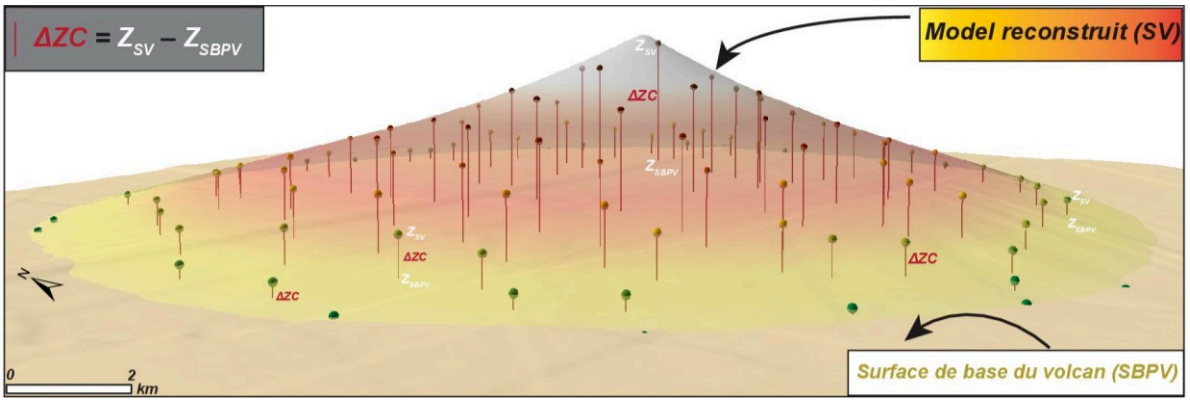


Fig. III-38 : Représentation d'un édifice volcanique (cas du volcan Ciumani du segment volcanique CGH) montrant le protocole de quantification des volumes construits et taux de construction. Avec ΔZC calculé comme la différence d'altitude entre le volcan reconstruit via ShapeVolc et sa surface de base anté-volcanique.

De même, le volume érodé intègre la différence (ΔZ_E) entre la surface modélisée via ShapeVolc (Z_{SV}) et la topographie actuelle (MNT) (Z_{MNT}) (Fig. III-39) :

$$\Delta Z_E = Z_{SV} - Z_{MNT} \qquad (Eq_7)$$

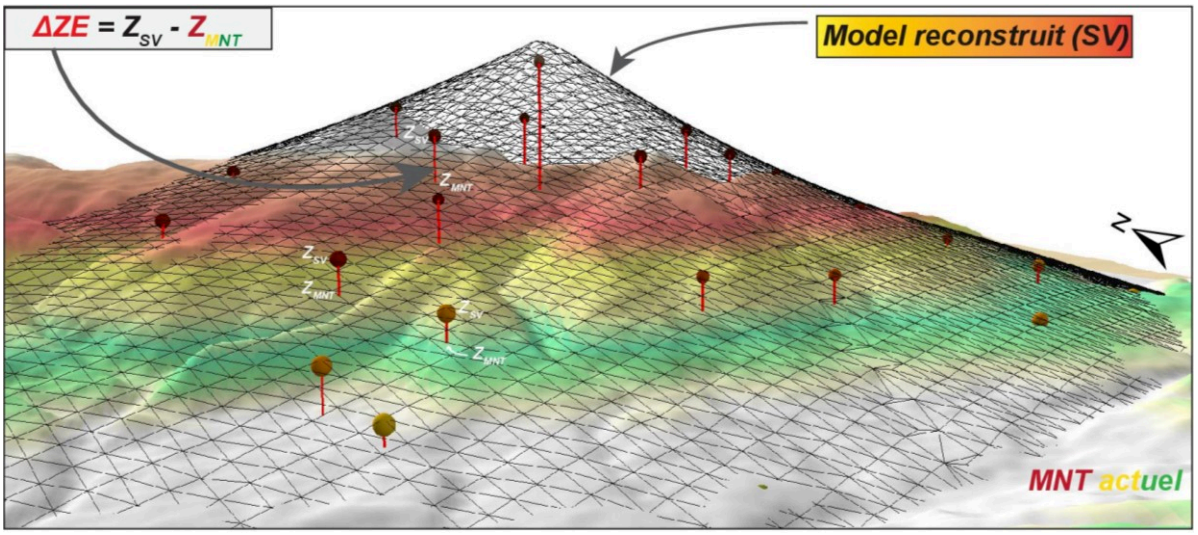


Fig. III-39: Représentation d'un édifice volcanique (cas du volcan Ciumani du segment volcanique CGH) montrant le protocole de quantification des volumes érodés et taux d'érosion (volume actuel représenté par le MNT et le volume original modélisé via ShapeVolc est représenté par la grille triangulaire)

A ce calcul de volumes (volumes de construction et d'érosion), les incertitudes associées au (σV_C et σV_E, respectivement) sont calculées en tant qu'intégration sur la surface totale du volcan à partir des incertitudes des différences considérées (respectivement $\sigma\Delta Z_C$ et $\sigma\Delta Z_E$), chacune des incertitudes étant définie comme suit :

$$\sigma\Delta Z_X = \text{sqrt}\,(\sigma Z_{SV_i}{}^2 + \sigma Z_{Surf_inf}{}^2) \qquad (Eq_8)$$

Où σZ_{SV_i} est l'incertitude de la surface volcanique modélisée du $i^{ème}$ volcan et σZ_{Surf_inf} est l'incertitude de la surface inférieure considérée. Dans le calcul de l'incertitude du volume érodé ($\sigma\Delta Z_E$), σZ_{Surf_inf} est simplement l'incertitude de la topographie actuelle donc l'incertitude du

MNT. En revanche, dans le cas de volumes construits ($\sigma\Delta Z_C$), les valeurs σZ_{Surf_inf} représentent les incertitudes de la surface basale au-dessus de laquelle chaque cellule du volcan modélisé est située. Cette incertitude est donc en général l'incertitude locale de la surface de base ($\sigma Z_{Surf_inf} = \sigma z_{SBPV}$). Cependant, si un secteur de l'édifice est construit sur les flancs externe d'un autre plus ancien, c'est alors l'incertitude de la surface supérieure modélisée pour cet autre volcan qui sera utilisée ($\sigma Z_{Surf_inf} = \sigma Z_{SV_j}$).

À partir de ces quantifications de volume, nous avons calculé ensuite le degré de dénudation (D_{Den} en %) considéré ici comme un paramètre qui quantifie la proportion de volcans perdus lors des processus de démantèlement (Kober et al., 2007; Riquelme et al., 2008; Karátson et al., 2012). Ce taux est défini comme étant le rapport entre le volume érodé (V_E) sur le volume construit (V_C) :

$$D_{Den} = V_E / V_C \qquad (Eq_{9a})$$

$$\text{où puis que } V_E = V_C - V_{actuel}$$

$$D_{Den} = (V_C - V_{actuel})/ V_C = 1 – (V_{actuel} / V_C) \qquad (Eq_{9b})$$

La combinaison des volumes (V_C et V_E) et des données géochronologiques permet de contraindre le dynamisme des processus constructifs et destructifs en calculant les taux de construction (T_C en km^3 / Ma) et les taux d'érosion (T_E en m / Ma) pour chaque volcan.

Les taux de construction (T_C) sont calculés comme étant le rapport entre le volume de construction (V_C) et la durée de vie ou d'activité (Δt) du volcan donné avec :

$$\Delta t = Age_{Début} – Age_{Fin} \quad (Eq_{10})$$

$$T_C = V_C / \Delta t \quad (Eq_{11})$$

L'incertitude associée au taux de construction σT_C (en m / Ma) quant à elle est calculée comme suit :

$$\sigma T_C = T_C \times \text{sqrt}\left((\sigma V_C / V_C)^2 + (\sigma\Delta t / \Delta t)^2\right) \qquad (Eq_{12})$$

Où $\sigma\Delta t$ est l'incertitude associée à la durée de l'activité volcanique définie par :

$$\sigma\Delta t = \text{sqrt}\left(\sigma Age_{Début}^2 + \sigma Age_{Fin}^2\right) \qquad (Eq_{13})$$

Les deux relations (Eq_{12}) et (Eq_{13}) nous montrent clairement que :

— L'incertitude relative associée à la durée de l'activité volcanique augmente quand la durée de construction diminue.

— Pour les vieux volcans construit relativement rapidement (durée de vie assez courte), le taux de construction calculé sera moins bien contraint.

De la même manière, pour l'érosion se produisant depuis la fin de l'activité, c'est-à-dire dans un intervalle de temps correspondant à l'âge du volcan, le taux d'érosion (T_E) est calculé comme étant le rapport entre la perte moyenne d'altitude du volcan ($\Delta Z_{E_moyenne)}$ et la fin de l'activité volcanique (Age_{Fin} ; défini par le plus jeune âge K-Ar obtenu) :

$$T_E = \Delta Z_{E_moyenne} / Age_{Fin} \quad (\text{en m / Ma}) \qquad (Eq_{14})$$

$$\text{Avec :} \quad \Delta Z_{E_moyenne} = V_E / \text{Surface} \quad (\text{en m}) \qquad (Eq_{15})$$

Comme pour l'incertitude du taux de construction (σT_C), l'incertitude associée (σT_E ; en m / Ma) au taux d'érosion est la suivante :

$$\sigma_{TE} = T_E \times \text{sqrt}\left((\sigma V_E / V_E)^2 + (\sigma Age_{Fin} / Age_{Fin})^2\right) \qquad (Eq_{16})$$

Ici, la borne finale de la durée étant le temps présent, son incertitude est nulle.

Table des figures chapitre III :

FIG. III-1: COMPARAISON DES RESULTATS K-AR SUR ROCHE TOTALE ET (U-TH)/HE SUR ZIRCON DES DOMES DE LAVES DU COMPLEXES VOLCANIQUE DE CIOMADUL ; CES RESULTATS MONTRENT UNE LARGE DIFFERENCE DE RESULTAT ENTRE LES DEUX METHODES AVEC DES DATATIONS K-AR ASSEZ MAL CONTRAINTES (BARRES D'ERREURS TRES GRANDES) CONTRAIREMENT AUX DATATIONS (U-TH)/HE SUR ZIRCON. 105
FIG. III-2: LES DIFFERENTES METHODES DE DATATIONS APPLIQUEES AUX SCIENCES DE LA TERRE 106
FIG. III-3 :: RADIOACTIVE DECAY OF ^{40}K INTO ^{40}AR AND ^{40}CA. 108
FIG. III-4 : ETAPES MAJEURES DE PREPARATION D'ECHANTILLONS POUR DES DATATIONS K-AR 110
FIG. III-5: COURBE DE CALIBRATION STANDARD 112
FIG. III-6: SHEMA LIGNE DE MESURE (LAHITTE P., 2000) 114
FIG. III-7 : SCHEMA D'UN SPECTROMETRE DE MASSE (HTTP://ACCES.ENS-LYON.FR/ACCES/THEMATIQUES/LIMITES/TEMPS/DATATION-ISOTOPIQUE/COMPRENDRE/LE-SPECTROMETRE-DE-MASSE) 114
FIG. III-8 : PRINCIPLE OF THE K-AR DATING 116
FIG. III-9 : ANALYSE OF THE ORIGIN OF THE BIASING OF WHOLE-ROCK AGE BY PRESENCE OF PHENOCRYSTS. AMP=AMPHIBOLE; PLAG. = PLAGIOCLASE; BIOT. = BIOTITE AND THE SMALL WHITE GRIDS REPRESENT AGE OF GROUNDMASS. (SAMPLE 15CIO01; DEALUL CETĂȚII). 120
FIG. III-10: LAME MINCE ; A) HARAMUL MIC (16CIO01) ET B) CIOMADUL MARE (16CIO04) ; VOIR DETAIL DANS CHAPITRE IV 121
FIG. III-11: A) MNT DU SEGMENT VOLCANIQUE DE CGH (30 M DE RESOLUTION MONTRANT LES DIFFERENTS VOLCANS). B) MNT AVEC L'IDENTIFICATION DES LIMITES DE CHAQUE VOLCAN DU SEGMENT ; CHAQUE COULEUR CORRESPONDANT A L'EXTENSION D'UN EDIFICE VOLCANIQUE IDENTIFIE LE LONG DU SEGMENT. 129
FIG. III-12 : SCHEMA ILLUSTRANT UNE VUE EN PLAN D'UN EDIFICE VOLCANIQUE REPRESENTE PAR LA STRUCTURE VOLCANIQUE PRINCIPALE (GRIS CLAIR) ET LA LIMITE DU VOLCAN (TRAIT ROUGE) ; LES POINTS JAUNES REPRESENTENT LES ELEMENTS MARQUEURS DE LA SURFACE DE BASE DU VOLCAN (SURFACE SUR LAQUELLE LE VOLCAN S'EST CONSTRUIT) 130
FIG. III-13 : SCHEMA ILLUSTRANT LES DIFFERENTES POSSIBILITES DE DEFINITION DE SURFACE DE BASE POUR UN MEME VOLCAN (DIBACTO ET AL.,) 131
FIG. III- 14 : A) ILLUSTRATION DU PROTOCOLE DE SELECTION ET DE DEFINITION DE L'EXTRACTION DES ELEMENTS STRUCTURAUX (VOLCANOCLASTIQUES) REPRESENTANT LES TEMONS DE LA SURFACE DE BASE DES VOLCANS DE CGH ; B) REPRESENTE LE ZOOM D'UN DES SECTEURS LOCALISE AU NIVEAU DU BASSIN DE TRANSYLVANIE AVEC LEUR FORME CONVEXE CARACTERISTIQUE (AB ET CD) 133
FIG. III- 15: ILLUSTRATION D'UN VOLCAN AVEC DES SECTEURS EN ROSES REPRESENTATIF DE LA SURFACE POST-ERUPTIVE (MODIFIEE D'APRES HAMPTON AND COLE, 2009) 134
FIG. III-16: CARTE DES PENTES 135
FIG. III-17: A) TOPOGRAPHIC POSITION INDEX ESTIMATION MODIFIED FROM (WEISS, 2001); B) CLASSIFYING THE LANDSCAPE USING 2 TPI GRIDS AT DIFFERENT SCALES (150 M AND 1050M) ACC. TO (JENNESS, 2006) 137
FIG. III-18 : CARTE DE TPI AU NIVEAU DU SEGMENT CGH AVEC UNE ECHELLE FINE (150 M) ; TPI VARIANT DE -4.00542 ET 3.64345 138
FIG. III-19 : CARTE DE TPI AU NIVEAU DU SEGMENT CGH AVEC UNE ECHELLE D'OBSERVATION PLUS LARGE (1050 M). TPI VARAIANT ENTRE -3.05304 A 3.24244) 138

FIG. III-20: MAP OF FINAL TPI RESULTING FOR THE COMBINATION OF TPI AT 150 M AND 1050 M THRESHOLDED BY STANDARD DEVIATION UNITS INTO 10 SLOPE POSITION CLASSES WHERE 3 CLASSES ARE SELECTED (SEE THE RED TEXT ON THE LEGEND) 139
FIG. III-21 : CALCULATION OF POSITIVE (A) AND NEGATIVE (B) OPENNESS ALONG TWO PROFILES (ALONG EAST (A 90, B90) AND WEST (A270, B270) DIRECTION) WITHIN A GIVEN RADIAL DISTANCE (R) IN TWO DIFFERENT TOPOGRAPHIC SITUATIONS (MODIFIED AFTER (DONEUS, 2013)) 140
FIG. III-22 : MAP OF OPENNESS ALONG CGH VOLCANIC RANGE 141
FIG. III-23: A) MAP OF SELECTED AREAS AFTER COMBINING ALL MORPHOMETRIC PARAMETERS (SLOPE, OPENNESS AND TPI) TO EXTRACTS NON-ERODED AREAS (PURPLE) B) ZOOM ON A) AROUND THE AXIAL PART OF THE CGH RANGE. 143
FIG. III-24 : A) CONVERSION OF THE EXTRACTED AREAS OF FIG. III-12A INTO POINTS FILES WITH XYZ COORDINATES (~20 MILLION POINTS). B) ZOOM AROUND THE AXIAL PART ON SEACA TATARCA VOLCANO) 143
FIG. III-25 : A) WATERSHED DELIMITATION ALONG THE CGH SEGMENT; THE COLOURED WATERSHED REPRESENTS THE USEFUL WATERSHEDS (LOCATED AT THE LEVEL OF THE IDENTIFIED VOLCANOES AND EACH COLOUR CORRESPONDING TO A UNIQUE VOLCANIC EDIFICE. B) RESULTING CONSTRAINING POINTS FROM THE COMBINATION OF POINTS OF FIG. III-12 AND COLOURED WATERSHEDS ON FIG. III-13 (~ 200 000 POINTS). C) ZOOM TO THE LEVEL OF NORTH HARGHITA 144
FIG. III-26 : A) FINAL DATABASE OF CONSTRAINING POINTS (CPS) OF EACH SINGLE VOLCANIC EDIFICE (~20 000 POINTS). B) ZOOM AROUND THE GURGHIU AREA 145
FIG. III-27 : ILLUSTRATION DES COMPOSANTS PLAGE, SEUIL ET PEPITE (NUGGET) 147
FIG. III-28 : B) EXAMPLE OF A SEMI-VARIOGRAM WITH AN EXPONENTIAL MODEL OBTAINED FOR THE PILISCA VOLCANO RECONSTRUCTION. 148
FIG. III-29 : REPRESENTATION DU VOLCAN SEACA-TATARCA AVEC LES POINTS DE CONTRAINTES AINSI QUE BELLE DEPRESSION SOMMITALE 150
FIG. III-30 : EXEMPLE DE GRAPHE ALTITUDE VERSUS DISTANCE MONTRANT LA DIFFERENCE ENTRE UN MODELE RECONSTRUIT PAR KRIGING (COURBE ROUGE) ET CELUI RECONSTRUIT VIA SHAPEVOLC (COURBE VERTE) DANS LE CAS D'UN VOLCAN D'UNE DEPRESSION SOMMITALE PRONONCEE (VOLCAN DE SEACA TATARCA ; FIG. III-29) 150
FIG. III-31 : A) DISTRIBUTION QUASI UNIFORME DES POINTS DE CONTRAINTES LE LONG DU VOLCAN PILISCA (2D). B) VUE EN 3D DE PILISCA AVEC LES POINTS DE CONTRAINTES. 151
FIG. III-32 : L'INTERFACE DU LOGICIEL SHAPEVOLC, DEDIE A LA MODELISATION DES SURFACES VOLCANIQUES (LAHITTE ET AL., IN PREP.) 152
FIG. III-33 : ILLUSTRATION D'UN VOLCAN ILLUSTRANT SA GEOMETRIE DE REVOLUTION 153
FIG. III-34: UN EXEMPLE DE GENERATRICE CALCULEE COMME ETANT LA COURBE LA MIEUX ADAPTEE A LA SURFACE PALEO-VARGHIS. LES POINTS NOIRS SONT LES POINTS DE CONTRAINTE CHOISIS COMME ETANT REPRESENTATIFS DE LA SURFACE LA PLUS ELEVEE DU STADE PALEO-VARGHIS. LA LIGNE ROSE EST LA GENERATRICE CONTRAINTE DE DEPASSER LE PLUS GRAND NOMBRE DE POINTS CONTRAIGNANTS. 154
FIG. III-35 : EXEMPLE D'ILLUSTRATION DU PROTOCOLE DE MODELISATION DE VOLCAN AU SECOND ORDRE (CAS DU VOLCAN CIUMANI AU NIVEAU DE GURGHIU) 155
FIG. III-36 : MODELLING OF THE BEST FITTING SURFACE WITH ALL RELEVANT PARAMETERS, EXAMPLE OF SEACA-TĂTARCA VOLCANO: A) ELEVATION VERSUS DISTANCE TO CENTRE DIAGRAM, GREEN DOTS PROJECT THE

WHOLE VOLCANO SURFACE, PURPLE DOTS ARE CPS AND BLACK DOTS ARE THE BEST MODEL PROFILE. B) PROJECTION OF MEAN (ORANGE), MAX (YELLOW) AND MIN (GREY) ELEVATION OF THE WHOLE VOLCANO SURFACE, AFTER A SUMMARIZATION BY A 100M-LONG WINDOW. NOTE HOW THE BEST MODEL PROFILE (BLACK DOT) FIT WELL WITH THE UPPER SURFACE (YELLOW DOTS; DIBACTO ET AL.,)..... 156

FIG. III-37 : MODELLING OF THE BEST FITTING SURFACE WITH ALL RELEVANT PARAMETERS, EXAMPLE OF SEACA-TĂTARCA VOLCANO: A) CPS PROJECTION FROM THE BEST ERUPTIVE CENTRE POSITION WITHOUT CONSIDERATION OF THE ECCENTRICITY PARAMETERS. B) PROJECTION OF CPS ELEVATION ONLY IN CASE OF NO COMPUTATION OF ECCENTRICITY PARAMETERS: YELLOW, ORANGE AND GREY ARE THE MAX, MEAN AND MIN ELEVATION, RED DOTS SHOW THE RANGE OF CPS ELEVATION. C) SAME AS A) IN CASE OF ADDITIONAL ADJUSTMENT OF ECCENTRICITY PARAMETERS. D) SAME AS B) IN CASE OF COMPUTATION OF ECCENTRICITY PARAMETERS (DIBACTO ET AL.,)..... 157

FIG. III-38 : REPRESENTATION D'UN EDIFICE VOLCANIQUE (CAS DU VOLCAN CIUMANI DU SEGMENT VOLCANIQUE CGH) MONTRANT LE PROTOCOLE DE QUANTIFICATION DES VOLUMES CONSTRUITS ET TAUX DE CONSTRUCTION. AVEC ΔZC CALCULE COMME LA DIFFERENCE D'ALTITUDE ENTRE LE VOLCAN RECONSTRUIT VIA SHAPEVOLC ET SA SURFACE DE BASE ANTE-VOLCANIQUE..... 159

FIG. III-39: REPRESENTATION D'UN EDIFICE VOLCANIQUE (CAS DU VOLCAN CIUMANI DU SEGMENT VOLCANIQUE CGH) MONTRANT LE PROTOCOLE DE QUANTIFICATION DES VOLUMES ERODES ET TAUX D'EROSION (VOLUME ACTUEL REPRESENTE PAR LE MNT ET LE VOLUME ORIGINAL MODELISE VIA SHAPEVOLC EST REPRESENTE PAR LA GRILLE TRIANGULAIRE)..... 159

Tables chapitre III :

TABLE. III-1 : COMPARAISON AGES K-AR ROCHES TOTALES ET (U-TH) /HE..... 105

Chapitre IV
Histoire éruptive du plus jeune complexe volcanique des Carpates Pannoniennes : Nouvelles contraintes géochronologiques et géomorphologiques (volcan de Ciomadul)

Fig. IV-1: Artist's vision of the youngest eruptions of Ciomadul that may have been witnessed by Palaeolithic Man. Eruptive activity may potentially reawaken. (Picture credit: Edvárd Takács.)

Dans ce chapitre, présenté sous forme d'articles, nous nous sommes attelés à contraindre l'activité volcanique du complexe de Ciomadul : le plus jeune complexe volcanique de toute la chaîne des Carpates Pannoniennes.

Avant tout effort de datation, le géologue géochronologue doit se poser les questions suivantes :

(1) Quelles sont les phases fiables et les limites d'emploi de la méthode

(2) Quelle signification géologique doit ton donner aux valeurs obtenues

(3) Quelles sont les causes possibles d'âges « anormaux »

Nous avons utilisé au cours de cette étude pour contraindre l'activité volcanique du complexe de Ciomadul, le chronomètre K-Ar. Pour utiliser ce chronomètre, la phase à dater doit remplir au préalable certaines conditions :

— retenir l'argon à des températures géologiques normales, (~100 et 200 °C)

— résister à l'altération hydrothermale et supergène

— contenir suffisamment de potassium (K) pour permettre les déterminations de K et Ar.

IV.1 Présentation des sites échantillonnés

Ce complexe volcanique situé près de l'extrémité SE de la chaîne volcanique de CGH (Fig. IV-2), se compose d'un ensemble de dômes volcaniques, comprenant quelques dômes périphériques (Haramul Mic [16CIO00] au nord, les dômes de Muntele Puturusu [16CIO08] et Bálványos [16CIO06, 16CIO07] au SE) et d'un groupe de dômes central abritant deux cratères (Mohos et Sfanta Ana ; Fig. IV-2). Les dômes de la partie centrale résultent principalement de l'activité effusive d'un magma dacitique à forte viscosité et sont entourés d'une plaine annulaire de dépôts volcanoclastiques. Ils sont aussi couverts localement par les produits des deux éruptions responsables de la formation des deux cratères (Mohos et Sfanta Ana).

Pour des datations, la connaissance des assemblages minéralogiques à l'équilibre, les conditions de pression et de température de formations des minéraux, des échanges chimiques ainsi que la présence ou non de circulations de fluides, permettent de choisir avec soins les parties, les phases minéralogiques à analyser afin de dater pour ce qui nous concerne l'âge du dernier événement thermique (l'âge de l'éruption volcanique). Pour cela, elle nécessite donc une étude texturale et une étude pétrographique précises des roches. Il en ressort que sur la dizaine d'échantillon analysée pour ce complexe volcanique (carrés jaunes sur Fig. IV-2), que les lames minces présentes des caractéristiques qui méritent un travail méticuleux et rigoureux

(Fig. IV-3). Pour des datations K-Ar, les échantillons contenant des zéolites, des xénolithes ou des xénocristaux sont à rejeter (voir méthodologie chapitre III).

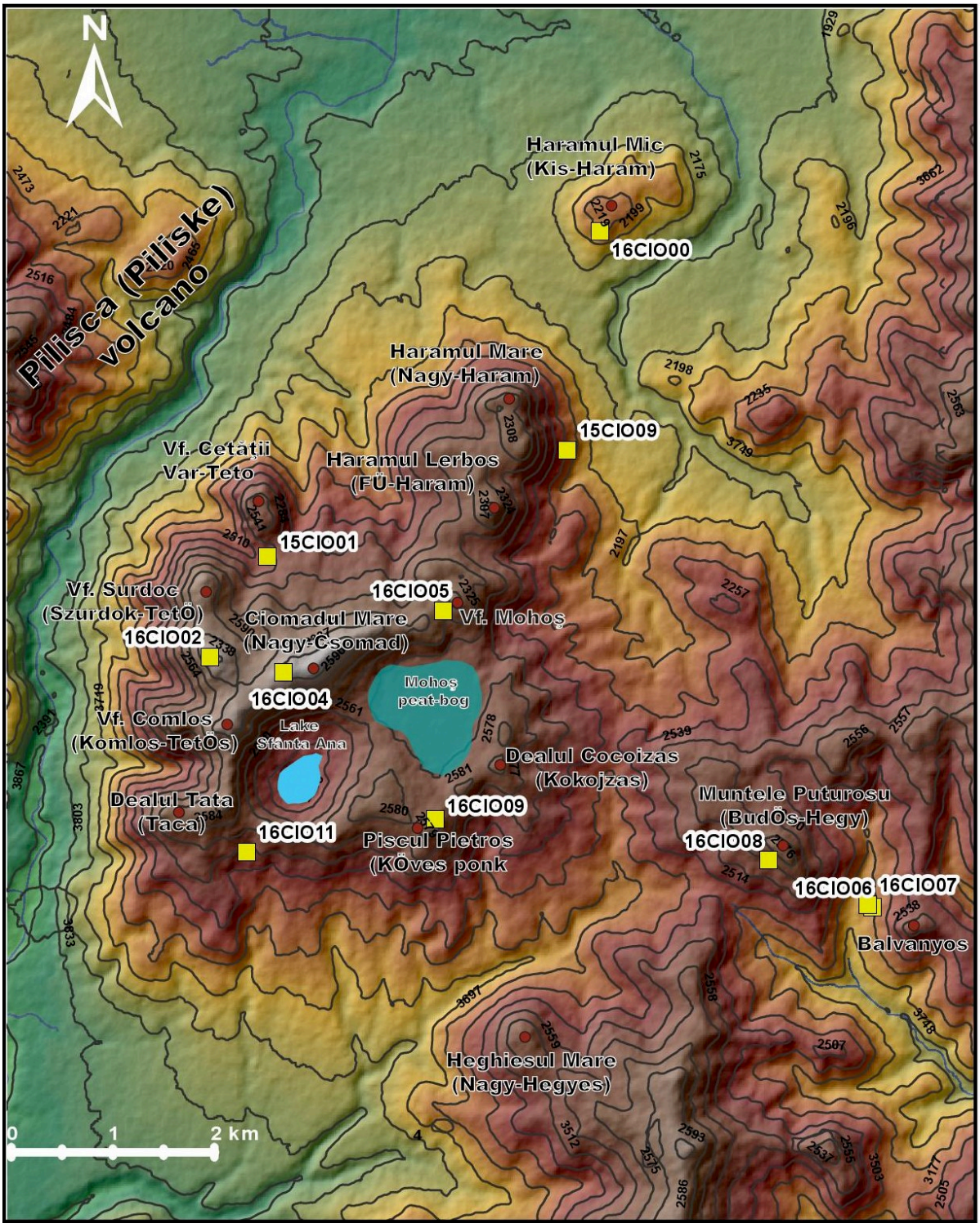


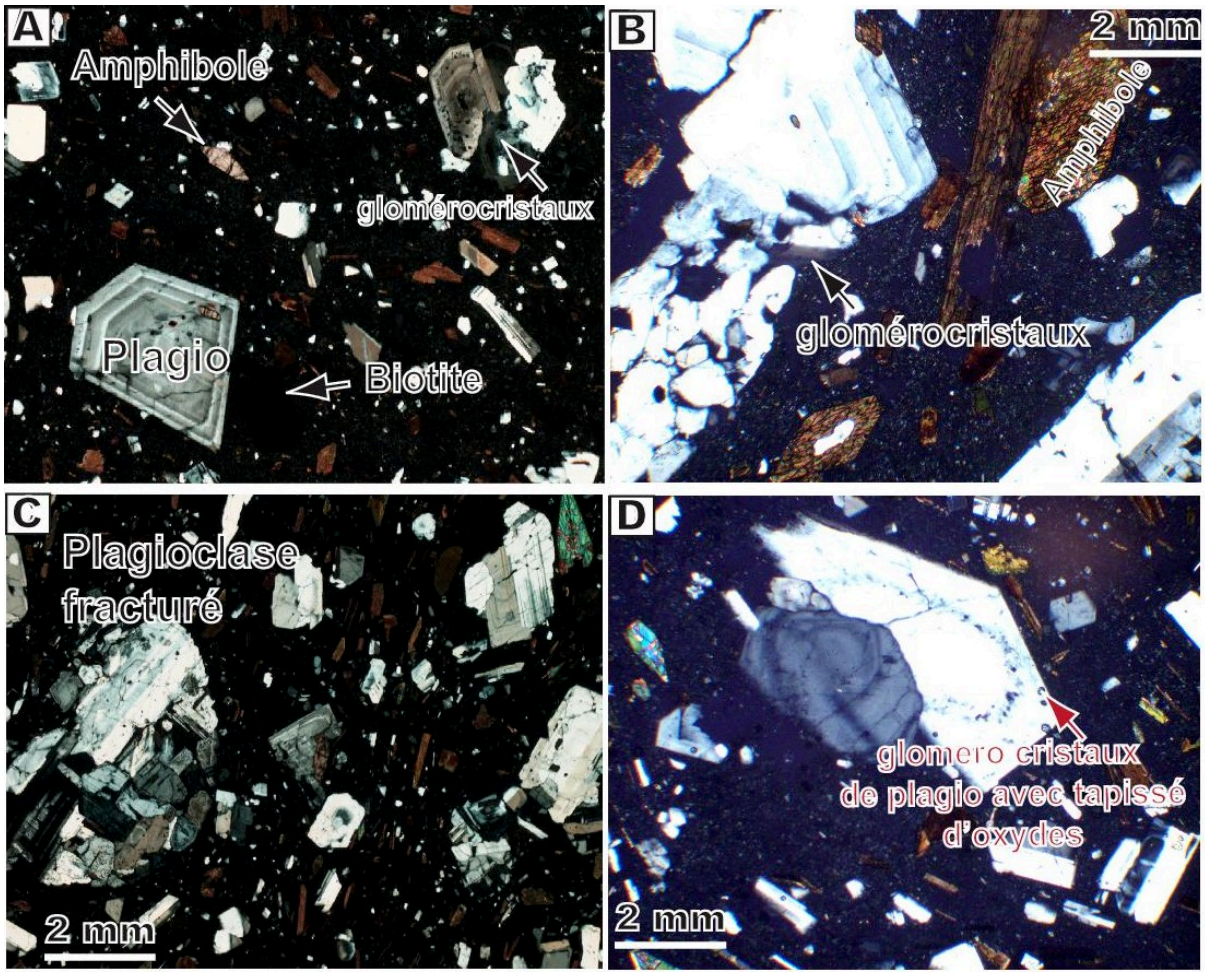
Fig. IV-2 : Complexe volcanique de Ciomadul présentant les différents dômes échantillonnés lors des missions de 2015 et 2016

IV.1.1 Analyse Pétrographique des dômes de lave échantillonnés

Les roches de ce complexe sont des dacites calco-alcalines peu vésiculaires et porphyriques (leur teneur en phénocristaux varie de 19 à 36% en volume ; Table IV-1). Ils se distinguent par leurs textures moyennement porphyriques et un assemblage minéralogique

constitué principalement dans l'ordre d'abondance de plagioclase, amphibole (hornblende), biotite, pyroxène et oxydes (Fig. IV-3). Ils contiennent d'abondants glomérocristaux (des agrégats de minéraux de même nature au sein d'une roche) et une mésostase. La texture de ces dacites est donc microlitique gloméroporphyrique à l'exception des dômes de Vârful Comlos (16CIO02) et Muntele Puturusu (16CIO08) qui présentent une texture microlitique porphyrique (Fig. IV-3I et J).

Les termes « phénocristaux » sont utilisés dans ce chapitre pour des cristaux de taille supérieure à 1 mm, tandis que les « micro phénocristaux » sont dans la gamme de taille de 300–50 µm. Les « microlites » mesurent moins de 50 µm (Fig. IV-3).



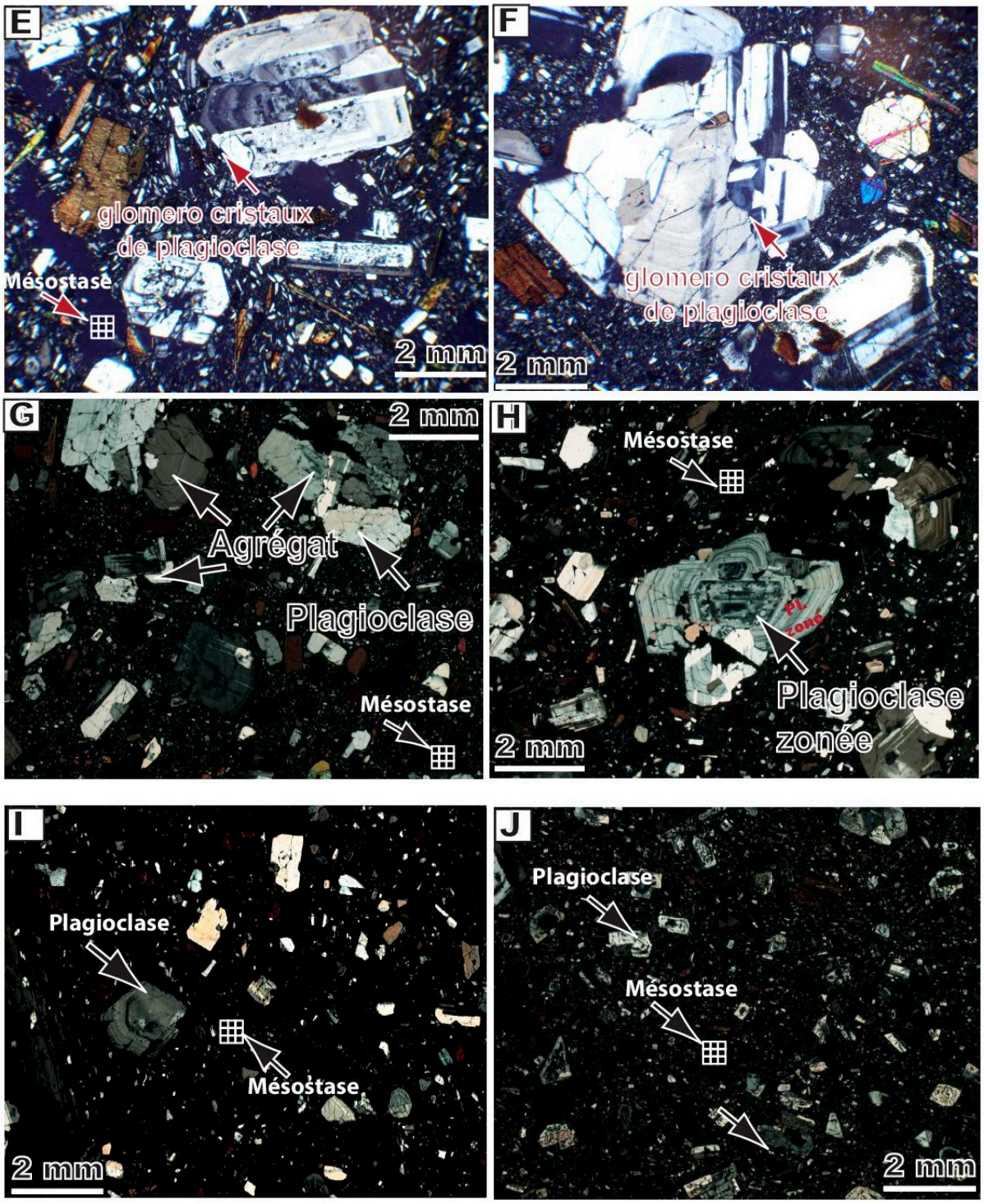


Fig. IV-3: Exemples de lames minces des dômes de lave du complexe volcanique de Ciomadul en lumière polarisée. Les glomérocristaux, principalement composés de phénocristaux de plagioclase et de petites hornblendes. A) 15CIO01 (Dealul Cetății); B) 16CIO00 (Haramul Mic); C)16CIO04 (Ciomadul Mare); D) 16CIO05 (Vf. Mohoș); E) 16CIO07 (Bálványos); F) 15CIO09 (Haramul Mare); G) 16CIO09 (Piscul Pietros); H) 16CIO11 (St. Ana crater rim southern flank); I) 16CIO02 (Vârful Comlos); J) 16CIO08 (Muntele Puturusu). Voir la position géographique des échantillons sur la Fig. IV-2.

Les minéraux présents dans la quasi-totalité de ces échantillons sont automorphes et présentent parfois des cœurs corrodés, de nombreuses inclusions et le mécanisme de zoning est observé dans toutes les lames minces. Ce type de texture est très souvent classique dans les roches calco-alcalines intermédiaires et interprétée comme le résultat de mélange de magma

(Demant, 1992). Une autre caractéristique de ces laves est de présenter préférentiellement des agrégats pluri-cristallins de plagioclase mais aussi d'amphibole (1 à 4 mm) qui donnent à la roche une texture glomératoporphyrique. De tels agrégats de minéraux peuvent résulter soit d'une cristallisation aux parois de la chambre magmatique soit d'un mélange de magma. Ces agrégats pluri-cristallins sont le plus souvent la cause des âges anormaux observés car, ils sont porteurs d'excès d'argon (cf. Chapitre III). C'est pour cela que, de telles phases sont à exclure si l'on veut déterminer l'âge de l'éruption.

— Les plagioclases

Ce sont les minéraux les plus abondants dans nos échantillons (Table IV-1), aussi bien en phénocristaux qu'en microcristaux noyés dans la mésostase (Table IV-1). Les premiers ont une taille pouvant atteindre 1 à 4 mm, tandis que les microlites ont des dimensions de l'ordre du µm. Les phénocristaux de plagioclases montrent de nombreux effets de déformation par endroits (plagioclases morcelés, craquelés), et sont le plus souvent corrodés (Fig. IV-3). On y observe aussi des phénocristaux de plagioclase résorbés "nuageux" (i.e., plagioclases tapissés de taches noires sur leur pourtour; Fig. IV-3A , D, E, F), qui présentent le mécanisme de zoning avec des cœurs beaucoup plus calciques et des auréoles externes à composition plus sodiques (Kiss et al., 2014) ce qui indique qu'il s'agit de "xénocristaux" provenant d'un magma plus basique. Dans la quasi-totalité des roches de ce secteur, les deux variétés de plagioclase à savoir les phénocristaux pluri-centimétriques et les microlites qui tapissent la mésostase (Fig. IV-3) traduirait également deux sources différentes car, la présence d'un tel agencement minéralogique représente le plus souvent une interaction de deux magmas de composition différente. A l'exception des échantillons 16CIO02 et 16CIO08 (Fig. IV-3I, J), on observe dans tous ces échantillons des agrégats de grands phénocristaux de plagioclase (> 1 mm) le plus souvent zonés. Ainsi, pour des datations, de tels minéraux sont à proscrire car pourraient biaiser significativement nos résultats (porteurs d'excès d'argon dans le système).

— Biotites, amphiboles et oxydes

Les minéraux mafiques les plus représentés sont les amphiboles (5 à 10%) et les biotite (1 à 4%) (Table IV-1).

Les biotites montrent fréquemment une extinction roulante, et, sont parfois corrodées par des plagioclases (Fig. IV-3B). Elles contiennent parfois des inclusions de minéraux accessoires (apatite, zircon et minéraux opaques). Ces minéraux accessoires (opaques) sont le plus souvent dans de telle conditions produites partiellement par altération secondaire.

Les amphiboles se présentent sous forme de cristaux le plus souvent isolés ou au sein de cumulats à biotite et plagioclase. Ces amphiboles sont généralement fracturés et présentent

des clivages doubles sur les sections basales (Fig. IV-3B). Les tailles varient ici du micromètre pour des microlites qui tapissent la mésostase aux tailles pouvant atteindre jusqu'à 3 mm (phénocristaux) (Fig. IV-3B). Les amphiboles dans ces échantillons présentent des compositions qui les situent dans le champ des amphiboles calciques (pargasite-hornblende ; Kiss et al. (2014)). Tous ces échantillons ont des amphiboles de taille semblable à l'exception de l'échantillon 16CIO00 du dôme Haramul Mic isolé dans la partie nord du complexe volcanique, où l'amphibole est de plus grande taille et forme aussi des agrégats (Fig. IV-3B). La mesure du rapport Mg/(Mg + Fe) plus élevée des amphiboles contrairement à celui mesuré dans les quelques minéraux de pyroxènes (orthopyroxènes) identifiés, montrent qu'elles ont cristallisé précocement par rapport aux pyroxènes (Kiss et al., 2014). Donc, dans le cadre de cette étude pour s'affranchir de tout problème d'excès d'argon, cette phase minéralogique a été volontairement exclue.

Les oxydes de Fer-Titane sont en général des magnétites. Compte tenu de leur faible teneur en potassium, ils font des candidats légitimement exclus pour les datations K-Ar.

La mésostase (matrice) représente la dernière phase à cristalliser lors d'une éruption. Elle joue le rôle de ciment dans nos différentes roches (partie noire dans toutes nos lames minces) et renferme de très fins microlites de plagioclase, biotites, amphiboles et autres. La présence de potassium dans cette phase en fait donc le candidat idéal sur lequel des datation K-Ar peuvent être effectués pour contraindre l'activité volcanique de ce complexe.

Code	Localité	Volume de phénocristaux (% vol)				Proportion de glomérocristaux (agrégats ; %)	Mésostase (%vol)
		Plagioclase	Biotite	Amphibole	Total		
15CIO01	Dealul Cetati	11	2	6	19	17	56
15CIO09	Haramul Mare	12	4	6	22	16	44
16CIO01	Haramul Mic	10	2	7	19	18	54
16CIO06	Balvanyos	23	1	7	31	13	47
16CIO07	Balvanyos	25	3	8	36	14	39
16CIO08	Muntele Puturusu	19	2	5	26	1	65
16CIO09	Piscul Piestros	21	2	8	30	23	47
16CIO11	St. Ana crater rim	16	1	9	26	23	51
16CIO05	Vf. Mohoș dacite	8	2	9	19	16	50
16CIO04	Ciomadul Mare	22	3	9	34	13	54
16CIO02	Vârful Comlos	14	2	8	22	8	59

Table IV- 1 : Proportion de chacune des phases en présence dans les échantillons étudiés au niveau du complexe volcanique de Ciomadul

IV.2 Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part I: timing of lava dome activity

(Article)

P. Lahitte ; **S. Dibacto** ; D. Karátson ; R. Gertisser ; D. Veres

Published 2019: International Association of Volcanology & Chemistry of the Earth's Interior

Bulletin of Volcanology (2019) 81: 27
https://doi.org/10.1007/s00445-019-1286-9

RESEARCH ARTICLE

Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part I: timing of lava dome activity

P. Lahitte[1] · S. Dibacto[1] · D. Karátson[2] · R. Gertisser[3] · D. Veres[4]

Received: 13 June 2018 / Accepted: 5 March 2019 / Published online: 29 March 2019
© International Association of Volcanology & Chemistry of the Earth's Interior 2019

Abstract

Located at the southern tip of the Intra-Carpathian Volcanic Range in Romania, and composed of a dozen dacitic lava domes, the Ciomadul (Csomád) volcanic complex is the youngest eruptive centre of the Carpatho-Pannonian Region. Whereas, in the last decade, the explosive history of Ciomadul since 50 ka has been well constrained by numerous studies, the chronology of the dome sequence still lacks robust chronological constraints and an extended analysis of all available data. Here, we apply a detailed K-Ar dating approach to refine the chronology of the lava dome eruptions, using the unspiked K-Ar Cassignol-Gillot technique. Our dating focused on the most voluminous central part of the lava dome complex. New eruption ages were determined following a strict separation (of 10 g) of groundmass from about 3 kg of unaltered sample rocks, thereby isolating material whose cooling was contemporaneous with the eruption. The newly applied methodology, mainly consisting of a double full preparation, first at larger grain size (~ 0.4 mm) and then at < 100 μm, provides an appropriate procedure to separate suitable material to obtain the K-Ar age of the eruption, i.e. the sample's groundmass, in which there is no risk of the presence of older, inherited crystals. Our new geochronological data set gives an improved insight into the temporal construction of the Ciomadul volcanic complex, where (due to the method applied here) all ages are younger than those from previous studies that used whole-rock K-Ar ages. Our new results show that Ciomadul's volcanic activity began with the construction of the south-eastern, peripheral domes from ca. 850 ka to 440 ka. After a ca. 250-ky-long repose period, the activity resumed in the northern part at around 200 ka, with subsequent domes emplaced between 200 and 130 ka, aligned roughly north-south in the western-central part of the complex. Following a 30-ky-long quiescence period, the eastern-central domes formed between 100 and 60 ka. In addition to the chronological history of lava dome volcanism, we also investigated the sequence of crystallization of mineral phases present in the lavas with respect to the modification of eruption ages. Ages obtained on pure minerals (plagioclase, amphibole, and biotite) are systematically older than those obtained on groundmass, showing that most of them formed up to 1.85 Myr before eruption in a long-lived, pre-Ciomadul magmatic system. Crystal size distribution (CSD) data support the age contrasts between juvenile groundmass and older inherited minerals. After injection of new magma and convective mixing with crystal clots, ascent of the resulting mixture led to eruptions of material representing contrasting ages.

Keywords K-Ar geochronology · Groundmass · Glomerocryst · Excess argon · Dacitic lava dome · Crystal size distributions · Quaternary volcanism

Editorial responsibility: S. Self

Electronic supplementary material The online version of this article (https://doi.org/10.1007/s00445-019-1286-9) contains supplementary material, which is available to authorized users.

✉ P. Lahitte
pierre.lahitte@u-psud.fr

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

[2] Department of Physical Geography, Eötvös University, Pázmány s. 1/C, Budapest H-1117, Hungary

[3] School of Geography, Geology and the Environment, Keele University, Keele ST5 5BG, UK

[4] Institute of Speleology, Romanian Academy, Clinicilor 5, 400006 Cluj-Napoca, Romania

Introduction

Accurate, high-temporal resolution data on eruption ages are crucial to better constrain the geochemical and petrological evolution of volcanic systems (Kersting and Arculus 1994; Hildenbrand et al. 2004; Cadoux et al. 2005), as well as to infer hazard parameters such as recurrence rates and repose periods (Marzocchi and Zaccarelli 2006; Damaschke et al. 2018; Reyes-Guzman et al. 2018). The more accurately the

volcanic activity is known, the better its recurrence can be documented and its potential risk constrained (Turner et al. 2009). Such ages also allow estimates of magma extrusion rates (Crisp 1984; Singer et al. 1997) and detailed variations of eruption rates through time and space (Hora et al. 2007; Lahitte et al. 2012; Germa et al. 2015). Moreover, eruption ages help identify vent migration patterns (Tanaka et al. 1986; Connor and Hill 1995; Condit and Connor 1996; Heizler et al. 1999) in dispersed, monogenetic volcanic fields (Nemeth and Kereszturi 2015), and volcanic processes, such as magma crystallization, vesiculation and fragmentation, that are crucial for eruption forecasting in both monogenetic (Kereszturi et al. 2017) and polygenetic volcanic systems (Turner et al. 2011; Damaschke et al. 2018).

During its long-term evolution, the Miocene to Pleistocene volcanic activity of the Inner Carpathian volcanic chain in the Carpathian-Pannonian Region (CPR; Fig. 1) shifted south-eastward (Szabo et al. 1992; Lexa et al. 2010). This migration defined the Călimani-Gurghiu-Harghita (CGH; Kelemen – Görgényi - Hargita)[1] range, East Carpathians, Romania (Pécskay et al. 1995, 2006). The youngest centre of the CPR, Ciomadul (Csomád) volcano, is located at the south-easternmost tip of the CGH range. It is a dacitic lava domes complex truncated by the well-preserved twin craters of St. Ana (Szent Anna) and Mohoş (Szakács and Seghedi 1995; Karátson et al. 2013). Ciomadul experienced a long-term eruptive history, producing a dozen lava domes emplaced during the last ca. 1 Myr over an area of 70 km^2 (Pécskay et al. 1995; Szakács et al. 2015). Its latest, mainly explosive, activity has been dated by radiocarbon and luminescence (OSL and post-*IR IRSL*) methods (Moriya et al. 1996; Vinkler et al. 2007; Harangi et al. 2010, 2015b; Karátson et al. 2013, 2016) around 32 ka. This has great significance for the regional, Late Quaternary tephrostratigraphy considering the areal distribution of this tephra which extends up to 350 km eastward (Karátson et al. 2016; Wulf et al. 2016). However, Ciomadul's whole volcanic history lacks a sufficiently constrained and reliable geochronological framework. Particularly, the recurrence time of the long-lasting dome-forming activity that preceded the explosive events is still poorly constrained. Previously obtained ages based on conventional K-Ar dating of the Ciomadul lava domes suffer from a lack of analytical accuracy (Pécskay et al. 1995; Szakács et al. 2015). An alternative approach, U-Th/He dating of zircon (Molnár et al. 2018), focused mostly on the onset of Ciomadul volcanism (around 1 Ma), without targeting the main area of the central dome complex.

[1] Official Romanian names, when mentioned at first, are followed by locally used Hungarian names (in brackets), which is helpful for the reader in finding the names on local maps

Even Ciomadul has experienced a long dormant period to present, with no eruption in the past 10,000 years, it is susceptible to erupt again (Szakács et al. 2015). Indeed, magnetotelluric surveys suggest the presence of conductivity variations at various levels beneath Ciomadul that have been attributed to the presence of a partially molten magma body below the volcano (Harangi et al. 2015b). These authors interpreted these anomalies as a result of the presence of crystal mush bodies containing about 5–15% melt fraction at depths of 5–25 km and 30–40 km. These depths coincide with a low-velocity seismic zone located by crustal tomography (Popa et al. 2012).

This paper aims to constrain the main history of extrusive activity of Ciomadul, focusing on the central dome complex and its peripheral lava domes. Due to the very young eruption ages (in the 100 ka range), apart from the $^{40}Ar/^{39}Ar$ method, the unspiked Cassignol-Gillot technique (Cassignol and Gillot 1982; Gillot et al. 2006), which uses the K-Ar radioactive chronometer, is arguably the most precise radiometric argon dating technique that can be applied to Ca-rich volcanic rocks. The advantage of this technique is that it avoids recoil issues of ^{39}Ar, ^{37}Ar, and ^{36}Ar in the reactor that may affect the $^{40}Ar/^{39}Ar$ technique. The method has proven to be well suited for dating recent up to Holocene lavas (Samper et al. 2009; Germa et al. 2011b; Gertisser et al. 2012). In part 1 of this work, we use this method to obtain precise eruption ages and constrain the geochemical evolution of the system. In part 2, we use the results to also assess the geomorphological evolution and magma output rates that characterized the evolution of Ciomadul's dome complex (Karátson et al. 2019). In this way, we build on previous work using high-precision Cassignol-Gillot K-Ar geochronology at, for example, Basse-Terre (Samper et al. 2009), Martinique (Germa et al. 2011b, 2015), or Merapi (Gertisser et al. 2012), in illustrating how a detailed geochronological framework can support studies that also constrain magmatic evolution and time-space eruptive dynamism.

Geological background

As volcanic activity migrated south-eastward along the CGH range during the Miocene to Pleistocene (Pécskay et al. 1995, 2006), magma compositions evolved from normal calc-alkaline to high-K calc-alkaline and shoshonitic (Szakács et al. 1993). This evolution was in tandem with a decrease in magmatic output rates (Szakács and Seghedi 1995; Karátson and Timár 2005). A decrease in the output rate is expressed by the progressive transition from large stratovolcanoes, occasionally with calderas, to smaller, mostly effusive cones and lava domes (Szakács and Seghedi 1995; Karátson and Timár 2005; Karátson et al. 2019).

Ciomadul volcano (Fig. 1) represents the best-preserved lava dome complex at the southernmost end of the CGH volcanic range. Its geological setting is presented in Szakács et al. (1993, 2015), Karátson et al. (2013, 2019), Harangi et al. (2015a), and Molnár et al. (2018). A dome complex is a special type of compound polygenetic volcano where an assemblage of nested lava domes, coulees (Blake 1990), and related pyroclastic and epiclastic volcanic rocks are spaced so closely in space and time that they are considered a polygenetic volcano rather than a group of monogenetic volcanoes (Lexa et al. 2010). Mostly high-K dacitic in composition, Ciomadul consists of domes resulting from extrusion of viscous magma and comprises the spatially and volumetrically most significant central dome in this system (Karátson et al. 2019). The system also includes the more isolated southeastern andesitic domes of Dealul Mare (Hegyes-tető) and the Puturosu (Büdös) Hills (Fig. 1), but these are not studied here. To the south, there are two other domes, which have andesitic to shoshonitic composition (Szakács et al. 2015). These latter domes, as well as the adjacent, western Pilişca (Piliske) stratovolcano in the South Harghita range, are older than Ciomadul (Szakács et al. 2015; Molnár et al. 2018).

As already described elsewhere, such as at the Okataina Center in New Zeland's Taupo Volcanic Zone (Smith et al. 2004, 2005; Shane et al. 2007; Rubin et al. 2016), the magma batches of Ciomadul's dacites were probably produced as the result of reheating by intrusion(s) of hot mafic magma into a silicic reservoir (Kiss et al. 2014). In particular, crystallization of amphibole has been related to the storage of a near-solidus silicic crystal mush body at 8–12-km depth (Kiss et al. 2014). The remobilization of silicic crystal mush can provide a large amount of xenocrysts, which constitutes up to one-third of the volume of the erupted silicic magma of some lava domes as observed, for instance, on Santorini or Montserrat (Zellmer et al. 2000, 2003). At Ciomadul, the role of these xenocrysts has yet to be shown and analyzed. The xenocrysts, isolated or as part aggregates of crystals called glomerocrysts (or crystal clots), may have reached the surface with a part of the radiogenic argon (^{40}Ar*) they had accumulated since their formation, making K-Ar dating of the dacitic domes challenging. Indeed, these xenocrysts are carriers of extraneous argon, which are prone to bias K-Ar ages (Dalrymple and Moore 1968; McDougall et al. 1969; Ozawa et al. 2006).

Petrology of the Ciomadul lava domes

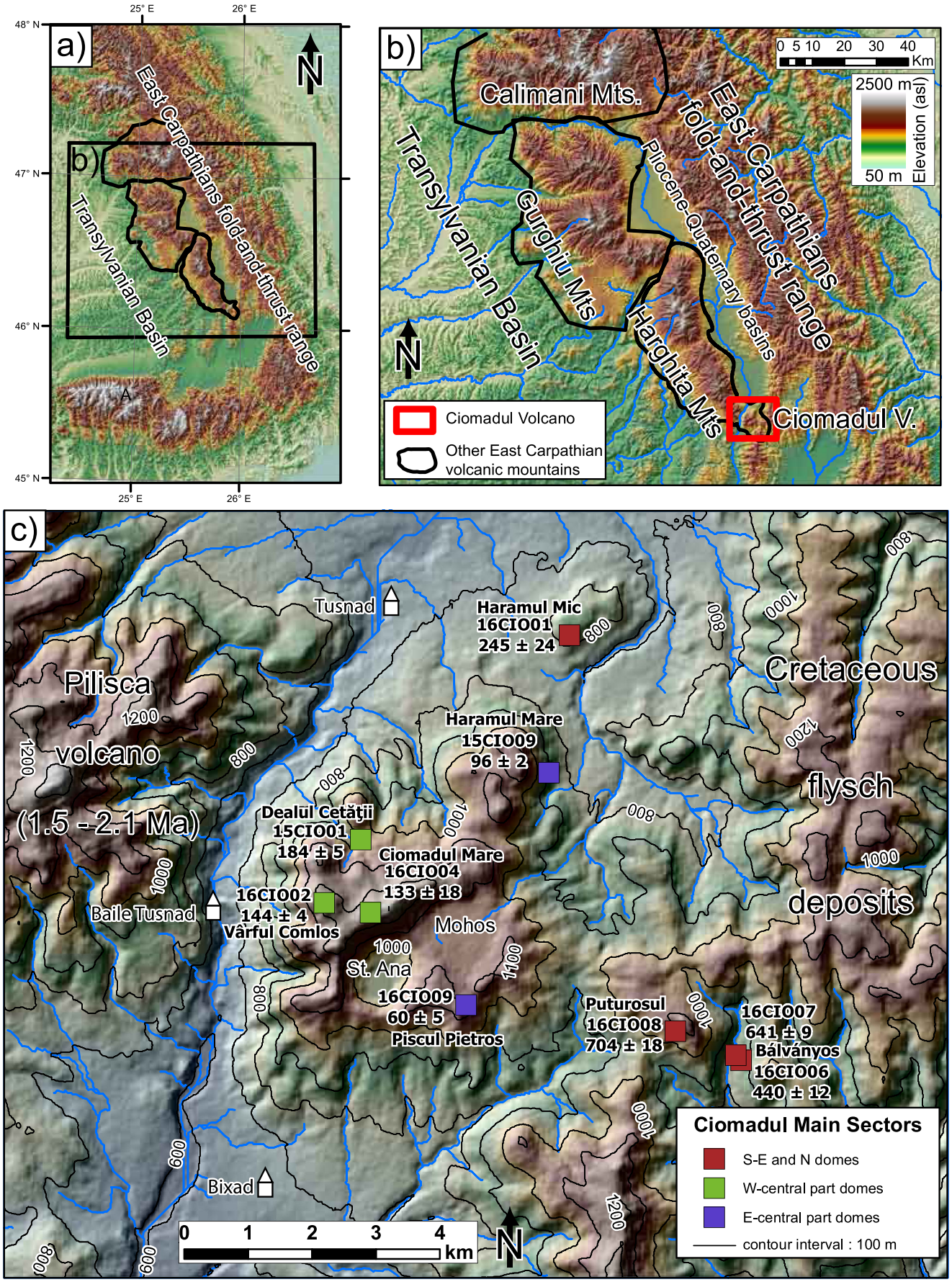
Detailed petrology of the Ciomadul lava domes was already well established by previous studies (Kiss et al. 2014; Harangi et al. 2015b; Szakács et al. 2015). We here only highlight their main characteristics. Ciomadul lava dome rocks are mainly high-K calc-alkaline, poorly vesicular dacites. Mainly porphyritic, these rocks contain 20–35 vol% coarse crystals (most of them being xenocrystic, see below) commonly set in a fine-grained, light-grey groundmass. In order of relative abundance, these include plagioclase (An_{85-30}, 10–25 vol%), amphibole (5–13 vol%), biotite (1–4 vol%), orthopyroxene (1–2 vol%), and Fe-Ti oxides (1–2 vol%). Plagioclase occurs as euhedral laths up to 10 mm in size and often exhibits inclusions of green-brown biotite, euhedral amphibole, and sparse equant Fe-Ti oxide crystals. Euhedral crystals include mainly plagioclase, some exhibiting oscillatory zoning and sieve textures, and amphibole. Subhedral biotite is present as red-brown, pleochroic tabular laths up to 5 mm in length (Szakács et al. 2015). Red-brown hornblende (low-Al amphibole with thick breakdown rims) and pargasite (high-Al amphibole with thin reaction rims) are present as rounded, subhedral to anhedral crystals up to 10 mm in size (Kiss et al. 2014; Harangi et al. 2015b), containing abundant inclusions of Fe-Ti oxides, plagioclase, or biotite. From thermobarometrical modelling, formation of amphiboles has been interpreted as bimodal (Kiss et al. 2014); hornblende having formed at lower temperature (< 800 °C) and pargasite having formed at higher temperature (950 °C).

The dome rocks contain abundant glomerocrysts or crystal clots, which are aggregates of crystals. Importantly for dating, these glomerocrysts consist of remobilized crystals (> 1 mm and up to 15 mm in diameter; Fig. 2) with microdiorite textures, containing mainly rounded and slightly altered plagioclase and amphibole, in addition to Fe-Ti oxides, apatite, biotite, and zircon. Such remobilized crystals are here referred to as xenocrysts, whereas the term glomerocryst is used for an aggregate of xenocrysts remobilized from crystal mush. The groundmass of the dome lavas contains plagioclase, hornblende, biotite with occasional orthopyroxene, Fe-Ti oxide, and glass.

Methods

Applying the unspiked Cassignol-Gillot K-Ar technique

The unspiked Cassignol-Gillot technique allows the accurate detection of low percentages of radiogenic ^{40}Ar (Quidelleur et al. 2001). It has been applied to the dating of young (< 100 ka) volcanic events and successfully compared with other dating methods such as ^{14}C, ^{36}Cl exposure, and thermo-luminescence (Lahitte et al. 2001; Gillot et al. 2006; Germa et al. 2010; Schimmelpfennig et al. 2011). The technique was also favourably compared with the ^{40}Ar/^{39}Ar method and gave similar results when applied to groundmass samples (Coulie et al. 2003; Calvert et al. 2006; Hildenbrand et al. 2014).


a)
b)
c)
25° E
26° E
48° N
47° N
46° N
45° N
East Carpathians fold-and-thrust range
Transylvanian Basin
Calimani Mts.
Gurghiu Mts
Harghita Mts
Pliocene-Quaternary basins
0 5 10 20 30 40 Km
2500 m
50 m
Elevation (asl)
Ciomadul Volcano
Other East Carpathian volcanic mountains
Ciomadul V.
Tusnad
Haramul Mic
16CIO01
245 ± 24
Haramul Mare
15CIO09
96 ± 2
Dealul Cetăţii
15CIO01
184 ± 5
Ciomadul Mare
16CIO04
133 ± 18
16CIO02
144 ± 4
Vârful Comlos
Baile Tusnad
Mohos
St. Ana
16CIO09
60 ± 5
Piscul Pietros
Puturosul
16CIO08
704 ± 18
16CIO07
641 ± 9
Bálványos
16CIO06
440 ± 12
Bixad
Pilisca
volcano
(1.5 - 2.1 Ma)
Cretaceous
flysch
deposits
Ciomadul Main Sectors
S-E and N domes
W-central part domes
E-central part domes
contour interval : 100 m
0 1 2 3 4 km

◀ **Fig. 1** **a** DEM in shaded relief of Eastern Carpathian. **b** Location of the main East Carpathian volcanic massifs. **c** Ciomadul dome complex. Sample locations (squares) are colour coded according to their sector: red squares: peripheral south-eastern and northern domes; green squares: western-central part of the dome complex; purple squares: eastern-central part of the dome complex. Ages and uncertainties are in ka. St. Ana and Mohoş: uneroded twin craters

The unspiked Cassignol-Gillot technique

Independent K and Ar measurements were performed in the Laboratoire GEOPS (GEOsciences Paris-Sud, Orsay, France). Following dissolution using a mixture of HF, nitric and perchloric acids to destroy the silicate network, potassium (K) was measured by flame emission spectroscopy. Ar isotopic measurements were performed using a 180° sector mass spectrometer (Cassignol and Gillot 1982; Gillot et al. 2006). This technique has a limit of detection for the radiogenic Ar content (^{40}Ar*) of only 0.1% of the total extracted argon (Quidelleur et al. 2001). Details of the Ar isotopic approach are given elsewhere (Cassignol and Gillot 1982; Gillot and Cornette 1986; Gillot et al. 2006) and are summarized in the Supplementary Material. To minimize the effect of mass discrimination, the amount of radiogenic argon (%^{40}Ar*) was calculated from a direct comparison between the instrumental ^{40}Ar/^{36}Ar sample ratio and the instrumental ^{40}Ar/^{36}Ar atmospheric ratio at identical pressure. Unlike the conventional K-Ar technique, this direct quantification does not add a ^{38}Ar spike and is made possible by the very stable analytical conditions. Average relative uncertainties of the ^{40}Ar/^{36}Ar ratios and on the amount of radiogenic argon (%^{40}Ar*) are 0.045% and 1.533%, respectively. The technique relies on the assumption that all the measured ^{40}Ar* comes from the in situ radioactive decay of ^{40}K.

Sample preparation

Extraneous argon, i.e. argon not generated by in situ decay of potassium, originates from inherited argon and excess argon and may bias K-Ar ages (Dalrymple and Moore 1968; McDougall et al. 1969; Ozawa et al. 2006). Inherited argon consists of the contamination by older minerals incorporated into the juvenile magma before eruption, whereas excess argon is introduced from outside the system, commonly from fluid circulations (Kelley 2002). Our sample preparation procedure (from fieldwork sampling to the sample separation) aims at isolating the groundmass from such a source of extraneous argon. Given the incompatible nature of argon, mineral/fluid and mineral/melt partition coefficients range from 0.01 to as low as 7×10^{-6}, and excess argon remains a relatively uncommon phenomenon (Kelley 2002). On the other hand, extraneous argon may result from the contamination by older country rock (inherited argon in xenoliths), or by excess argon present either in inclusions of glass within phenocrysts

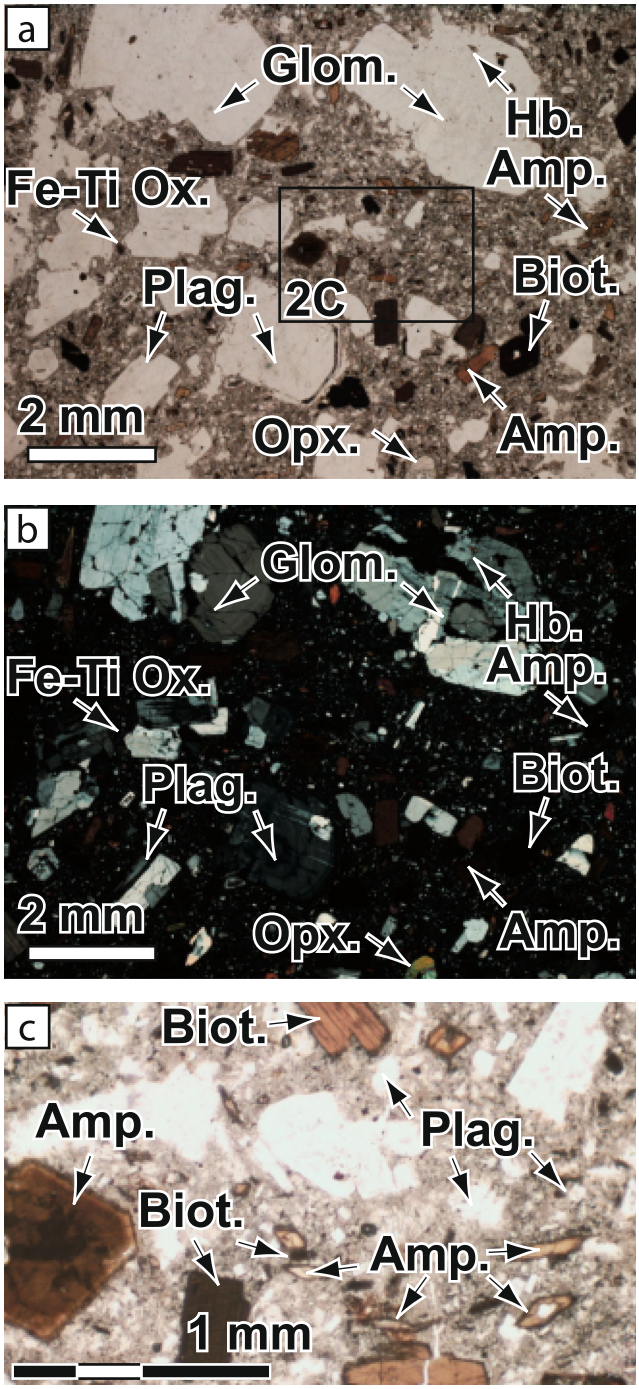


Fig. 2 Photomicrograph of a thin section of the Haramul Mare dome in plane-polarized (**a**) and cross-polarized (**b**) view. Plag., plagioclase; Biot., biotite; Amp., amphibole; Glom., glomerocrysts, mostly composed of plagioclase phenocrysts and small hornblende (Hb.), appear in the upper part as a crystal clot. Width is 10 mm. **c** Close-up view of the microlitic groundmass and microphenocrysts

(Dalrymple and Moore 1968) or in hydrous fluid in the grain boundary network (Kelley 2002). As K-Ar ages do not give spectra to check the presence of inherited argon, dates may be erroneously too old due to such contamination sources. However, accurate sampling, sample separation, and very

strict selection of a narrow density range of pure groundmass greatly minimize the risk of contamination due to the presence of extraneous argon.

Sample selection

During two field campaigns (in October 2015 and June 2016), 25 samples (about 3 kg weight each) were collected from Ciomadul's lava domes. The sample locations are shown in Fig. 1 with the UTM coordinates listed in Table 2. Some of the sampled domes were assumed to be coeval with the late-stage (< 50 ka) pyroclastic (fall and flow) deposits (Harangi et al. 2010, 2015a; Karátson et al. 2013, 2016; Wulf et al. 2016). In the field, only samples without visible obvious traces of alteration (calcite, zeolite, or any secondary minerals) and fluid circulation were collected. An additional inspection of thin sections, and checking the freshness of the groundmass, reduced the number of samples to be dated to 18, representing nine individual lava domes. The low loss-on-ignition (LOI) values (less than 1.6 wt%, Table 3) indicate that secondary weathering processes have not significantly affected the selected samples. These criteria reduce the possible bias of K-Ar ages related to K loss or gain via alteration.

Sample separation

One of the main issues in determining the eruption age of the xenocryst-bearing lavas from the Ciomadul domes is to separate pure groundmass aliquots from numerous xenocrysts and phenocrysts which are potential carriers of extraneous argon. The probability of extraneous argon increases with the range of the groundmass density. Indeed, aliquots having a large range of density may contain significant amounts of xenocryst and phenocryst fragments together with the groundmass. In our work, we lowered the relative density range to less than 0.05 (dimensionless quantity). To separate the groundmass as much as possible from inherited minerals, we applied a two-step procedure.

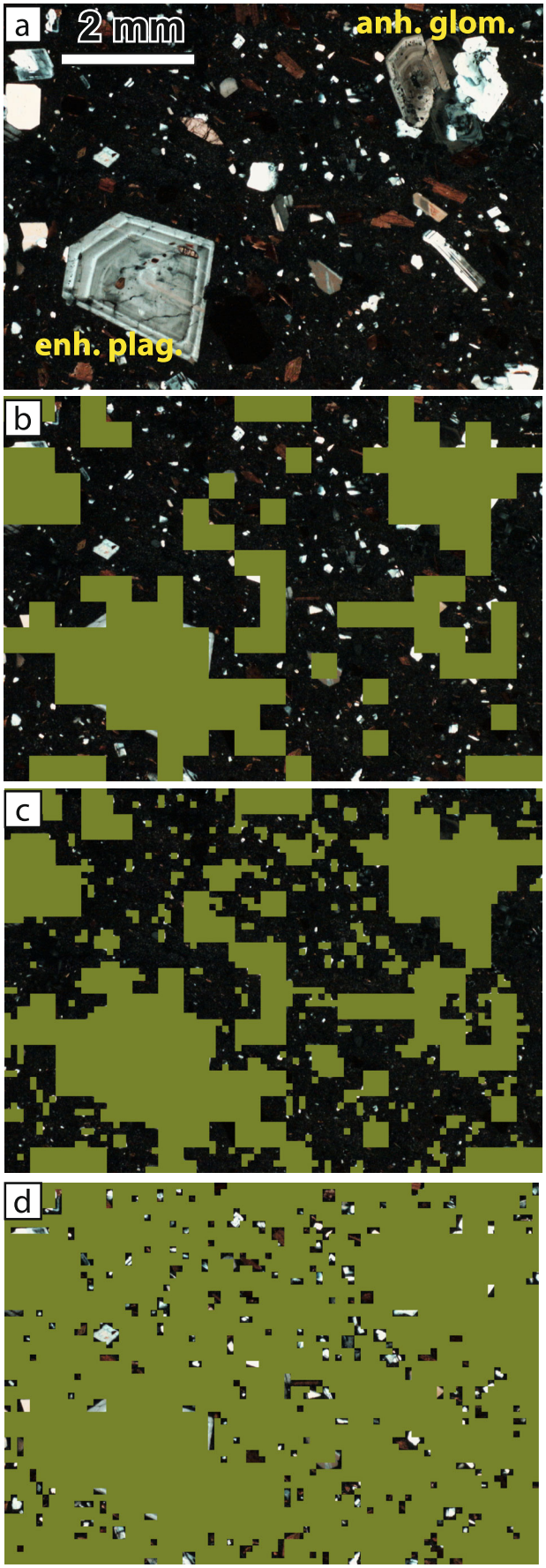
First, the whole-rock sample was crushed and sieved to the 250–500-μm size fraction and then ultrasonically washed in 10% nitric acid solution in order to remove any traces of alteration (clay, sulphur, carbonate, etc.) and hydrothermal products (zeolites, salt containing chlorine compounds, some of them being that isobar to argon isotopes). Finally, the sample was rinsed with water, ethanol, and acetone, and ca. 200 g clean material was obtained. Neither HF nor HCl acid was used during sample cleaning in order to avoid 36 mass isobaric contamination (by HCl) that could bias the ^{36}Ar detection or induce dissolving and loss of K (HF and HCl) as was observed in the study of Balogh et al. (2010). Groundmass aliquots were separated by means of heavy liquids (bromoform progressively diluted in ethanol) and, if necessary, by magnetic separation (Gillot et al. 1992). This procedure was efficient in separating the mixed grains of biotite/groundmass or amphibole/groundmass from the pure groundmass, although, in some cases, it was not possible to eliminate the mixed plagioclase/groundmass grains.

This first preparation step was followed by additional crushing to the 62.5–125-μm size fraction (Fig. 3b). After cleaning, a second density separation was performed to isolate the groundmass fraction (Fig. 3c) from the remaining plagioclase crystals (Fig. 3d). Following the density separation, magnetic separation and handpicking were performed to guarantee the absence of plagioclases in the aliquots to be dated.

Pure phenocrysts and xenocryts (K-feldspar, plagioclase, biotite, and amphibole) were separated from the 250–500-μm fraction in an attempt to estimate the contribution of inherited argon in whole-rock dating. We also separated plagioclase microphenocrysts from samples 16CIO01 and 16CIO04 as their groundmass was slightly altered.

Crystal size distribution analysis

In order to highlight the petrographical properties of the Ciomadul dacitic lavas and determine its impact on the ideal fraction for K-Ar dating, crystal size distribution (CSD) analyses were obtained on representative samples, following standard methods (Higgins 1996). High-resolution photomicrographs were taken and digitally merged together to create single large thin-section images. These images (6400 × 4800 pixels) were imported into ImageJ software, where contrast and brightness were adjusted to highlight crystal boundaries. For each crystal population, including plagioclase (selected by white and/or bright zones) and mafic crystals (amphibole and biotite, orange to dark brown zones), colour histogram analyses and thresholding were applied to outline crystals. Small crystals (< 10 pixels) were removed from these binary images. Best-fit ellipses were applied to determine long- and short-axis measurements. Mean crystal aspect ratios were calculated using the CSDSlice methodology (Morgan and Jerram 2006). For all grain categories, the number of measurements was at least 10 times higher than the minimum recommended (Mock and Jerram 2005; Morgan and Jerram 2006). Intersection lengths were converted to 3-D CSDs, using the CSDCorrections 1.6 software (Higgins 1996, 2002, 2006). L_{max} is calculated by averaging the four largest crystals within each identified population. The lower limit of the CSD was 0.010 mm (which is not necessarily the smallest crystal in the rock). Samples were classified as massive and approximate crystal roundnesses of 0.3 for plagioclase and 0.6 for mafic crystals (on a scale of zero, angular, to one, spherical) were used. Logarithmic length intervals were used, with each bin $10^{0.2}$ times the size of the previous bin. Bins with less than three crystals were removed from the CSD analysis. Where CSD slopes were curved or kinked, individual segments were interpreted using least squares regression.



◀ **Fig. 3** Illustration of the procedure of the two-step sample separation from a photomicrograph of sample 15CIO01. Mosaics **b**, **c**, and **d** simulate the results of the separation. Each square in these mosaics represents a fraction of the crushed sample that is either kept (visible) or removed (hidden by green squares) during the separation. **a** Thin section in cross-polarized light (field of view is 8 mm wide). Labels highlight characteristic anhedral glomerocryst (anh. glom.) and euhedral plagioclase (enh. plag.). **b** Grains selected by the first step. Note the small diamond-like phenocryst (at the centre left), the peripheral part of large phenocrysts, and the abundance of microphenocrysts (in the upper half) that remain after this first step. **c** Grains that remain selected after the second step of preparation. **d** Grains that would not be removed from the groundmass in the case of a single-step separation

Petrographical and geochemical analyses

To highlight the importance of the main mineral phases, a petrographical analysis was performed in order to estimate the relative proportion of the main phenocrysts (plagioclase, biotite, and amphibole), xenocrysts, glomerocrysts and groundmass. Major element whole-rock analyses were also performed on the newly dated lava rock samples by ICP-AES to assess the geochemical evolution through time. The samples were analyzed at Bureau Veritas Minerals, Vancouver, Canada, following standard sample preparation and analytical techniques.

Results

Crystal size distribution analysis and justification of the groundmass separation process

Crystal size distribution data based on the major axis of the fitting ellipsoid and results are presented in Table 1. Almost all samples (black curves in Fig. 4a) show CSD plots for both plagioclase and mafic mineral phases that exhibit kinked profiles, allowing each to be divided into two individual segments. On the other hand, sample 16CIO08 differs with its much more linear CSD profile (coloured curves in Fig. 4a), particularly for the mafic minerals. A downturn in the smallest crystal sizes can appear either from real population proportions or from analytical bias (Higgins 1996, 2002). Considered as representing a left-hand truncation effect, these bins were removed from analyses.

Plots for plagioclase show the most prominent kinked CSDs (black curve, Fig. 4b). Each curve can be divided into two distinctive segments, defined by sizes < 0.125 and > 1 mm. Volumetric plagioclase proportions range from 29.5 to 38.0 vol% and maximum length (L_{max} in Table 1) from 2.93 to 4.79 mm. Average characteristic length values, defined as the opposite of the inverse of the slope (Marsh 1988), are around 0.02 mm for the smaller populations and range from 0.65 to 2.12 mm for the larger ones.

Table 1 CSD input parameters and results, including crystal habit and L_{max}

Sample	Mineral	Count	Crystal habit				Shape	L_{max} (mm)	Phase proportion (%)
			Short	Interm.	Long	R^2 values			
16CIO08	Plagioclase	8164	1	1.5	3	0.86	Tabular	2.93	35.2
16CIO08	Mafic m.	5454	1	1.5	3	0.85	Columnar	1.58	12.3
15CIO01	Plagioclase	3465	1	1.3	2.1	0.88	Tabular	4.20	29.5
15CIO01	Mafic m.	2781	1	1.25	2.1	0.83	Columnar	1.39	7.9
15CIO09	Plagioclase	5720	1	1.25	2.1	0.86	Tabular	4.79	38.0
15CIO09	Mafic m.	2008	1	1.5	3	0.88	Columnar	2.08	11.3
16CIO09	Plagioclase	3020	1	1.3	2.2	0.87	Tabular	4.31	33.7
16CIO09	Mafic m.	3486	1	1.6	2.9	0.88	Columnar	1.55	7.4

Mafic mineral (biotite) CSDs show concave-upward patterns that are smoother than those for plagioclase (grey curve, Fig. 4c) but kinked enough to divide trends into two slopes (< 0.125 and > 1 mm). Volumetric mafic mineral proportions range from 7.9 to 12.3 vol% and L_{max} from 1.39 to 2.08 mm. Average characteristic length values range from 0.016 to 0.025 mm for the smaller mafic populations and from 0.32 to 0.50 mm for the larger ones.

Using the method of Marsh (1988), and from the growth rates of plagioclase microphenocrysts estimated at around 1×10^{-10} mm s^{-1} (Higgins and Roberge 2007), residence times for these populations are around 6 years. Such delay cannot be related to the magma ascent (estimated at 12 days by Kiss et al. 2014), but to the magma storage preceding eruption (Kiss et al. 2014; Harangi et al. 2015b).

CSD plots do not take into account more than 50% of the total crystal volume (grey in Fig. 4a insets). This is the population corresponding to grains smaller than 0.010 mm and constitutes the microlitic groundmass. This population represents material that crystallized during the eruption.

As the microlitic fraction and microphenocrystic populations do not contain pre-eruption inherited argon that may bias results, it represents the ideal fraction for eruption age determination. We hereafter refer to this population as groundmass. The 0.125–1-mm fraction corresponds to the juvenile magma groundmass and the smaller phenocrysts, possibly inherited as xenocrysts. As a result, this population is not suitable for determining an eruption age. The > 1-mm fraction is mostly made up of pre-eruptive and, possibly, inherited argon-rich minerals. As crushing would reduce the larger minerals into grains having the same size and almost the same density as the smaller minerals, simply crushing and separating them in a single-step procedure are not suitable. Groundmass aliquots were thus obtained during the two-step procedure described above (see also Fig. 3), with each separation step contributing to the maximum possible purification of the originally < 0.125-mm fraction by removing grains considered to have originated from phenocrysts or glomerocrysts, i.e. from any crystals initially larger than 0.125 mm.

K-Ar ages

K-Ar ages are reported in Table 2, with all uncertainties quoted at the one-sigma (1σ) level. Age calculations are based on the ^{40}K abundance and decay constants recommended by Steiger and Jager (1977). The argon content is calculated from two independent measurements. As a higher abundance of radiogenic $^{40}Ar^*$ means a lower uncertainty on the age, the average age and its 1σ uncertainty have been calculated by weighting each independent age measurement with its amount of radiogenic $^{40}Ar^*$. Percentages of $^{40}Ar^*$ range from 1.03% to 34.3 vol%, with respective relative uncertainties between 6.48% and 0.27%. Relative errors of the ages are between 12.6% and 1.44%, the latter value being near the limit of our method set at 1.42% for a 100% radiogenic sample, i.e. when only the relative uncertainties on K content (1%) and argon calibration (1%) affect the result. With the exception of sample 16CIO04, all Ar analyses were successfully duplicated at the 1σ level (Table 2). The poor reproducibility of sample 16CIO04 may reflect grain heterogeneity within the sample. In this case, the uncertainty of the age was calculated as the standard deviation of the duplicated age measurements.

Even if our strict selection effectively removed phenocrysts, glomerocrysts, and their fluid inclusions, greatly minimizing the risk of biasing ages by excess argon, we have to consider that the elimination of excess argon might not have been perfect. Such cases would induce eruption ages that are slightly younger than our results.

South-eastern and northern domes

Three new K-Ar ages constrain the emplacement time of the peripheral domes of the Ciomadul area (Table 2, Figs. 1 and 5) in addition to the somewhat older Dealul Mare. The

radiogenic argon content ($^{40}Ar^*$) of the dated samples varies from 4 to 35 vol%, this latter value being related to the exceptional freshness of the sample, yielding very low atmospheric contamination. The groundmass K content is homogenous, from 3.23 to 3.59 wt%.

The two south-eastern peripheral domes of Muntele Puturosu (Büdös Hill) and Balvanyos (Bálványos Hill) represent relicts of apparently heavily eroded domes that cut through the Cretaceous flysch (Szakács et al. 1993, 2015). Muntele Puturosu was dated at 704 ± 18 ka (16CIO08). The Balvanyos dome, which is the south-easternmost volcanic extrusion of the Ciomadul area (Fig. 1), is dated at 641 ± 9 ka (16CIO07) and 440 ± 12 ka (16CIO06). Based on the more proximal position of 16CIO07, the 641 ka age may better constrain the emplacement age of the Balvanyos dome, and the younger sample could be linked to another, nearby eruption source no longer morphologically visible. Due to the small error even at the 2σ level, it can be concluded that the two samples are from successive, adjacent eruptions separated by a long time gap.

In the north, the groundmass separated from the sample collected from the Haramul Mic (Kis-Haram) dome (16CIO01) shows very high atmospheric contamination. Therefore, no trustworthy age could be obtained on the groundmass. Instead, plagioclase microphenocrysts, which crystallized shortly before eruption, were processed, giving an age of 245 ± 24 ka. However, due to presence of glomerocrysts, the probability that the aliquots of plagioclase microphenocrysts contain inherited grains is not zero. As a consequence, the K-Ar age has to be considered a maximum value. Because Haramul Mic is the oldest part of the main dome complex, this age implies that most of the extrusive dome activity of Ciomadul was constrained within the past 250 ky.

Western-central part of the dome complex

The most important results of our work are related to the western-central main part of the dome complex, which represents the largest volume of Ciomadul (Karátson et al. 2019). Of these domes, only Haramul Mare (Nagy-Haram), Dealul Cetății (Vár-tető), Dealul Taca (Fáca), and Piscul Pietros (Köves Ponk) have been dated by applying the conventional K-Ar technique (Pécskay et al. 1992, 1995; Szakács et al. 2015). In addition, Piscul Pietros was also dated by the U-Th/He method (Harangi et al. 2015a), whereas Dealul Cetății (Vár-tető) and Haramul Lerbos (Fű-Haram) were dated using uncorrected U-Th/He measurements (Karátson et al. 2013), only providing age ranges.

The obtained ages define a 50-ky time span from about 184 ka to 133 ka (Table 2, Figs. 1 and 5), showing that the majority of the Ciomadul domes were formed in a relatively short time interval. The K content varies from 1.39 wt% (on plagioclase microphenocrysts) to 3.72 wt% (groundmass), whereas radiogenic argon contents ($^{40}Ar^*$) range from 1.2 to 4.4 vol%, inducing relative uncertainties between 3 and 14%. The Dealul Cetății (Vár-tető) dome in the north has been dated at 184 ± 5 ka (sample 15CIO01), whereas the Vârful Comlos (Komlós-tető) dome (sample 16CIO02) yielded an age of 144 ± 4 ka. Adjacent to Vârful Comlos, the dome of Ciomadul Mare (sample 16CIO04) represents the northern rim of the twin craters of St. Ana and Mohoș and may morphologically correspond to an older, larger explosion crater (Karátson et al. 2013; Szakács et al. 2015) created during the early Mohoș explosive eruptions. To minimize risk of contamination by gas released during the last explosive phase from the younger craters, and because the St. Ana crater area is still experiencing gas emanation, the material retained to date this dome consisted of plagioclase microphenocrysts. These were separated by the two-step procedure from the 40–80-μm grain size fraction obtained after crushing the 80–160-μm groundmass fraction. The very small grain size used in both steps allowed minimization of the traces of inherited minerals. The extracted plagioclase microlite fraction, which is expected to be contemporaneous with the eruption, provided an age of 133 ± 18 ka (Table 2), indistinguishable from the Vârful Comlos data, even at 1σ level.

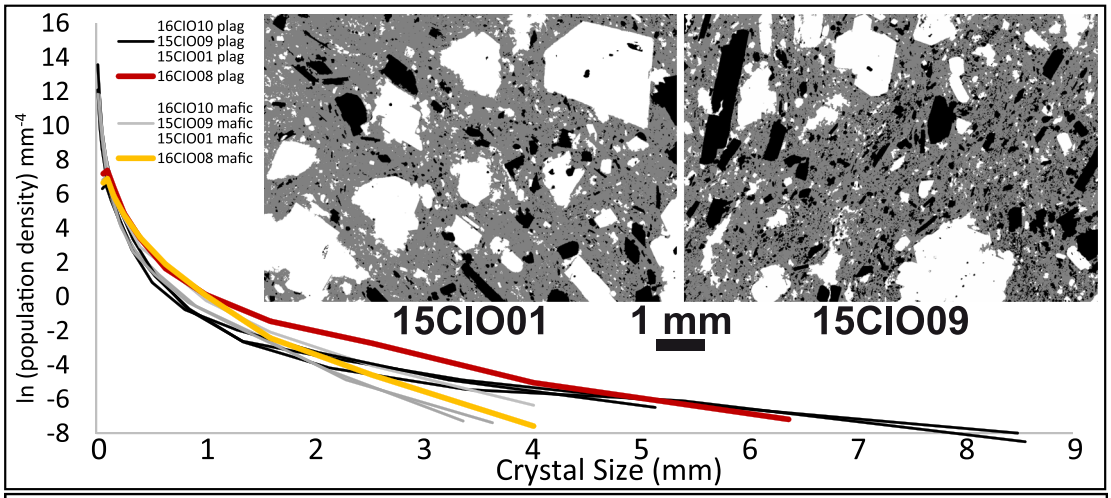
Eastern-central part of the dome complex

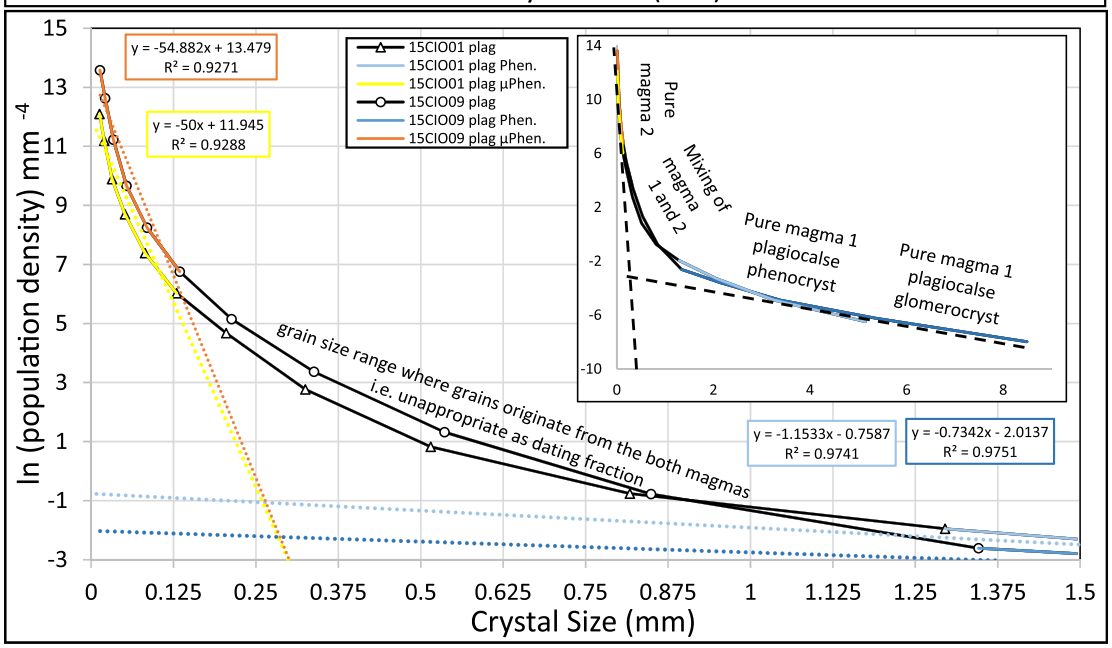
After a quiescence lasting tens of thousands of years, volcanic activity resumed at around 100 ka to form the eastern-central domes (Fig. 1). The Haramul Mare dome (sample 15CIO09) has been dated at 96 ± 2 ka (Table 2). At the southern rim of the Mohoș crater, a rock sampled on the active face of a quarry offered access to a fresh sample of the Piscul Pietros (Köves Ponk) dome, which is morphologically truncated by the Mohoș crater. It has been dated at 60 ± 5 ka (sample 16CIO09; Table 2).

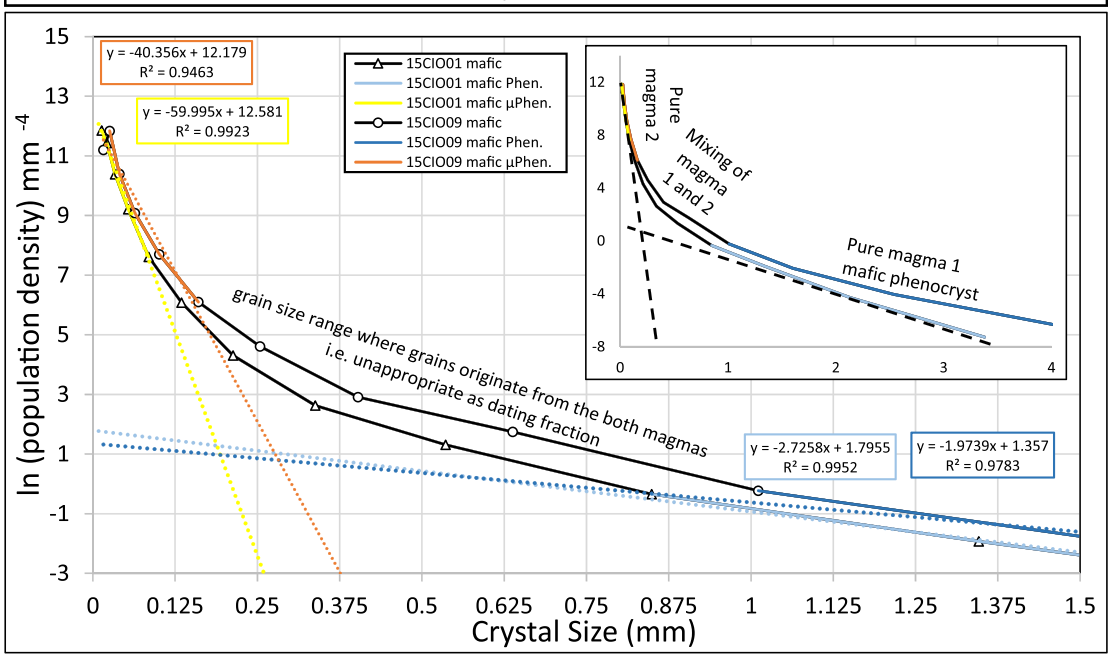
Geochemistry of the lava domes

Representative chemical analyses of the dated samples are given in Table 3. Concentrations of SiO_2 for the Ciomadul lava domes range between 62.8 and 68.4 wt% and belong to the high-K calc-alkaline (HKCA) series. There is a dacitic composition for all but two samples of the Balvanyos dome (16CIO06 and 16CIO07), the latter straddling the boundary with the high-K andesite field (Fig. 6a). We note that the southern Dealul Mare dome, not studied here, also falls in this latter andesite field (Szakács et al. 2015).

Major element contents (using SiO_2 as a differentiation index; Fig. 6b) show that MgO, CaO, Al_2O_3, MnO, Fe_2O_3, P_2O_5, and TiO_2 decrease with SiO_2, whereas K_2O slightly increases, as does Na_2O but with a more scattered distribution. These evolutionary trends are consistent with fractional


16CIO10 plag
15CIO09 plag
15CIO01 plag
16CIO08 plag
16CIO10 mafic
15CIO09 mafic
15CIO01 mafic
16CIO08 mafic
15CIO01
1 mm
15CIO09
ln (population density) mm-4
Crystal Size (mm)


y = -54.882x + 13.479
R² = 0.9271
y = -50x + 11.945
R² = 0.9288
15CIO01 plag
15CIO01 plag Phen.
15CIO01 plag µPhen.
15CIO09 plag
15CIO09 plag Phen.
15CIO09 plag µPhen.
Pure magma 2
Mixing of magma 1 and 2
Pure magma 1 plagiocalse phenocryst
Pure magma 1 plagiocalse glomerocryst
grain size range where grains originate from the both magmas i.e. unappropriate as dating fraction
y = -1.1533x - 0.7587
R² = 0.9741
y = -0.7342x - 2.0137
R² = 0.9751
ln (population density) mm -4
Crystal Size (mm)


y = -40.356x + 12.179
R² = 0.9463
y = -59.995x + 12.581
R² = 0.9923
15CIO01 mafic
15CIO01 mafic Phen.
15CIO01 mafic µPhen.
15CIO09 mafic
15CIO09 mafic Phen.
15CIO09 mafic µPhen.
Pure magma 2
Mixing of magma 1 and 2
Pure magma 1 mafic phenocryst
grain size range where grains originate from the both magmas i.e. unappropriate as dating fraction
y = -2.7258x + 1.7955
R² = 0.9952
y = -1.9739x + 1.357
R² = 0.9783
ln (population density) mm -4
Crystal Size (mm)

◀ **Fig. 4** Semi-log crystal size distribution (CSD) plots for mineral phases in the Ciomadul lava dome. **a** Plagioclase (black curves) and mafic (amphibole and biotite, grey curves) crystal CSD plot. All but those for sample 16CIO08 (coloured curves) show kinked profiles. Insets show analyzed micro-photographs used in the CSD plots in **b** and **c** (plagioclase in white, mafic crystals in black, groundmass in grey). **b** Fitting of a mixture of two magmas with linear CSDs to the observed CSD from samples 16CIO01 and 15CIO09 for plagioclases focussed on the kink zone between the two linear segments for the fine and coarse grains. Regressions though coherent populations, for which assumptions of near-uniform morphologies are valid, are shown as dotted lines. Values for the equation of these regressed lines and R^2 values are given (same box colour as the corresponding line). Inset shows the complete CSD graph. **c** Same graph as **b** but for mafic (biotite) crystals

crystallization of plagioclase, amphibole, pyroxene, biotite, and Ti-Fe oxides. Specifically, the decreasing trends of CaO and Al_2O_3 as SiO_2 increases, for all samples but 16CIO08, are explained by predominantly plagioclase fractionation.

Discussion

Timing of lava dome activity

Our new K-Ar ages for the extrusive products of the Ciomadul lava dome complex allow better constraints on its dynamism. In particular, they reduce the age range previously suggested by Pécskay et al. (1995) and Szakács et al. (2015), showing that the mainly extrusive, dome-building activity occurred in two main stages and is younger than 1 Ma.

Our derived ages indicate that two stages can be distinguished in the construction of the Ciomadul system. The first stage (Table 2) produced the south-eastern peripheral domes of Muntele Puturosu and Balvanyos (Fig. 1). In addition to the somewhat older Dealul Mare (Szakács et al. 2015; Molnár et al. 2018), the duration of this stage is constrained between around 850 and 440 ka. The second, and volumetrically most significant, stage of Ciomadul began around 200 ka with the Haramul Mic dome-forming eruption. This stage built the northern and central portions of the dome complex. In turn, the main lava domes that form this second stage can be divided into two phases, an older phase between 200 and 130 ka and a younger phase beginning around 100 ka. Within the second phase, the 60 ka age of Piscul Pietros roughly coincides with the onset of the late-stage explosive eruptions (Harangi et al. 2015a; Karátson et al. 2016). Overall, the activity of the Ciomadul lava dome complex is aligned approximately north-south, subparallel to a local fault (Matenco et al. 2007). This suggests a tectonic control on magma extrusion which was characterized by two stages, separated by a long repose of ca. 440–200 ka. Dome eruptions over the main eruptive stage of Ciomadul (< 200 ka) point to a recurrence time of ca. 30 ka. Such an interval is in the same order of magnitude as the age of the latest volcanic event (Karátson et al. 2016), confirming the dormant (i.e. not extinct) status of the volcano as also suggested by fumarole activity (Vaselli et al. 2002; Kis et al. 2017), seismic tomography (Popa et al. 2012), and magnetotelluric surveys (Kiss et al. 2014; Harangi et al. 2015b).

Table 2 K-Ar ages obtained in this study for Ciomadul lava domes (in bold). G.M., groundmass; Pl. μP., plagioclase microphenocrysts. Sample coordinates are projected using the Universal Transverse Mercator (UTM) projection (zone 35 N)

Stage	Sample code Dome name	Easting (in m)	Northing (in m)	Elevation (m asl)	Dated phase	Fraction size (μm)	K%	$^{40}Ar^* \pm 1\sigma$ (in % of total ^{40}Ar)		$^{40}Ar^*$ relative uncertainty (%)	$^{40}Ar^* \pm 1\sigma$ ($\times 10^{11}$ at/g)		Age $\pm 1\sigma$ (in ka)		Weighted mean age $\pm 1\sigma$
1st stage	16CIO08	418,645	5,107,909	1099	G.M.	63–125	3.226	5.233	0.169	0.726	23.29	0.885	691	17	
	Muntele Puturosu							4.489	0.108	0.446	24.26	0.485	720	19	**704 ± 18**
	16CIO07	419,620	5,107,472	846	G.M.	63–125	3.585	29.213	0.089	0.373	23.78	2.592	635	10	
	Balvanyos							34.293	0.065	0.268	24.19	2.225	646	9	**641 ± 9**
	16CIO06	419,673	5,107,443	856	G.M.	63–125	3.449	4.283	0.043	0.280	15.45	0.185	429	12	
	Balvanyos							4.488	0.101	0.624	16.24	0.455	451	12	**440 ± 12**
2nd stage	16CIO01	416,986	5,114,107	866	Pl. μP.	63–125	1.336	1.025	0.201	6.438	3.127	0.206	224	26	
	Haramul Mic							1.211	0.076	2.065	3.680	0.092	264	23	**245 ± 24**
	15CIO01	413,713	5,110,905	994	G.M.	63–125	3.722	4.399	0.084	1.182	7.139	0.371	184	5	
	Dealul Cetății							4.170	0.075	1.055	7.132	0.314	183	5	**184 ± 5**
	16CIO02	413,146	5,109,912	1242	G.M.	63–125	3.471	4.266	0.055	1.055	5.220	0.235	144	4	
	Vârful Comlos							4.234	0.016	0.307	5.209	0.068	144	4	**144 ± 4**
	16CIO04	413,873	5,109,760	1260	Pl. μP.	40–80	1.391	1.209	0.029	1.655	1.725	0.034	119	10	
	Ciomadul Mare							1.508	0.049	2.322	2.102	0.074	145	10	**133 ± 18**
	15CIO09	416,664	5,111,953	902	G.M.	63–125	3.668	6.414	0.042	1.107	3.754	0.267	98	2	
	Haramul Mare							12.020	0.073	2.005	3.639	0.877	95	2	**96 ± 2**
	16CIO09	415,362	5,108,313	1101	G.M.	63–125	3.441	1.162	0.058	2.840	2.042	0.067	57	5	
	Piscul Pietros							1.323	0.063	2.797	2.239	0.083	62	5	**60 ± 5**

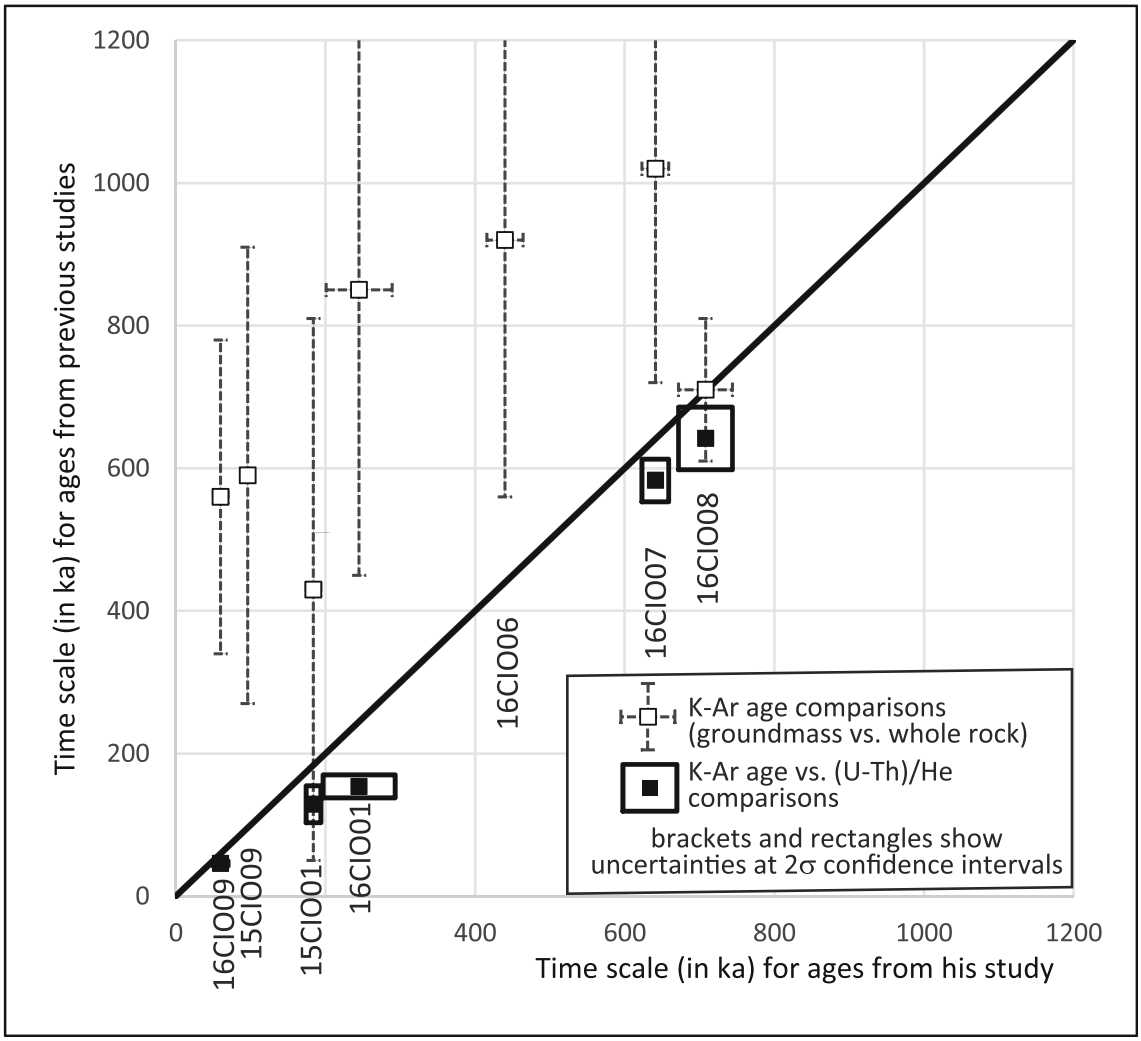


Fig. 5 Graph comparing K-Ar results and those proposed in previous studies. Each dome on this diagram is plotted according to the age obtained by this work (*X*-axis) versus the age obtained in previous studies (*Y*-axis). Error bars and black squares show 2σ (95%) confidence interval

Comparison with previous radiometric results

The issue of obtaining radiometric ages from whole rock has been demonstrated elsewhere as possibly inducing biased results (Hofmann et al. 2000; Samper et al. 2007; Germa et al. 2011a). For instance, $^{40}Ar/^{39}Ar$ dating of lava domes on Montserrat yielded an age of 223 ± 7 ka using whole rock, whereas groundmass measurements produced an age of 155 ±

Table 3 Major element concentrations for the Ciomadul lava domes (in wt%)

Sample	15CIO09	16CIO01	16CIO02	16CIO03	16CIO04	16CIO05	16CIO06	16CIO07	16CIO08	16CIO09	16CIO11
SiO_2	65.26	66.18	66.59	65.60	66.87	66.50	61.80	61.74	64.68	67.07	67.36
TiO_2	0.45	0.35	0.38	0.37	0.32	0.32	0.52	0.53	0.53	0.31	0.29
Al_2O_3	16.85	16.46	16.62	16.62	16.29	16.20	17.35	17.43	17.82	16.15	16.26
Fe_2O_3	2.86	2.41	2.47	2.51	2.28	2.28	3.54	3.65	2.22	2.11	1.99
MnO	0.06	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.07	0.07	0.04	0.05	0.04
MgO	1.93	1.54	1.64	1.67	1.52	1.51	2.18	2.22	1.33	1.39	1.32
CaO	4.03	3.55	3.66	3.65	3.22	3.26	4.78	4.94	3.56	3.00	2.89
Na_2O	4.34	4.07	4.34	4.24	4.30	4.31	4.22	4.33	4.36	4.43	4.67
K_2O	3.36	3.46	3.32	3.21	3.61	3.57	3.40	3.20	3.28	3.55	3.50
P_2O_5	0.20	0.12	0.16	0.14	0.13	0.14	0.18	0.18	0.13	0.11	0.12
LOI	0.3	1.5	0.4	1.6	1.1	1.5	1.6	1.3	1.6	1.5	1.2
Sum	99.64	99.69	99.63	99.66	99.69	99.64	99.64	99.59	99.55	99.67	99.64

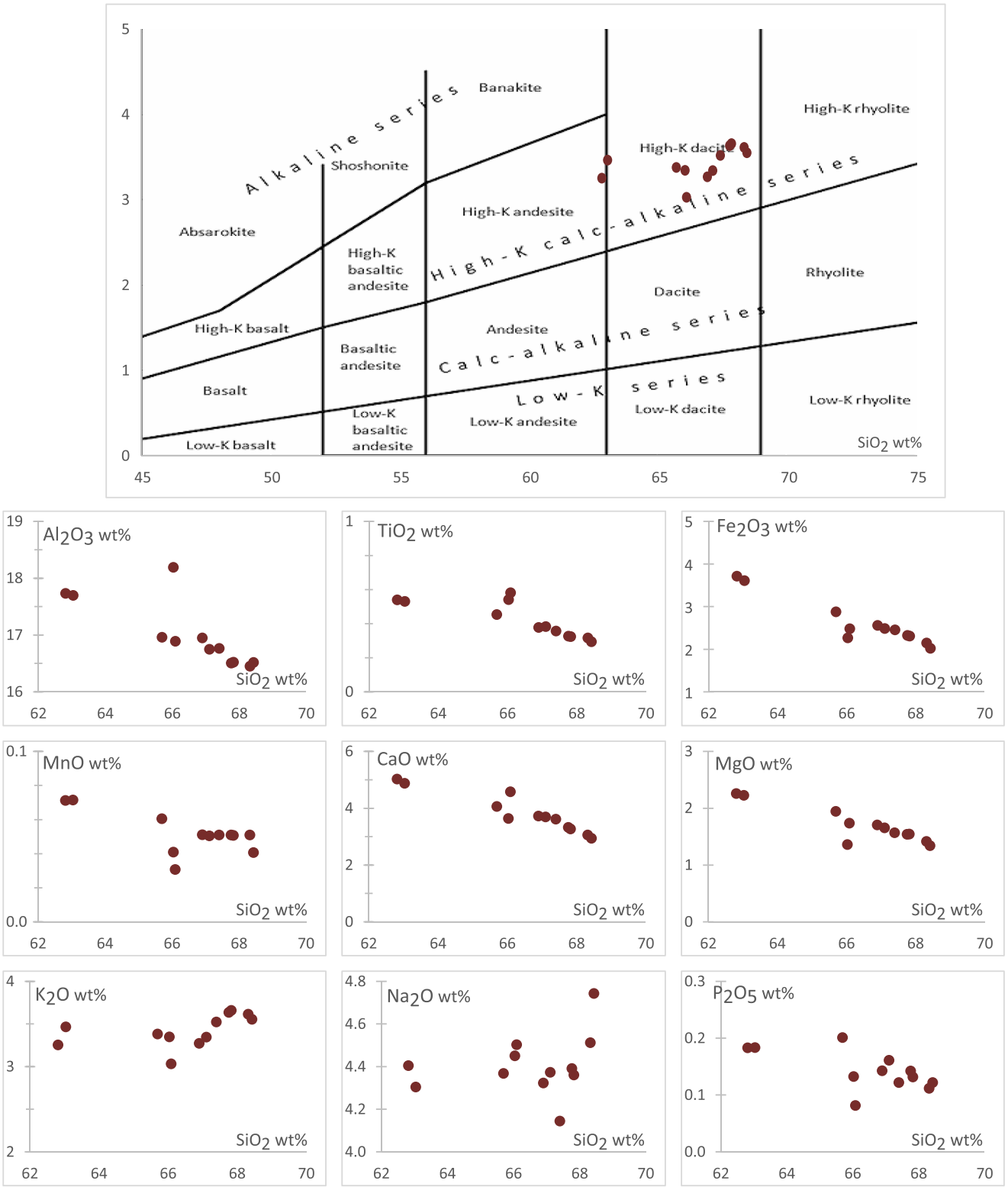


Fig. 6 **a** K_2O versus SiO_2 diagram (Peccerillo and Taylor; 1976), for Ciomadul lava dome samples. **b** Harker diagrams showing the variations of major element oxides as a function of SiO_2

5 ka (Harford et al. 2002). The same study on the active dome obtained a surprisingly old age of 426 ± 95 ka on pure plagioclase and only 21 ± 22 ka on the groundmass fraction. This bias is particularly significant for young samples where any contamination effect would be magnified proportionally to the small amount of in-grown radiogenic Ar. In contrast to various

crystal phases, the groundmass is the last phase to crystallize when the lava cools upon eruption. It is thus enriched in incompatible elements, including potassium, and in elements which are in equilibrium with the atmosphere. Hence, the initial argon isotopic ratios in the groundmass are atmospheric and are devoid of radiogenic argon ($^{40}Ar^*$).

Szakács et al. (2015) excluded the possibility of overestimated ages as they considered quartz phenocrysts as the most likely source of excess argon, which are very uncommon in the Ciomadul lavas (Kiss et al. 2014). However, as seen in Table 4 and Fig. 4, our groundmass ages contrast with those obtained from whole-rock analyses by applying the conventional K-Ar method (Pécskay et al. 1995; Szakács et al. 2015). Only one sample (16CIO08, M. Puturosu dome) has an age (704 ± 18 ka) compatible at 1σ level with that obtained from whole rock by the conventional K-Ar technique (710 ± 40 ka; Table 4). For the remaining samples, considering the 2σ level, only two out of the seven ages match, but these agreements are mostly due to the large uncertainties on conventional K-Ar results (Fig. 5, Table 4).

Biotite from the Piscul Pietros dome, which was dated by both techniques, gave comparable ages of 290 ± 110 ka by conventional K-Ar (Szakács et al. 2015) and 196 ± 4 ka by the unspiked Cassignol-Gillot technique (this work); again, the overlap of the ranges is only due to the very large error of the former. On the other hand, neither of these two ages is consistent with the age of 560 ± 110 ka initially proposed by Pécskay et al. (1992).

Our groundmass dating of the Balvanyos dome, the southeasternmost Ciomadul dome (Fig. 1), yielded ages of 641 ± 9 ka (16CIO07) and 440 ± 12 ka (16CIO06), in contrast to previous ages of 920 ± 180 ka and 1020 ± 150 ka obtained by whole-rock K-Ar dating (Pécskay et al. 1995). Again, the minimal overlap (at 2σ) with the age obtained by the unspiked Cassignol-Gillot technique is only due to the very large error. Consequently, it is likely that these ages would not be coeval, if measured with the same range of uncertainties. It thus involves a possible shift toward older ages for the whole-rock K-Ar measurements, mostly induced by inherited argon.

One of the most controversial ages of Ciomadul was assigned to the northernmost dome, Haramul Mic (Kis-Haram), with an unpublished K-Ar age of 0.85 Ma (without reported uncertainties by Casta (1980), quoted in Szakács et al. 2015). Karátson et al. (2013) argued that the recent "pancake" shape of the dome (which is in contrast to other, high and steep-sided Peléan domes and coulées of Ciomadul) is not due to the old age, but simply reflects the original flat dome shape. Indeed, we dated this dome at 245 ± 24 ka using plagioclase microphenocrysts, which provides a maximum age. Szakács et al. (2015) also reported a K-Ar age of 210 ± 50 ka obtained from a block 2 km west of the dome. In agreement with this date, our dating confirms that, after at least a ca.

Table 4 Comparison between new and previously proposed ages. For each dated dome, abundance (in vol%) is given for the following: K-bearing minerals (P.: plagioclase; B.: biotite; A.: amphibole); total of K-bearing phenocrysts (T. Ph.:); glomerocrysts (Glom.); and groundmass (G.M.); W.-R. age: previously proposed age on whole rock for the same lava dome; $Ar_{inherited}$: fraction (in %) of the total of radiogenic argon assumed to be inherited. Source: references for whole rock and (U-Th)/He ages: (1) Casta (1980); (2) Pécskay et al. (1992); (3) Pécskay et al. (1995); (4) Karátson et al. (2013); (5) Szakács et al. (2015); (6) Harangi et al. (2015b); (7) Molnár et al. (2018); (8) this work

Location	New measurements (this work)								Previously proposed ages				
	Cassignol-Gillot (unspike) method								Traditional K-Ar method			(U-Th)/He method	
	Sample	Phenocryst (vol%)			T. Ph. (vol%)	Glom. (vol%)	G.M. (vol%)	Age (in ka)	W.-R. age	Source	$Ar_{inherited}$ (%)	(U-Th)/He Age	Source
		P.	B.	A.									
Puturosul	16CIO08	19	2	5	26	1	65	704 ± 18	710 ± 50	5	1 ± 7	642 ± 44	7
Bálványos	16CIO07	25	3	8	36	14	39	641 ± 9	1020 ± 150	3	37 ± 16	583 ± 30	7
Bálványos	16CIO06	23	1	7	31	13	47	440 ± 12	920 ± 180	3	52 ± 22		
Haramul Mic	16CIO01	10	2	7	19	18	54	245 ± 24	850 ± 200	1	71 ± 29	154 ± 16	7
Dealul Cetății	15CIO01	11	2	6	19	17	56	184 ± 5	400 ± 160	5	54 ± 45	116–142	4
Haramul Mare	15CIO09	12	4	6	22	16	44	96 ± 2	590 ± 160 231 ± 5	3 8	 58 ± 3		
Piscul Pietros	16CIO09	21	2	8	30	23	47	60 ± 5	560 ± 110	2	89 ± 26	42.9 ± 1.5	6
Vârful Comlos	16CIO02	14	2	8	22	8	59	144 ± 4					
Ciomadul Mare	16CIO04	22	2	10	34	13	41	133 ± 18					

250-ky-long quiescence, extrusive activity resumed at Haramul Mic less than 250 ka ago.

The systematic offset between groundmass and whole-rock ages can be related to an extraneous ^{40}Ar component in the whole-rock measurement, which comes from the inclusion of xenocrystic minerals. To evaluate the effect of extraneous ^{40}Ar on age results, we conducted a component analysis on a thin section of sample 15CIO01 (Fig. 3a), whose groundmass was dated at 184 ± 5 ka. Our aim was to calculate a whole-rock age by combining ages of the groundmass and the plagioclase fraction (the two dominant phases) with respect to their proportions in the sample. For the calculation, the thin-section image was converted to a black and white image by setting a threshold. Below a value of 20% on the grey scale pixel is converted in black, otherwise is converted in white. This allows us to distinguish plagioclase (in white in Fig. 7a) from groundmass (in black). Because of the sample grain size (200 μm), the composition was next simulated by averaging the tone of each 200-μm-wide subset (i.e. 40-pixel-wide square zones on the image). The composition was then defined on the grey scale, from a material of pure plagioclase (100% on grey scale, i.e. white on Fig. 7a), to one fully composed of groundmass (0% on grey scale, i.e. black on Fig. 7a), including mixed material defined by an intermediate tone on grey scale (Fig. 7a). In order to highlight the composition of each grain, a colour map is also proposed (Fig. 7b). Pure plagioclase and pure groundmass grains are coloured in yellow and blue, respectively. Mixed grains are illustrated by variation of red lightness: black for grain having a composition almost similar of a groundmass grain, red for the perfectly intermediate composition (50% groundmass–50% plagioclase), white for grain having a composition almost similar of a plagioclase grain (Fig. 7b). The age of each grain population was then modelled by considering its plagioclase/groundmass ratio (dotted black curve in Fig. 7c). The thin section reveals a composition of about 11 vol% of pure plagioclase dated at 1.1 Ma (Table 5), 60 vol% of pure groundmass dated at 184 ka (Table 1), and 29 vol% of mixed grains with mixed ages (Fig. 7c). Applying the mixing theory to our multiphase and multi-age sample (Boven et al. 2001), the whole-rock age can be constrained by weighting each grain population age by its proportion of the total:

$$^{\text{W.R.}}\text{Age} = \frac{\sum_i (a_i \times p_i \times K_i)}{\sum_i (p_i \times K_i)} \quad (1)$$

where a_i, p_i, and K_i are ages (right *Y*-axis values in Fig. 7c), proportions, and K contents of each grain population *i*, respectively. Such a calculation using a whole-rock age model gives 320 ± 8 ka, 74% older than the groundmass age of 184 ± 5 ka, and in agreement with the 400 ± 160 ka age previously

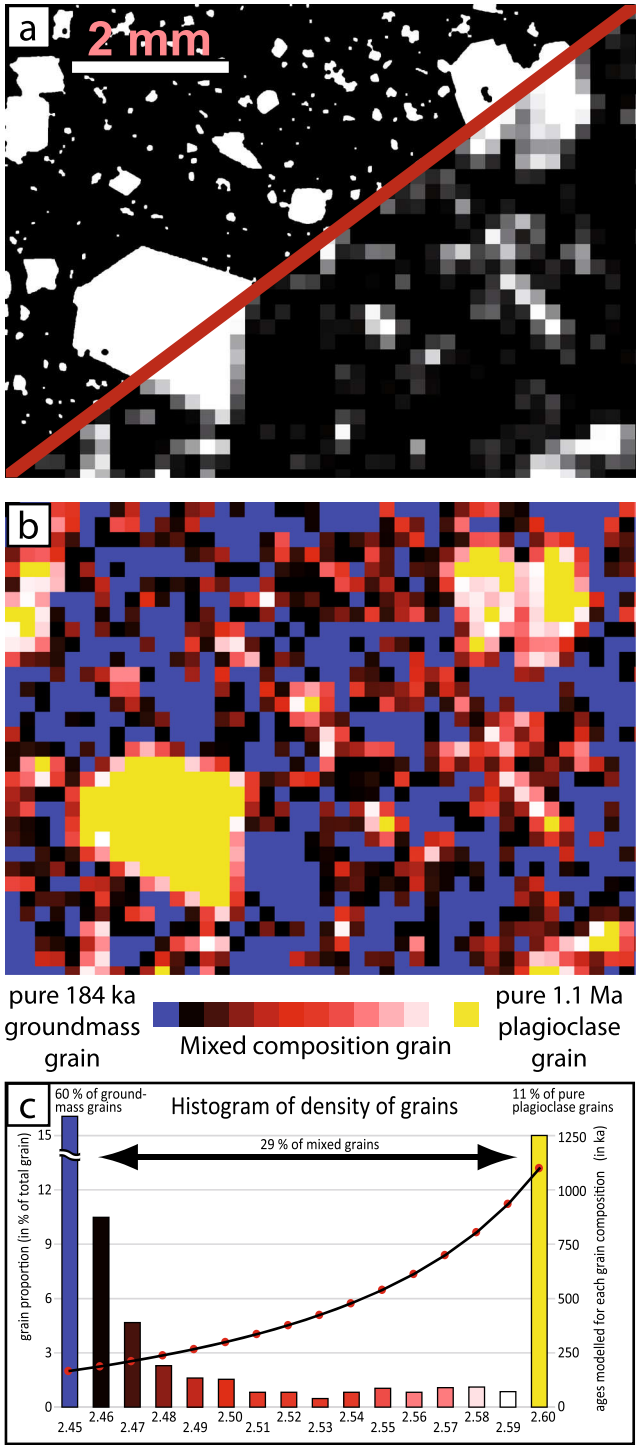


Fig. 7 Whole-rock age model from thin-section analysis (sample 15CIO01, same as Fig. 3). **a** Upper left: identification of the mineral phases by binarization; lower right: mosaicing of previous image to simulate 200-μm grain size. **b** Grain composition analysis from their grey scale properties (converted to colour for easier identification). Yellow: pure plagioclase; blue: groundmass; shaded white to red to black: mixed grains with increasing proportion of groundmass grains. **c** Distribution of the grain density proportion (left *Y*-axis) and ages modelled for each grain composition (dotted black curve scaled on the right *Y*-axis). Bottom scale defines the expected density of the respective grain populations

Table 5 K-Ar ages obtained on separated pure phases, larger grain size groundmass, and whole rock. Dated phases: Amp., Amphibole; Biot., Biotite; Gr.M., groundmass; Plag. μL., plagioclase microlites; Plag. Gl., plagioclase glomerocrysts; W.R., whole rock. Method : D.S., two-step separation; S.S., single-step separation

Sample code	Dated phase	Method	Fraction size (μm)	K%	^{40}Ar* ± 1σ (in % of total ^{40}Ar)		^{40}Ar* relative uncertainty (%)	^{40}Ar* ± 1σ (×10^{11} at/g)		Age ± 1σ (in ka)		Weighted mean age ± 1σ	
15CIO01	Amp.	S.S.	125–250	0.931	11.113	0.030	0.270	13.85	0.037	1423	24		
					27.431	0.153	0.558	13.34	0.074	1371	21	1386 ±	37
15CIO01	Plag. Gl.	S.S.	125–250	0.822	7.353	0.053	0.721	9.72	0.070	1132	24	1132 ±	24
15CIO01	Biot.	S.S.	125–250	6.532	20.605	0.024	0.116	38.88	0.045	570	9		
					16.920	0.029	0.171	38.81	0.067	569	9	569 ±	9
15CIO01	Gr.M.	S.S.	125–250	3.612	4.039	0.038	0.941	7.70	0.072	204	6		
					3.874	0.056	1.446	7.52	0.109	199	7	202 ±	6
16CIO02	Plag. Gl.	S.S.	250–500	0.655	24.750	0.087	0.352	12.66	0.044	1848	28	1848 ±	28
16CIO02	Plag. μL.	D.S.	63–125	0.654	7.503	0.036	0.480	7.32	0.035	1071	21	1071 ±	21
16CIO09	Plag. Gl.	S.S.	250–500	0.757	35.123	0.139	0.396	7.55	0.030	955	14		
					35.222	0.114	0.324	7.96	0.026	1007	15	981 ±	15
16CIO09	Plag. μL.	D.S.	63–125	1.714	6.101	0.039	0.639	3.60	0.023	201	5	201 ±	5
16CIO09	Biot.	S.S.	125–250	6.762	8.071	0.037	0.458	13.87	0.064	196	4	196 ±	4
16CIO08	Plag. μL.	D.S.	63–125	1.568	4.834	0.031	0.641	12.01	0.077	733	19		
					4.585	0.047	1.025	12.19	0.125	744	21	739 ±	20
16CIO04	Plag. μL.	D.S.	63–125	1.104	1.422	0.039	2.742	1.96	0.054	170	13		
					1.523	0.042	2.758	1.84	0.051	160	12	165 ±	12
15CIO09	W.R.	S.S.	40–500	2.119	7.907	0.120	1.518	5.10	0.077	230	6		
					7.874	0.036	0.457	5.11	0.023	231	5	231 ±	5
15CIOX2	Biot.	S.S.	125–250	5.720	3.242	0.048	1.481	33.54	0.497	561	21	561	21

obtained from whole-rock data for the same dome (Szakács et al. 2015). The whole-rock model age shows the effect of only superficially removing the inherited xenocrysts from groundmass, as performed in the previous K-Ar studies.

A relationship between the volume percentages of glomerocrysts and inherited radiogenic argon was also assessed (Table 4). To apply this, the volume percentage of glomerocrysts is obtained from thin-section analysis, and a proxy of inherited radiogenic argon is calculated as follows:

$$^{wr}Ar_i = (^{wr}Age - ^{gm}Age)/^{wr}Age \quad (2)$$

where $^{wr}Ar_i$ is the percentage of radiogenic argon assumed to have originated from inherited minerals and ^{wr}Age and ^{gm}Age are the ages obtained from whole-rock and groundmass analyses, respectively. All samples dated by both techniques were considered. The sample with no glomerocrysts (16CIO08, M. Puturosu dome) is the only one that does not display inherited argon as the whole-rock and groundmass ages are coeval. It is also the sample where the CSD plot presents the most linear relationship. This can be taken as a sign of a single crystal population, or a minimal proportion of inherited crystals (coloured curves in Fig. 4a). On the other hand, sample 15CIO09 (Haramul Mare dome) has a 25% glomerocryst content by volume, and 84 ± 35% of its radiogenic argon originates from inherited argon (Table 4). A good correlation (Pearson correlation coefficient $R \sim 0.95$) exists between glomerocryst abundance and inherited radiogenic argon (Fig. 7). This correlation remains good even if the glomerocryst-free sample (of M. Puturosu) is omitted. The correlation between glomerocryst abundance and inherited radiogenic argon allows a corrected age for the Dealul Tața dome to be derived. Thin-section analysis of the same dome lava, as dated on whole rock at 430 ± 50 ka by Szakács et al. (2015), displays a 23 vol% glomerocryst content. It contains 85 ± 20% of inherited argon (blue thin lines in Fig. 8) which implies an age of 64 ± 61 ka. This age is still poorly constrained but is consistent with those obtained here for the same area across which are younger than 144 ka (Fig. 1).

Some of our new K-Ar ages are in good agreement with published (U-Th)/He ages (Karátson et al. 2013; Harangi et al. 2015a; Molnár et al. 2018). For the M. Puturosu dome, the (U-Th)/He age of 642 ± 44 ka (Molnár et al. 2018) is similar to both the conventional K-Ar age of 710 ± 40 ka (Szakács et al. 2015) and our new K-Ar age of 704 ± 18 ka, which are all coeval at 2σ. Also, our new ages for the Balvanyos dome, 641 ± 9 ka and 440 ± 12 ka, are similar to the 583 ± 30 ka (U-Th)/He age of Molnár et al. (2018). Note, however, that there is a strong alteration of the dome rocks of the Balvanyos summit, close to where the (U-Th)/He age was obtained (Molnár et al.

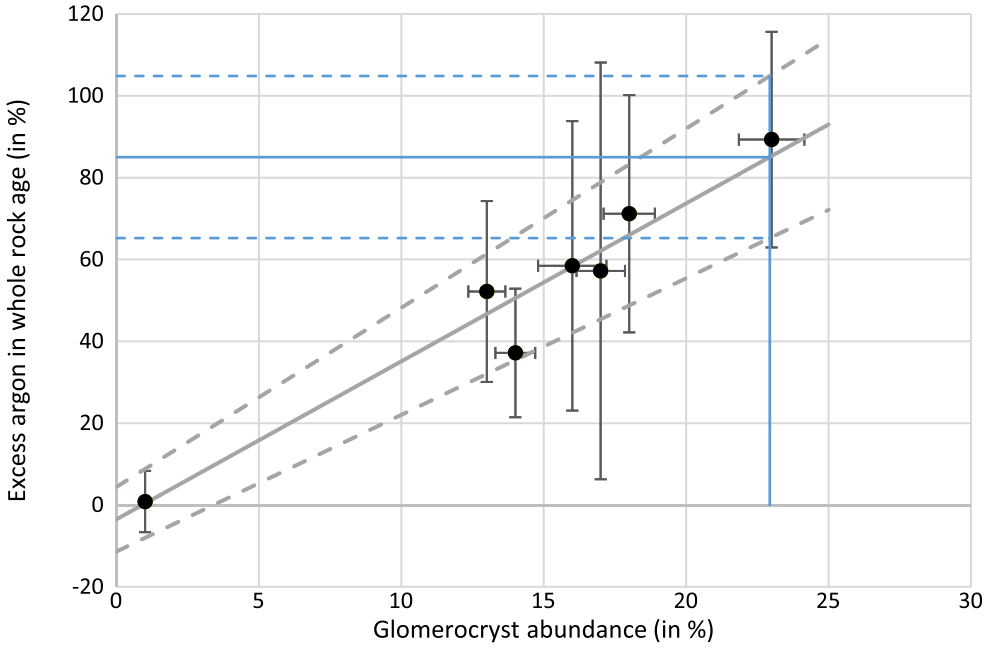


Fig. 8 Graph of the inherited argon abundance (deduced from whole-rock ages) versus abundance of glomerocrysts (in vol%). Heavy lines display a ± 1σ correlation trend. Thin horizontal lines are the estimation (± 1σ) of inherited argon abundance for the Dealul Cetății dome obtained from the analysis of its thin section in order to propose a corrected eruption age

2018). Instead, both our dated samples were taken at the periphery of the dome from talus debris containing fresh rocks. Of these samples, the position of 16CIO07 is the most proximal to the dome, and therefore the 641 ± 9 ka date is that proposed to constrain the Balvanyos dome extrusion, overlapping with the 583 ± 30 ka (U-Th)/He age at 2σ.

The Haramul Mic dome was dated at 163 ± 11 ka by (U-Th)/He by Molnár et al. (2018). This is only slightly different (at 2σ) from our age obtained from plagioclase microphenocrysts (245 ± 24 ka). In this case, because our age was considered as a maximum, the younger (U-Th)/He age is more likely. The similar age obtained by both methods confirms the conclusion that the main lava dome activity of Ciomadul started at around 200 ka.

On the other hand, there are also a number of (U-Th)/He ages which are not in agreement with our dates. Of these, the results proposed for the Dealul Cetății dome are not coeval even at 2σ: 184 ± 5 ka (this study) and ca. 116–142 ka (Karátson et al. 2013). Also, the Piscul Pietros (Köves Ponk) dacitic dome yielded an age of 60 ± 5 ka (this study), which is older than the (U-Th)/He age obtained from zircon (42.9 + 1.4–1.5 ka) by Harangi et al. (2015b). In this latter case, that the (U-Th)/He age is possibly too young could be due to three reasons. Firstly, the (U-Th)/He age is significantly lower than the 380-ka-long U-Th secular equilibrium (Farley et al. 2002). Consequently corrections of the U-Th concentration at the scale of each dated zircon is required (Schmitt et al. 2010; Danisik et al. 2012), making the ages very sensitive to the accuracy of such corrections. Secondly, for the Piscul Pietros dome, only four zircons were dated, and only the three oldest are coeval; thus, the youngest age should not be considered when calculating the average age. Using only the three coeval zircon ages yields an age of about 46 ± 4 ka which is closer to, and compatible with, our K-Ar age at 2σ. Thirdly, extraneous argon from an incomplete removal of xenocrysts for the overestimation of the K-Ar age, as well as partial loss of helium for the underestimation of the (U-Th)/He age, cannot be totally excluded. However, extraneous Ar effects, based on the careful sample preparation, are considered minor, if not negligible.

Difference between groundmass and xenocryst mineral ages

To demonstrate the occurrence of inherited argon, a whole-rock age determination was carried out for the Haramul Mare dome (sample 15CI009; Table 4) following our unspiked K-Ar technique. Several K-bearing phases were also dated to identify which of them were the most susceptible to bias by inherited argon (Table 5 and Fig. 8). With the exception of plagioclase from M. Puturosu dome, all ages were significantly older than the groundmass ages (Tables 2, 5 and Fig. 9). Consequently, the younger the juvenile lava of the dome is, the more important the influence of the xenocrysts is on the biased whole-rock age (Fig. 9).

The effect of single-step or two-step separation has been assessed by processing two aliquots of sample 15CIOO1. The groundmass obtained from single-step separation gave an age of 202 ± 6 ka, whereas an age of 184 ± 5 ka (i.e. 10% younger) was obtained from the two-step separation (Fig. 10). This age difference can be related to inherited argon from the plagioclase fraction remaining after the single-step separation, assuming that the crystals originate from grains larger than 0.125 mm, i.e. from the size range on the CSD plot that corresponds to the mixing between grains from both grain

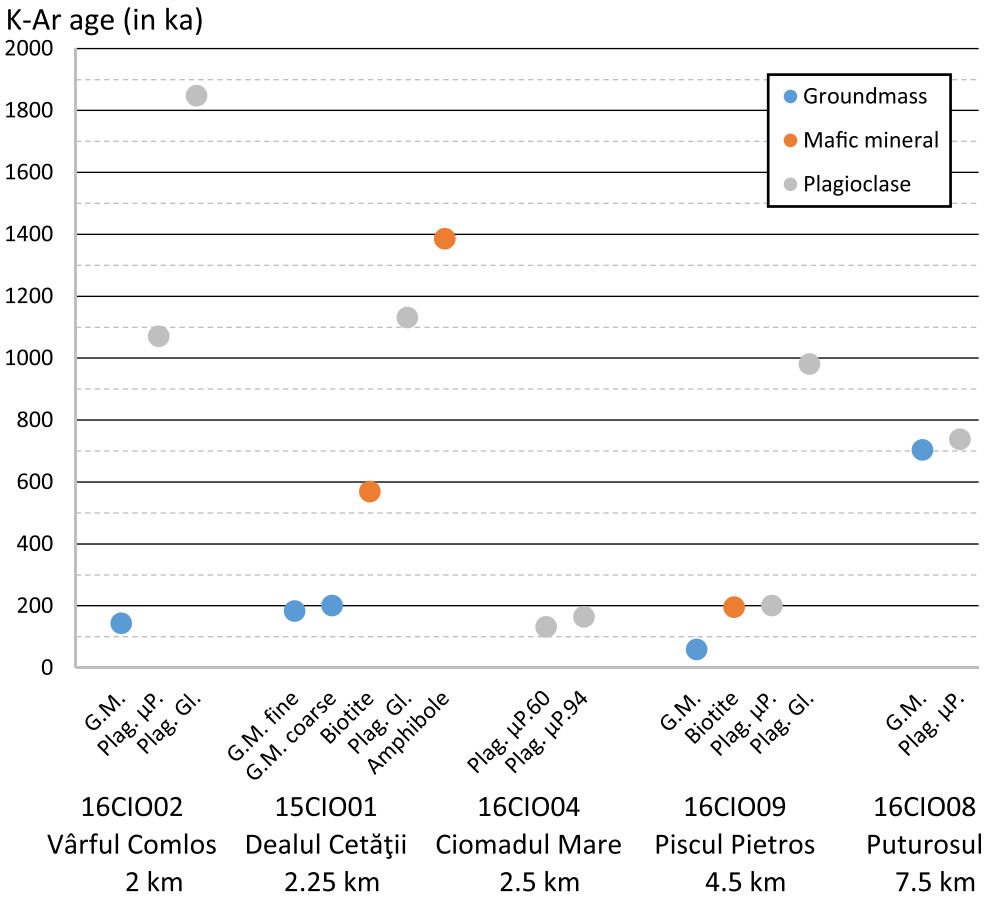


Fig. 9 Compilation of the ages obtained on groundmass and separated minerals. Samples are sorted with respect to the distance to the ~ 2-Ma-old Pilişca volcano

size populations (Fig. 4b). As the plagioclases from the glomerocrysts are significantly older (~ 1.4 Ma, see below) than the eruption age (184 ± 5 ka), even a tiny remnant of them within the dated groundmass will produce an overestimated age.

The same issue of inherited glomerocrysts can also be encountered for the late-stage pyroclastic deposits that drape the

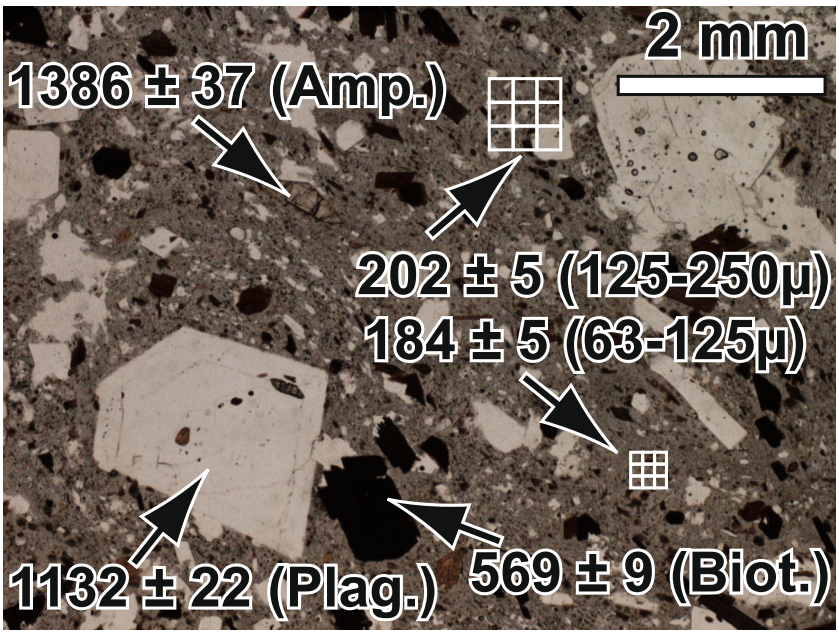


Fig. 10 Map of the ages (in ka) obtained from the different phases of the Dealul Cetății dome (15CIO01). The small and large grids correspond to the two-step and single-step procedures, respectively

lower flanks of the Ciomadul dome complex (Karátson et al. 2016). The BIX-2 block-and-ash flow deposit, ~ 3 km south of Lake St. Ana and ~ 1 km east of Bixad village (Fig. 1), for instance, is considered younger than 50 ka (Vinkler et al. 2007; Harangi et al. 2010; Karátson et al. 2016), whereas biotite phenocrysts contained within the sample of lava dome rock yielded an age of 561 ± 19 ka (15CIOX2), categorizing them as xenocrysts. We note that this age is coeval with the age obtained from biotite xenocrysts (569 ± 9 ka; Table 5) from the Dealul Cetății dome (184 ± 4 ka; Table 1 and Fig. 1) located 4 km to the north, suggesting that for both eruptions (BIX-2 block-and-ash flow and Dealul Cetății dome), the xenocrysts were inherited material originating from the same crystal mush.

The most extreme shift is encountered for the plagioclase glomerocrysts of the Vârful Comlos dome (16CIO02; Table 5). These were dated at 1848 ± 27 ka, compared with 144 ± 4 ka from the groundmass. Considering the freshness of the sample, the loss of potassium (which would increase the age) can be ruled out and, consequently, these plagioclases are considered as the oldest inherited phase incorporated in any rock sample of Ciomadul. Notably, their old age is in the range obtained for the adjacent Pilişca volcano (Pécskay et al. 1995; Szakács et al. 2015; Molnár et al. 2018; Karátson et al. 2019).

The presence of inherited glomerocrysts indicates that the dated lava dome samples do not have a single crystallization age. Furthermore, these lavas contain minerals having experienced a multi-stage crystallization history, as also confirmed by the abundance of oscillatory zoning in the larger plagioclase population (see, for instance, those in Fig. 3a). Similar assimilation of inherited argon in plagioclase, hornblende, and biotite has been reported for the Youngest Toba Tuff eruption (74 ± 4 ka), where these minerals show K-Ar ages predating the eruption by as much as 1.5 Ma (Gardner et al. 2002). In the context of Ciomadul, it has previously been suggested that the crystal mush residing beneath the volcano was rapidly (in < 100 years) remobilized by mafic magmas prior to the latest eruptions after tens of thousands of years of quiescence (Harangi et al. 2015a), as also observed in New Zealand at Taupo (Cole et al. 2014).

The following two arguments suggest that the older ages are due to the presence of argon inherited from the most retentive mineral phases: (1) the rather good correlation between K-Ar ages from the groundmass and the (U-Th)/He ages and (2) the contrast between groundmass ages and pure mineral phase ages. This latter contrast would not be so important in the case of a generalized contamination of the magma by excess argon. Indeed, excess argon tends to be relatively uncommon in minerals from silicic volcanic rocks largely because argon is highly incompatible in all major igneous minerals (Kelley 2002). As already described for Ciomadul (Kiss et al. 2014) and elsewhere (Singer et al. 1998; Stewart 2010; Doherty et al. 2012), the presence of glomerocrysts suggests a long-residence storage of silicic crystal mush in an upper crustal storage zone about 8–12 km below the surface. This may have been remobilized by any subsequent eruption of the dacitic magma (Kiss et al. 2014). At Ciomadul, our geochronological data show that a significant proportion of the "phenocrysts" in the porphyritic dacites of Ciomadul are in fact old glomerocrysts.

Magma mixing is a widespread igneous phenomenon of variable importance, particularly evident in systems where a vapor-saturated magma reservoir occurs (Anderson 1976). Such mixing between highly crystallized remnant magma of preceding activity with newly injected hot magma prior to eruption has been observed in other volcanic settings such as Unzen (Nakamura 1995), the Mascota-Amatlán de Cañas volcanic fields (Luhr et al. 1989; Gomez-Tuena et al. 2011), and the Palma Sola volcanic field (Gomez-Tuena et al. 2003) in the Trans-Mexican Volcanic Belt volcanism. Of these cases, the Los Azufres volcanic field (Mexico) shows evidence of the presence of a quartzo-feldspathic crystal mush, located at a depth of around 5–10 km (Rangel et al. 2018). Large sanidine, quartz, plagioclase, and amphibole phenocrysts and mineral clots were assimilated from this mush by a melt extraction process, probably triggered by the arrival of a hotter magma at the base of the crystal mush. This juvenile magma in turn caused reheating and partial melting of the quartzo-feldspathic crystal mush (Rangel et al. 2018).

The size effect of the analyzed minerals has also been checked by dating of plagioclases from samples 16CIO02, 16CIO04, and 16CIO09 (250–500-μm fraction from single-step preparation and 63–125-μm fraction from two-step separation). In all cases (Table 5 and Fig. 8), the larger sized fraction size gave the oldest ages. This systematic shift toward older ages of large grains substantiates that the population of large plagioclase crystals contains inherited glomerocrysts. The case of sample 16CIO09 is extreme, as the small plagioclase grains gave an age of 201 ± 5 ka, three times older than the groundmass age (60 ± 5 ka) but also five times younger than that obtained on large plagioclase xenocrysts (981 ± 15 ka). This finding implies that in the two-step fraction, a significant amount of inherited plagioclase remained in addition to juvenile minerals that crystallized during lava dome cooling. These inherited minerals are either anhedral glomerocrysts (Fig. 3a) or euhedral and zoned individual phenocrysts of plagioclase (Fig. 3a) that must have formed in the magma storage system prior to eruption. Unfortunately, because of the contrast between eruption and inherited mineral ages (which has a difference by a factor of up to 16 in sample 16CIO09), even a small portion of inherited plagioclase remaining in the microphenocrystic fraction extracted from the two-step separation will significantly increase the age obtained. This is the reason why we suggest considering the ages obtained on plagioclase microphenocrysts as maximum ages

(16CIO01 on Haramul Mic and 16CIO04 on Ciomadul Mare domes). A similar age range (1 Ma) between multiple dated fractions has been observed on a single basaltic lava sample (from the Tihany Maar Volcanic Complex, Western Hungary) from eight groundmass aliquots showing various densities and magnetic properties (Balogh and Nemeth 2005). In this later case, due to a much older eruption age (7.92 ± 0.22 Ma), the difference between the different dated fractions shows less contrast (only 20% of excess). However, as in our study, the oldest age comes from aliquots showing the highest contamination by inherited minerals, while the groundmass aliquot, whose age is closest to that of the eruption, i.e. almost free of inherited minerals, is light and magnetic.

Magmatic origin of inherited minerals

The apparent presence of inherited argon in the minerals of Ciomadul leads to questions regarding their origin with respect to the argon diffusion law in silicate minerals. Closure temperatures calculated for volume diffusion (e.g. Dodson 1973) predict that at supra-solidus temperatures, and with extended residence time (> 1 ky), every major mineral phase in these magmas should have remained fully open to argon loss prior to eruption. To explain the presence of inherited argon in magmas, it has been suggested that the incompletely reset minerals were xenocrysts with short (~ 10 years) residence times (Gansecki et al. 1996; Singer et al. 1998; Gardner et al. 2002). This mechanism is particularly likely for relatively small (< 10 km^3) magma bodies (Singer et al. 1998), such as those of Ciomadul. Similar processes operating over similar time scales have been observed at different volcanic contexts, for instance: (1) the Taupo Volcanic Zone, New Zealand, where a large variations in crystallinity and long magma time residence (up to 250 ky, i.e. same order of magnitude as in Ciomadul) are shown (e.g. Brown et al. 1998; Brown and Fletcher 1999; Matthews et al. 2012); (2) ongoing eruption of Unzen (Japan) where dacite is formed by mixing of relatively high- and low-temperature end-member magmas (Nakamura 1995; Nishimura et al. 2005). Thermo-mechanical considerations suggest that an effective reactivation of crystal mush is possible when the melt content in the magma reservoir increases to ~ 60%, allowing eruptible magma to coalesce (Bachmann and Bergantz 2004; Huber et al. 2011).

At Ciomadul, the source of glomerocrysts may be from previous crystallized magma of Ciomadul, i.e. from a disrupted crystal mush (Kiss et al. 2014). The thermobarometrical analysis of amphibole (hornblende and pargasite) crystallization present in Ciomadul rocks shows that hornblende is xenocrystic, despite the importance of this phase in some domes (Kiss et al. 2014). Plagioclase is present both as inherited glomerocrysts and phenocrysts, because it displays ages either older than (samples 15CIO01, 16CIO02, 16CIO09) or similar (16CIO08) to the groundmass ages. Crystal clots of hornblende and plagioclase observed in some domes (samples 15CIO01, 16CIO02, 16CIO03, 16CIO04, and 16CIO09) suggest that the glomerocrystic material came from sources up to 1.85 Ma old (the oldest age obtained at Ciomadul). Such populations of older crystals contain variably argon-inherited content, explaining spuriously old ages that are common in differentiated lava domes in an arc context (Harford et al. 2002; Zimmerer et al. 2016).

The dominant mechanism for the generation of kinked CSD profiles is magma mixing. This preserves a steep slope for small-sized grains and adds a gentler slope for larger sized crystals, regardless of their proportions (Higgins 2006). The larger population (phenocrysts/glomerocrysts) can be identified as crystals inherited from one of the parental magmas (crystal mush), whereas the finer population (microphenocrysts) originated from the juvenile parent magma, in addition to the microlitic groundmass. Profiles of CSD data that are particularly kinked validate such a scenario. The fact that both mafic mineral phases and plagioclase show exceedingly similar kinked CSD spectra (i.e. an abnormally large amount of coarse grains) in the Ciomadul lavas strongly supports deep-seated storage as a common feature of this magmatic contribution (Armienti et al. 1994).

The oldest reliable eruption age of the dacitic domes of Ciomadul is around 700 ka (Muntele Puturosu dacitic dome). Another Ciomadul-type dacite dome adjacent to the Pilişca volcano, Bába Laposa (942 ± 65 ka), and the andesitic dome of Dealul Mare (842 ± 53 ka), both dated by (U-Th)/He method (Molnár et al. 2018), are just slightly older. Therefore, the old age obtained on the inherited plagioclase phase (1.85 Ma) points to assimilation of xenocrysts from earlier magmatism, possibly that of the Pilişca volcano itself (Fig. 1). Incorporation of quite old xenocrysts from a crystal mush into dacitic magmas similar to those of Ciomadul has been observed in other volcanic systems. For instance, Nevado de Toluca (Mexico) experienced an eruption at ~ 13 ka where biotite, up to 4 Ma old, was incorporated and resided in the magma for only a short period of time before it erupted (Arce et al. 2006). One can note that in this example, as well as at Ciomadul, mafic-intermediate magma replenished the system since ~ 1 Ma and contributed to the eruption of new domes as well as effusive-explosive activity (Torres-Orozco et al. 2017).

From amphibole thermobarometrical studies, Kiss et al. (2014) suggested a complex and multi-zonal context of polybaric crystallization of amphibole in the mid- to upper crust beneath Ciomadul. Crystallization of these minerals occurred in a long-lived shallow storage zone (possibly shared with the neighbouring Pilişca volcano) filled with a cold crystal mush (Kiss et al. 2014) that was subsequently remobilized by the injection of a hot mafic magma, as observed at Unzen,

Montserrat, or Ruapehu volcanoes (Nakamura 1995; Murphy et al. 2000; Gamble et al. 2003).

Repose periods as long as those occurring between Ciodamul eruptions are frequently observed at these volcanoes fed by intermediate magmas. Illustrated by zircon crystallization ages ranging from tens to hundreds of thousands of years, these volcanoes have experienced prolonged and recurrent presence of melt-bearing magma (Cooper and Reid 2008; Schmitt et al. 2010; Reid et al. 2011; Rubin et al. 2016). The operation of such volcanic plumbing systems generates a large amount of glomerocrystic aggregates made up of minerals, which begin to store radiogenic argon prior to eruption. At Ciomadul, at the depth of 8–12 km proposed by Kiss et al. (2014), the expected crystal mush temperatures (240–300 °C) are in the same order of magnitude as the closure temperature for argon gas in the mineral constituting the crystal clots: ~225–300 °C for plagioclase, ~350 °C for biotite and K-feldspar, and ~600 °C for hornblende (assuming a cooling rate of 10 °C/Ma; e.g. McDougall and Harrison 1999; Cassata et al. 2009; Baxter 2010). Consequently, these minerals likely began to store radiogenic argon in the crystal mush prior to the eruption. The newly injected magma batches of Ciomadul's eruptions provided the heat to remobilize the crystal mush and its constituent mineral phases that had crystallized earlier from an evolved (silica-rich) magma. The biotite ages are significantly younger than those obtained on plagioclase and amphibole (Fig. 9). This can be interpreted as reflecting either a difference in the crystal clot ages from which the mineral originated (younger for biotite than plagioclase/amphibole). Alternatively, it may reflect a different behaviour of these minerals which come from a single source but which have a contrasting response to argon degassing when they are in contact with the replenishing magma. The former hypothesis is more speculative as incorporation of xenocrysts would include all mineral phases present in the crystal mush without segregation, whereas the latter is easily obtained by consideration of diffusion processes.

The coexistence of hornblende and plagioclase in the crystal clots supports the interpretation that the xenocrysts came from the same-aged source, and the diffusional Ar loss model implies a complete reset of radiogenic argon in the plagioclases (Gardner et al. 2002). Such results from the 74-ka Toba Tuff were interpreted incompatible with a long storage of xenocrystic minerals in the magma reservoir but, instead, were explained by contamination of the plutonic crystals, preceding the eruption by only a few years (Gardner et al. 2002). Models of diffusion in similar contexts (Gansecki et al. 1996; Gardner et al. 2002; Bachmann et al. 2007) suggest that the magma of most Ciomadul monogenetic domes assimilated the solidified and cooled crystal mush material (with trapped argon) shortly before extrusion. Consequently, the more than doubling of the xenocryst volume in the Ciomadul lava domes with time (from an average of 7% at 700 ka to ~17% at 60 ka; Fig. 11) can be interpreted as increasing assimilation of crystal mush, as it became increasingly fragmented and remobilized (Fig. 11).

Geochemical evolution of the Ciomadul lava domes

With regard to the new geochronological constraints, we can consider the main petrological and geochemical features of magma evolution through time. Samples with ages > 450 ka seem to be characterized by a higher concentration (~23 vol%) of plagioclase crystals, whereas their concentration slightly decreases toward the younger domes (~15%) (Fig. 11). This can be attributed to shorter magmatic storage for the progressively younger rocks, limiting the growth of large plagioclase phenocrysts. On the other hand, over the 700-ky-long history of Ciomadul's effusive volcanism, the proportion of xenocrysts or glomerocrystic aggregates slightly increases with time (Fig. 11).

While small groundmass microlites grew from their carrier liquid during the final phase of pre-eruptive or post-eruptive crystallization, large glomerocrysts were entrained from a crystal mush. Material erupted in later episodes contains proportionally more mush-derived material (Fig. 11), in relation to a larger amount of assimilation of the silicic crystal mush located beneath the volcano (cf. Kiss et al. 2014). Changes in phase proportions (Table 4 and Fig. 11) between Ciomadul eruptions highlight an increase of the glomerocryst entrainment efficiency during the whole Ciomadul history. With time, the proportion of crystal mush, fragmented during interaction with the new magma, increases. This induces an increasing mobility of the glomerocrysts, allowing them to be more readily remobilized, and eventually assimilated, during the injection of fresh magma. Such a scenario would explain the inherited argon increase through time as more and more inherited crystals are incorporated into the magma reaching the surface (Fig. 11).

Since 250 ka (i.e. over the main phase of Ciomadul dome activity), a temporal evolution in major element oxide concentrations can be seen (Fig. 12). With time, SiO_2 and Na_2O concentrations significantly increase, as does, to a lesser extent, K_2O. On the other hand, elements such as Fe_2O_3 and MgO, as well as Al_2O_3, CaO, and TiO_2 concentrations, slightly decrease. The evolution through time for these oxides highlights the effect of fractional crystallization and the increase of the influence of crystal mush assimilation since 250 ka. The relatively good correlation between the degree of differentiation and time, as well as the general trends in the major element data, supports a dual control by crystal-melt fractionation and crystal mush assimilation. Slightly decreasing of

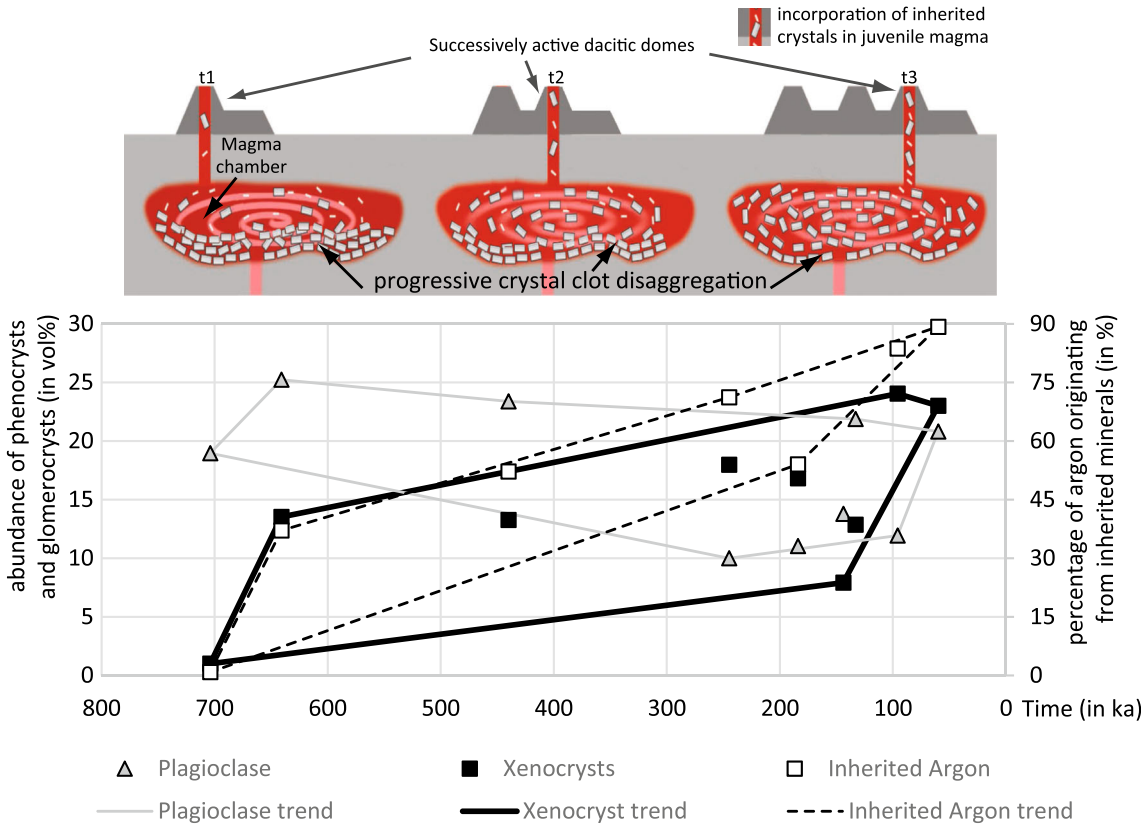


Fig. 11 Graph of the evolution of abundance of phenocrysts and glomerocrysts (in vol% of dome, on the left axis) and amount of argon inherited from xenocrysts (in %, on the right axis) versus eruption age. Boxes show global trends for each parameter. Schematic cartoon summarizing a scenario for the assimilation of xenocrysts by dacitic magma based on crystal mush disaggregation and increasing incorporation of inherited crystals in juvenile magma trough time (modified from Neave et al. 2017). The figures are not to scale

the plagioclase content through time as well as the concentrations of CaO and Al_2O_3 could be considered as paradoxical. However, geochemical data provided here are from whole rock, i.e. from crystal-rich lavas where both plagioclase phenocrysts and xenocrysts influence element oxide concentration. Consequently, the total concentration of plagioclase (phenocryst + xenocryst) present in the lavas increases through time, which is in accordance with the expected behaviour of CaO and Al_2O_3.

Conclusions

New unspiked K-Ar dates acquired mostly from the groundmass of lava samples, complemented by major elements geochemistry, provide new insights into the geochronological evolution of the extrusive history of the Late Quaternary Ciomadul volcano. Our dating effort mainly focused on the central, most voluminous, part of Ciomadul, which was hitherto poorly constrained. Following a rigorous process of sample selection and preparation by a two-step separation, we managed to obtain groundmass aliquots avoiding any traces of xenocrysts. Most ages obtained on these groundmass fractions contradict those obtained by whole-rock K-Ar dating reported in previous studies and largely agree with (U-Th)-He ages. Based on the new results, the timing of the extrusive activity at Ciomadul can be summarized as follows: (1) a first stage from ca. 850 ka to 440 ka during which minor extrusive activity occurred in the area of the Puturosu Hills; followed by (2) a shorter but more voluminous second stage from ca. 200 ka to 30 ka. During this second stage, volcanism began (between ca. 200 ka and 130 ka) when the northern and western-central parts of Ciomadul were constructed. Then, after a few tens of thousands of years of quiescence, predominantly effusive activity resumed at ~ 100 ka when the eastern-central part of the dome complex grew. This second phase of activity partly overlapped with the final, highly explosive eruptive phase that began at ~ 51 ka and ended around 29 ka (Karátson et al. 2016). As the current quiescence period of the volcano is shorter than quiescence periods occurring in its earlier history, Ciomadul cannot be considered extinct.

In addition to the groundmass ages presented here, dating efforts focussing on pure mineral phases highlight that a large amount of inherited argon is responsible for the

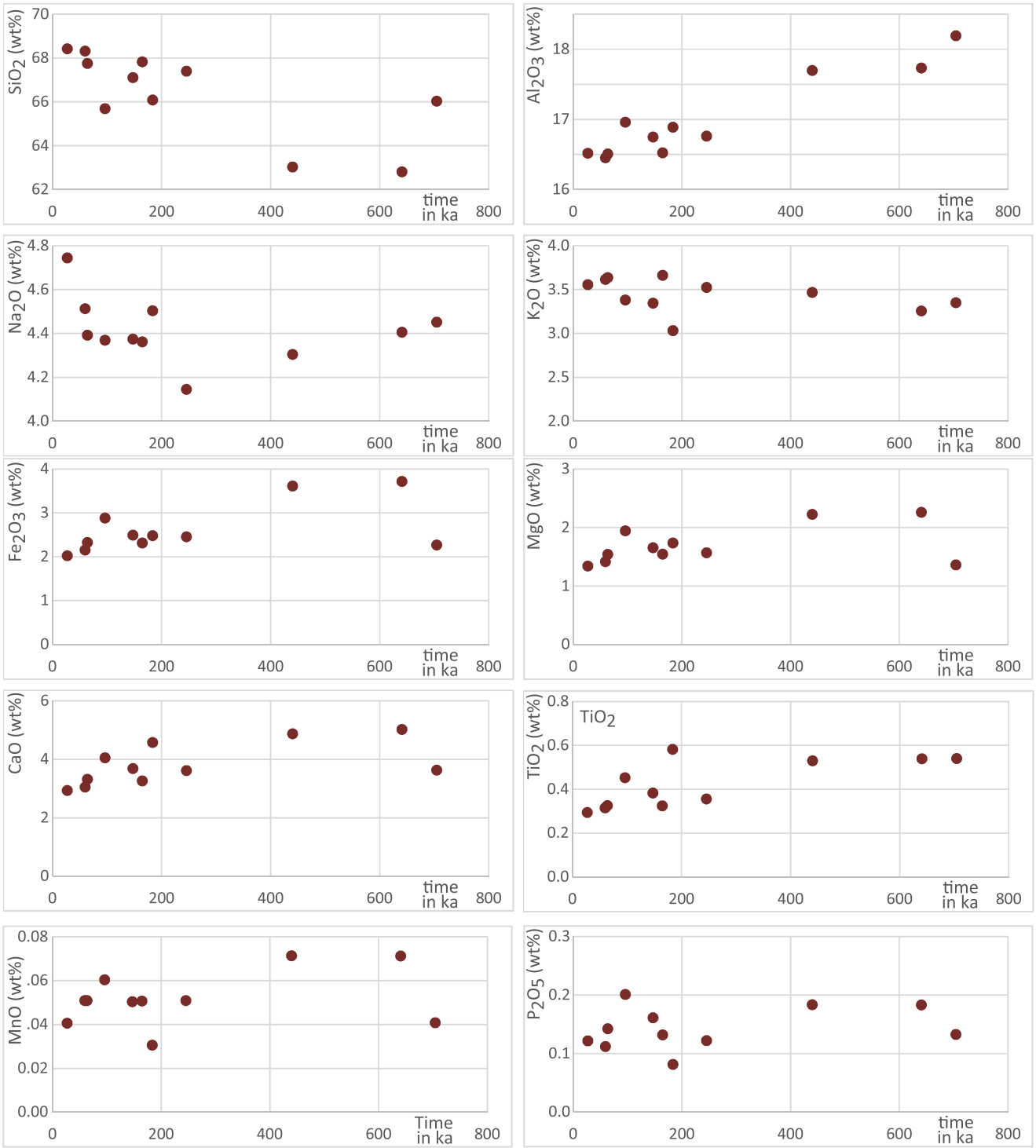


Fig. 12 Geochemical evolution of major element oxides (in wt.%) of dacitic domes of Ciomadul through time (eruption ages in ka)

obvious shift from the systematically older whole rock to the younger groundmass ages, showing a more or less linear relationship between excess argon and the abundance of inherited crystals. These crystals are more abundant in the younger rocks, indicating increasing contamination of magma by inherited crystals from a crystal mush during volcanic activity at Ciomadul. Some of the inherited crystals must have formed up to 2 Ma ago and may be associated with the neighbouring Pilişca volcano. Such a dual source of composition for the erupted material is noticeable on the kinked CSD plots of the Ciomadul dacitic lavas. Contrasting behaviour of the mineral phases during partial

degassing inside the crystal mush, from their formation to the eruption and during their incorporation into the juvenile magma, can explain the wide range of ages obtained in a single sample. Comparison with the geochemical data suggests a magmatic evolution toward more SiO_2-rich products and increasing assimilation and incorporation with time of an earlier formed crystal mush.

In summary, Ciomadul's initial, sporadic dome extrusions in the SE of the volcanic complex were followed by much larger scale extrusive activity in the central part. The good spatial resolution of the obtained ages provides the basis for an assessment of magma extrusion volumes through time (Karátson et al. 2019). The rigorous sample preparation methodology, the small errors, and a complete analysis of all previously published radiometric ages validate the reliability of the newly obtained K-Ar ages. This approach, when coupled with CSD and geochemical studies, demonstrates how such an integrated approach can inform on the evolution of magmatic systems, the activity they feed, and the time scales of evolution over hundreds to hundreds-of-thousands of years.

Acknowledgements We wish to thank Karoly Nemeth and an anonymous reviewer as well as Editors Stephen Self and Andrew Harris for their comments and suggestions, which greatly helped us to improve the clarity of the manuscript. Fruitful discussions with Carlos Palares and Xavier Quidelleur at different stages of this study have helped to clarify the ideas presented in this paper. This is Laboratoire de Géochronologie Multi-Techniques (LGMT) contribution number 146.

Funding information This research was supported by the Hungarian Scientific Research Fund NKFIH - OTKA No. K 115472 to DK.

References

Anderson A (1976) Magma mixing - petrological process and volcanological tool. J Volcanol Geotherm Res 1:3–33. https://doi.org/10.1016/0377-0273(76)90016-0

Arce JL, Macias JL, Gardner JE, Layer PW (2006) A 2.5 ka history of dacitic magmatism at Nevado de Toluca, Mexico: petrological, Ar-40/Ar-39 dating, and experimental constraints on petrogenesis. J Petrol 47:457–479. https://doi.org/10.1093/petrology/egi082

Armienti P, Pareschi M, Innocenti F, Pompilio M (1994) Effects of magma storage and ascent on the kinetics of crystal-growth - the case of the 1991-93 Mt Etna eruption. Contrib Mineral Petrol 115:402–414. https://doi.org/10.1007/BF00320974

Bachmann O, Bergantz GW (2004) On the origin of crystal-poor rhyolites: extracted from batholithic crystal mushes. J Petrol 45:1565–1582. https://doi.org/10.1093/petrology/egh019

Bachmann O, Oberli F, Dungan MA, Meier M, Mundil R, Fischer H (2007) (40)Ar/(39)Ar and U-Pb dating of the Fish Canyon magmatic system, San Juan Volcanic field, Colorado: evidence for an extended crystallization history. Chem Geol 236:134–166. https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2006.09.005

Balogh K, Nemeth K (2005) Evidence for the neogene small-volume intracontinental volcanism in Western Hungary: K/Ar geochronology of the Tihany Maar volcanic complex. Geol Carpathica 56:91–99

Balogh K, Nemeth K, Itaya T et al (2010) Loss of Ar-40(rad) from leucite-bearing basanite at low temperature: implications on K/Ar dating. Cent Eur J Geosci 2:385–398. https://doi.org/10.2478/v10085-010-0026-3

Baxter EF (2010) Diffusion of noble gases in minerals. In: Zhang YX, Cherniak DJ (eds) Diffusion in minerals and melts. pp 509–557

Blake S (1990) Viscoplastic models of lava domes. In: Lava flows and domes. Springer, Berlin, Heidelberg, pp 88–126

Boven A, Pasteels P, Kelley SP, Punzalan L, Bingen B, Demaiffe D (2001) Ar-40/Ar-39 study of plagioclases from the Rogaland anorthosite complex (SW Norway); an attempt to understand argon ages in plutonic plagioclase. Chem Geol 176:105–135. https://doi.org/10.1016/S0009-2541(00)00372-7

Brown SJA, Fletcher IR (1999) SHRIMP U-Pb dating of the preeruption growth history of zircons from the 340 ka Whakamaru Ignimbrite, New Zealand: evidence for > 250 k.y. magma residence times. Geology 27:1035–1038. https://doi.org/10.1130/0091-7613(1999)027<1035:SUPDOT>2.3.CO;2

Brown SJA, Wilson CJN, Cole JW, Wooden J (1998) The Whakamaru group ignimbrites, Taupo Volcanic Zone, New Zealand: evidence for reverse tapping of a zoned silicic magmatic system. J Volcanol Geotherm Res 84:1–37. https://doi.org/10.1016/S0377-0273(98)00020-1

Cadoux A, Pinti DL, Aznar C, Chiesa S, Gillot PY (2005) New chronological and geochemical constraints on the genesis and geological evolution of Ponza and Palmarola Volcanic Islands (Tyrrhenian Sea, Italy). LITHOS 81:121–151. https://doi.org/10.1016/j.lithos.2004.09.020

Calvert AT, Moore RB, McGeehin JP, Rodrigues da Silva AM (2006) Volcanic history and Ar-40/Ar-39 and C-14 geochronology of Terceira Island, Azores, Portugal. J Volcanol Geotherm Res 156:103–115. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2006.03.016

Cassata WS, Renne PR, Shuster DL (2009) Argon diffusion in plagioclase and implications for thermochronometry: a case study from the Bushveld Complex, South Africa. Geochim Cosmochim Acta 73:6600–6612. https://doi.org/10.1016/j.gca.2009.07.017

Cassignol C, Gillot P-Y (1982) Range and effectiveness of unspiked potassium-argon dating: experimental groundwork and applications. In: Numerical dating in stratigraphy, John Wiley & Sons. Odin G.S., pp 159–179

Casta L (1980) Les formations quaternaires de la Dépression de Braşov (Roumanie). PhD Thesis, Université de Aix-Marseille II, pp 256

Cole JW, Deering CD, Burt RM, Sewell S, Shane PAR, Matthews NE (2014) Okataina Volcanic Centre, Taupo Volcanic Zone, New Zealand: a review of volcanism and synchronous pluton development in an active, dominantly silicic caldera system. Earth-Sci Rev 128:1–17. https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2013.10.008

Condit CD, Connor CB (1996) Recurrence rates of volcanism in basaltic volcanic fields: an example from the Springerville volcanic field, Arizona. Geol Soc Am Bull 108:1225–1241. https://doi.org/10.1130/0016-7606(1996)108<1225:RROVIB>2.3.CO;2

Connor CB, Hill BE (1995) 3 nonhomogeneous Poisson models for the probability of basaltic volcanism - application to the Yucca Mountain region, Nevada. J Geophys Res-Solid Earth 100:10107–10125. https://doi.org/10.1029/95JB01055

Cooper KM, Reid MR (2008) Uranium-series crystal ages. In: Putirka KD, Tepley FJ (eds) Minerals, inclusions and volcanic processes. pp 479–544

Coulie E, Quidelleur X, Gillot PY et al (2003) Comparative K-Ar and Ar/Ar dating of Ethiopian and Yemenite Oligocene volcanism: implications for timing and duration of the Ethiopian traps. Earth Planet Sci Lett 206:477–492. https://doi.org/10.1016/S0012-821X(02)01089-0

Crisp J (1984) Rates of magma emplacement and volcanic output. J Volcanol Geotherm Res 20:177–211. https://doi.org/10.1016/0377-0273(84)90039-8

Dalrymple G, Moore J (1968) Argon-40 - excess in submarine pillow basalts from Kilauea Volcano, Hawaii. Science 161:1132. https://doi.org/10.1126/science.161.3846.1132

Damaschke M, Cronin SJ, Bebbington MS (2018) A volcanic event forecasting model for multiple tephra records, demonstrated on Mt. Taranaki, New Zealand. Bull Volcanol 80:9. https://doi.org/10.1007/s00445-017-1184-y

Danisik M, Shane P, Schmitt AK et al (2012) Re-anchoring the late Pleistocene tephrochronology of New Zealand based on concordant radiocarbon ages and combined U-238/Th-230 disequilibrium and (U-Th)/He zircon ages. Earth Planet Sci Lett 349:240–250. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2012.06.041

Dodson MH (1973) Closure temperature in cooling geochronological and petrological systems. Contrib Mineral Petrol 40:259–274. https://doi.org/10.1007/BF00373790

Doherty AL, Bodnar RJ, De Vivo B et al (2012) Bulk rock composition and geochemistry of olivine-hosted melt inclusions in the Grey Porri Tuff and selected lavas of the Monte dei Porri volcano, Salina, Aeolian Islands, southern Italy. Cent Eur J Geosci 4:338–355. https://doi.org/10.2478/s13533-011-0066-7

Farley KA, Kohn BP, Pillans B (2002) The effects of secular disequilibrium on (U-Th)/He systematics and dating of Quaternary volcanic zircon and apatite. Earth Planet Sci Lett 201:117–125. https://doi.org/10.1016/S0012-821X(02)00659-3

Gamble JA, Price RC, Smith IEM, McIntosh WC, Dunbar NW (2003) Ar-40/Ar-39 geochronology of magmatic activity, magma flux and hazards at Ruapehu volcano, Taupo Volcanic Zone, New Zealand. J Volcanol Geotherm Res 120:271–287. https://doi.org/10.1016/S0377-0273(02)00407-9

Gansecki CA, Mahood GA, McWilliams MO (1996) Ar-40/Ar-39 geochronology of rhyolites erupted following collapse of the Yellowstone caldera, Yellowstone Plateau volcanic field: implications for crustal contamination. Earth Planet Sci Lett 142:91–107. https://doi.org/10.1016/0012-821X(96)00088-X

Gardner JE, Layer PW, Rutherford MJ (2002) Phenocrysts versus xenocrysts in the youngest Toba Tuff: implications for the petrogenesis of 2800 km(3) of magma. Geology 30:347–350. https://doi.org/10.1130/0091-7613(2002)030<0347:PVXITY>2.0.CO;2

Germa A, Quidelleur X, Labanieh S, Lahitte P, Chauvel C (2010) The eruptive history of Morne Jacob volcano (Martinique Island, French West Indies): geochronology, geomorphology and geochemistry of the earliest volcanism in the recent Lesser Antilles arc. J Volcanol Geotherm Res 198:297–310. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2010.09.013

Germa A, Quidelleur X, Labanieh S, Chauvel C, Lahitte P (2011a) The volcanic evolution of Martinique Island: insights from K-Ar dating into the Lesser Antilles arc migration since the Oligocene. J Volcanol Geotherm Res 208:122–135. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2011.09.007

Germa A, Quidelleur X, Lahitte P, Labanieh S, Chauvel C (2011b) The K-Ar Cassignol-Gillot technique applied to western Martinique lavas: a record of Lesser Antilles arc activity from 2 Ma to Mount Pelee volcanism. Quat Geochronol 6:341–355. https://doi.org/10.1016/j.quageo.2011.02.001

Germa A, Lahitte P, Quidelleur X (2015) Construction and destruction of Mont Pelee volcano: volumes and rates constrained from a geomorphological model of evolution. J Geophys Res-Earth Surf 120:1206–1226. https://doi.org/10.1002/2014JF003355

Gertisser R, Charbonnier SJ, Keller J, Quidelleur X (2012) The geological evolution of Merapi volcano, Central Java, Indonesia. Bull Volcanol 74:1213–1233. https://doi.org/10.1007/s00445-012-0591-3

Gillot P-Y, Cornette Y (1986) The Cassignol technique for potassium - argon dating, precision and accuracy - examples from the late Pleistocene to recent volcanics from southern Italy. Chem Geol 59:205–222

Gillot P-Y, Cornette Y, Max N, Floris B (1992) Two reference materials, trachytes MDO-G and ISH-G, for argon dating (KeAr and 40Ar/39Ar) of Pleistocene and Holocene rocks. Geostand Newslett 16:55–60. https://doi.org/10.1111/j.1751-908X.1992.tb00487.x

Gillot P-Y, Hildenbrand A, Lefevre JC, Albore-Livadie C (2006) The K/Ar dating method: principle, analytical techniques, and application to Holocene volcanic eruptions in southern Italy. Acta Vulcanol 18:55–66

Gomez-Tuena A, LaGatta AB, Langmuir CH et al (2003) Temporal control of subduction magmatism in the eastern Trans-Mexican Volcanic Belt: mantle sources, slab contributions, and crustal contamination. Geochem Geophys Geosyst 4:8912. https://doi.org/10.1029/2003GC000524

Gomez-Tuena A, Mori L, Goldstein SL, Perez-Arvizu O (2011) Magmatic diversity of western Mexico as a function of metamorphic transformations in the subducted oceanic plate. Geochim Cosmochim Acta 75:213–241. https://doi.org/10.1016/j.gca.2010.09.029

Harangi S, Molnár M, Vinkler AP, Kiss B, Jull AJT, Leonard AG (2010) Radiocarbon dating of the last volcanic eruptions of Ciomadul volcano, Southeast Carpathians, eastern-central Europe. Radiocarbon 52:1498–1507

Harangi S, Lukács R, Schmitt AK, Dunkl I, Molnár K, Kiss B, Seghedi I, Novothny Á, Molnár M (2015a) Constraints on the timing of Quaternary volcanism and duration of magma residence at Ciomadul volcano, east–central Europe, from combined U–Th/He and U–Th zircon geochronology. J Volcanol Geotherm Res 301:66–80. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2015.05.002

Harangi S, Novák A, Kiss B, Seghedi I, Lukács R, Szarka L, Wesztergom V, Metwaly M, Gribovszki K (2015b) Combined magnetotelluric and petrologic constrains for the nature of the magma storage system beneath the Late Pleistocene Ciomadul volcano (SE Carpathians). J Volcanol Geotherm Res 290:82–96. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2014.12.006

Harford C, Pringle MS, Sparks RSJ, Young SR (2002) The volcanic evolution of Montserrat using 40Ar/39Ar geochronology. In: The eruption of Soufrière Hills Volcano, Montserrat, from 1995 to 1999, The Geological Society Memoirs. Druitt TH, Kokelaar BP (eds) London, pp 93–113

Heizler MT, Perry FV, Crowe BM, Peters L, Appelt R (1999) The age of Lathrop Wells volcanic center: an Ar-40/Ar-39 dating investigation. J Geophys Res-Solid Earth 104:767–804. https://doi.org/10.1029/1998JB900002

Higgins MD (1996) Crystal size distributions and other quantitative textural measurements in lavas and tuff from Egmont volcano (Mt Taranaki), New Zealand. Bull Volcanol 58:194–204. https://doi.org/10.1007/s004450050135

Higgins MD (2002) Closure in crystal size distributions (CSD), verification of CSD calculations, and the significance of CSD fans. Am Mineral 87:171–175

Higgins MD (2006) Quantitative textural measurements in igneous and metamorphic petrology. Cambridge University Press, Cambridge

Higgins MD, Roberge J (2007) Three magmatic components in the 1973 eruption of Eldfell volcano, Iceland: evidence from plagioclase crystal size distribution (CSD) and geochemistry. J Volcanol Geotherm Res 161:247–260. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2006.12.002

Hildenbrand A, Gillot P-Y, Le Roy I (2004) Volcano-tectonic and geochemical evolution of an oceanic intra-plate volcano: Tahiti-Nui (French Polynesia). Earth Planet Sci Lett 217:349–365. https://doi.org/10.1016/S0012-821X(03)00599-5

Hildenbrand A, Weis D, Madureira P, Marques FO (2014) Recent plate re-organization at the Azores Triple Junction: evidence from combined geochemical and geochronological data on Faial, S.Jorge and Terceira volcanic islands. Lithos 210:27–39. https://doi.org/10.1016/j.lithos2014.09.009

Hofmann C, Feraud G, Courtillot V (2000) Ar-40/Ar-39 dating of mineral separates and whole rocks from the Western Ghats lava pile: further constraints on duration and age of the Deccan traps. Earth Planet Sci Lett 180:13–27. https://doi.org/10.1016/S0012-821X(00)00159-X

Hora JM, Singer BS, Woerner G (2007) Volcano evolution and eruptive flux on the thick crust of the Andean Central Volcanic Zone: Ar-40/Ar-39 constraints from Volcan Parinacota, Chile. Geol Soc Am Bull 119:343–362. https://doi.org/10.1130/B25954.1

Huber C, Bachmann O, Dufek J (2011) Thermo-mechanical reactivation of locked crystal mushes: melting-induced internal fracturing and assimilation processes in magmas. Earth Planet Sci Lett 304:443–454. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2011.02.022

Karátson D, Timár G (2005) Comparative volumetric calculations of two segments of the Carpathian Neogene/Quaternary volcanic chain using SRTM elevation data: implications for erosion and magma output rates. In: Thouret JC, Chester DK (eds) Volcanic landforms, processes and hazards. pp 19–35

Karátson D, Telbisz T, Harangi S, Magyari E, Dunkl I, Kiss B, Jánosi C, Veres D, Braun M, Fodor E, Biró T, Kósik S, von Eynatten H, Lin D (2013) Morphometrical and geochronological constraints on the youngest eruptive activity in east-Central Europe at the Ciomadul (Csomad) lava dome complex, East Carpathians. J Volcanol Geotherm Res 255:43–56. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2013.01.013

Karátson D, Wulf S, Veres D, Magyari EK, Gertisser R, Timar-Gabor A, Novothny Á, Telbisz T, Szalai Z, Anechitei-Deacu V, Appelt O, Bormann M, Jánosi C, Hubay K, Schäbitz F (2016) The latest explosive eruptions of Ciomadul (Csomad) volcano, East Carpathians - a tephrostratigraphic approach for the 51-29 ka BP time interval. J Volcanol Geotherm Res 319:29–51. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2016.03.005

Karátson D, Telbisz T, Dibacto S, Lahitte P, Szakács A, Veres D, Gertisser R, Jánosi Cs, Timár G (2019) Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part II: magma output rates. Bull Volcanol (this volume)

Kelley S (2002) Excess argon in K-Ar and Ar-Ar geochronology. Chem Geol 188:1–22. https://doi.org/10.1016/S0009-2541(02)00064-5

Kereszturi G, Bebbington M, Nemeth K (2017) Forecasting transitions in monogenetic eruptions using the geologic record. Geology 45:283–286. https://doi.org/10.1130/G38596.1

Kersting AB, Arculus PJ (1994) Klyuchevskoy volcano, Kamchatka, Russia - the role of high-flux recharged, tapped, and fractionated magma chamber(s) in the genesis of high-AL2O3 from high-MgO basalt. J Petrol 35:1–41

Kis B-M, Ionescu A, Cardellini C, Harangi S, Baciu C, Caracausi A, Viveiros F (2017) Quantification of carbon dioxide emissions of Ciomadul, the youngest volcano of the Carpathian-Pannonian Region (Eastern-Central Europe, Romania). J Volcanol Geotherm Res 341:119–130. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2017.05.025

Kiss B, Harangi S, Ntaflos T, Mason PRD, Pál-Molnár E (2014) Amphibole perspective to unravel pre-eruptive processes and conditions in volcanic plumbing systems beneath intermediate arc volcanoes: a case study from Ciomadul volcano (SE Carpathians). Contrib Mineral Petrol 167. https://doi.org/10.1007/s00410-014-0986-6

Lahitte P, Coulie E, Mercier N et al (2001) K-Ar and TL volcanism chronology of the southern ends of the Red Sea spreading in Afar since 300 ka. C R Acad Sci Paris Sci Terre Planètes 332:13–20. https://doi.org/10.1016/S1251-8050(00)01491-9

Lahitte P, Samper A, Quidelleur X (2012) DEM-based reconstruction of southern Basse-Terre volcanoes (Guadeloupe archipelago, FWI): contribution to the Lesser Antilles Arc construction rates and magma production. Geomorphology 136:148–164. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.04.008

Lexa J, Seghedi I, Nemeth K et al (2010) Neogene-Quaternary volcanic forms in the Carpathian-Pannonian Region: a review. Cent Eur J Geosci 2:207–U75. https://doi.org/10.2478/v10085-010-0024-5

Luhr JF, Allan J, Carmichael I et al (1989) Primitive calc-alkaline and alkaline rock types from the Western Mexican Volcanic Belt. J Geophys Res Solid Earth Planets 94:4515–4530. https://doi.org/10.1029/JB094iB04p04515

Marsh BD (1988) Crystal size distribution (CSD) in rocks and the kinetics and dynamics. Contrib Mineral Petrol 99:277–291. https://doi.org/10.1007/BF00375362

Marzocchi W, Zaccarelli L (2006) A quantitative model for the time-size distribution of eruptions. J Geophys Res Solid Earth 111:B04204. https://doi.org/10.1029/2005JB003709

Matenco L, Bertotti G, Leever K, Cloetingh S, Schmid SM, Tărăpoancă M, Dinu C (2007) Large-scale deformation in a locked collisional boundary: interplay between subsidence and uplift, intraplate stress, and inherited lithospheric structure in the late stage of the SE Carpathians evolution. Tectonics 26:TC4011. https://doi.org/10.1029/2006TC001951

Matthews NE, Pyle DM, Smith VC, Wilson CJN, Huber C, van Hinsberg V (2012) Quartz zoning and the pre-eruptive evolution of the similar to 340-ka Whakamaru magma systems, New Zealand. Contrib Mineral Petrol 163:87–107. https://doi.org/10.1007/s00410-011-0660-1

McDougall I, Harrison TM (1999) Geochronology and thermochronology by the 40Ar/39Ar method, 2nd edn. Oxford University Press, New York

McDougall I, Polach H, Stipp J (1969) Excess radiogenic argon in young subaerial basalts from Auckland volcanic field New Zealand. Geochim Cosmochim Acta 33:1485–1520. https://doi.org/10.1016/0016-7037(69)90152-5

Mock A, Jerram DA (2005) Crystal size distributions (CSD) in three dimensions: insights from the 3D reconstruction of a highly porphyritic rhyolite. J Petrol 46:1525–1541. https://doi.org/10.1093/petrology/egi024

Molnár K, Harangi S, Lukács R et al (2018) The onset of the volcanism in the Ciomadul Volcanic Dome Complex (Eastern Carpathians): eruption chronology and magma type variation. J Volcanol Geotherm Res. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2018.01.025

Morgan DJ, Jerram DA (2006) On estimating crystal shape for crystal size distribution analysis. J Volcanol Geotherm Res 154:1–7. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2005.09.016

Moriya I, Okuno M, Nakamura T, et al (1996) Radiocarbon ages of charcoal fragments from the pumice flow deposit of the last eruption of Ciomadul volcano, Romania. In: Summaries of Researches using AMS. Nagoya University 7, pp 255–257

Murphy MD, Sparks RSJ, Barclay J et al (2000) Remobilization of andesite magma by intrusion of mafic magma at the Soufriere Hills Volcano, Montserrat, West Indies. J Petrol 41:21–42. https://doi.org/10.1093/petrology/41.1.21

Nakamura M (1995) Continuous mixing of crystal mush and replenished magma in the ongoing Unzen eruption. Geology 23:807–810. https://doi.org/10.1130/0091-7613(1995)023<0807:CMOCMA>2.3.CO;2

Neave DA, Buisman I, Maclennnnan J (2017) Continuous mush disaggregation during the long-lasting Laki fissure eruption, Iceland. Am Mineral 102:2007–2021. https://doi.org/10.2138/am-2017-6015CCBY

Nemeth K, Kereszturi G (2015) Monogenetic volcanism: personal views and discussion. Int J Earth Sci 104:2131–2146. https://doi.org/10.1007/s00531-015-1243-6

Nishimura K, Kawamoto T, Kobayashi T, Sugimoto T, Yamashita S (2005) Melt inclusion analysis of the Unzen 1991-1995 dacite: implications for crystallization processes of dacite magma. Bull Volcanol 67:648–662. https://doi.org/10.1007/s00445-004-0400-8

Ozawa A, Tagami T, Kamata H (2006) Argon isotopic composition of some Hawaiian historical lavas. Chem Geol 226:66–72. https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2005.10.001

Pécskay Z, Szakács A, Seghedi I, Karátson D (1992) New data on the geochronological interpretation of Cucu volcano and its environs (South Harghita, Romania). Hung Földt Közl 122(2–4):265–286

Pécskay Z, Lexa J, Szakacs A et al (1995) Space and time distribution of Neogene-Quaternary volcanism in the Carpatho- Pannonian Region. Acta Vulcanol 7:15–28

Pécskay Z, Lexa J, Szakacs A et al (2006) Geochronology of Neogene magmatism in the Carpathian arc and intra-Carpathian area. Geol Carpath 57:511–530

Popa M, Radulian M, Szakács A, Seghedi I, Zaharia B (2012) New seismic and tomography data in the southern part of the Harghita Mountains (Romania, Southeastern Carpathians): connection with recent volcanic activity. Pure Appl Geophys 169:1557–1573. https://doi.org/10.1007/s00024-011-0428-6

Quidelleur X, Gillot PY, Soler V, Lefevre JC (2001) K/Ar dating extended into the last millennium: application to the youngest effusive episode of the Teide volcano (Spain). Geophys Res Lett 28:3067–3070. https://doi.org/10.1029/2000GL012821

Rangel E, Arce JL, Macias JL (2018) Storage conditions of the similar to 29 ka rhyolitic Guangoche White Pumice Sequence, Los Azufres Volcanic Field, Central Mexico. J Volcanol Geotherm Res 358:132–148. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2018.03.016

Reid MR, Vazquez JA, Schmitt AK (2011) Zircon-scale insights into the history of a Supervolcano, Bishop Tuff, Long Valley, California, with implications for the Ti-in-zircon geothermometer. Contrib Mineral Petrol 161:293–311. https://doi.org/10.1007/s00410-010-0532-0

Reyes-Guzman N, Siebe C, Chevrel MO et al (2018) Geology and radiometric dating of Quaternary monogenetic volcanism in the western Zacapu lacustrine basin (Michoacan, Mexico): implications for archeology and future hazard evaluations. Bull Volcanol 80:18. https://doi.org/10.1007/s00445-018-1193-5

Rubin A, Cooper KM, Leever M, Wimpenny J, Deering C, Rooney T, Gravley D, Yin QZ (2016) Changes in magma storage conditions following caldera collapse at Okataina Volcanic Center, New Zealand. Contrib Mineral Petrol 171:4. https://doi.org/10.1007/s00410-015-1216-6

Samper A, Quidelleur X, Lahitte P, Mollex D (2007) Timing of effusive volcanism and collapse events within an oceanic arc island: Basse-Terre, Guadeloupe archipelago (Lesser Antilles Arc). Earth Planet Sci Lett 258:175–191. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.03.030

Samper A, Quidelleur X, Komorowski J-C, Lahitte P, Boudon G (2009) Effusive history of the Grande Decouverte Volcanic Complex, southern Basse-Terre (Guadeloupe, French West Indies) from new K-Ar Cassignol-Gillot ages. J Volcanol Geotherm Res 187:117–130. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2009.08.016

Schimmelpfennig I, Benedetti L, Garreta V, Pik R, Blard PH, Burnard P, Bourlès D, Finkel R, Ammon K, Dunai T (2011) Calibration of cosmogenic Cl-36 production rates from Ca and K spallation in lava flows from Mt. Etna (38 degrees N, Italy) and Payun Matru (36 degrees S, Argentina). Geochim Cosmochim Acta 75:2611–2632. https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.02.013

Schmitt AK, Stockli DF, Niedermann S, Lovera OM, Hausback BP (2010) Eruption ages of Las Tres Virgenes volcano (Baja California): a tale of two helium isotopes. Quat Geochronol 5:503–511. https://doi.org/10.1016/j.quageo.2010.02.004

Shane P, Martin SB, Smith VC, Beggs KF, Darragh MB, Cole JW, Nairn IA (2007) Multiple rhyolite magmas and basalt injection in the 17.7 ka Rerewhakaaitu eruption episode from Tarawera volcanic complex, New Zealand. J Volcanol Geotherm Res 164:1–26. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2007.04.003

Singer BS, Thompson RA, Dungan MA, Feeley TC, Nelson ST, Pickens JC, Brown LL, Wulff AW, Davidson JP, Metzger J (1997) Volcanism and erosion during the past 930 ky at the Tatara San Pedro complex, Chilean Andes. Geol Soc Am Bull 109:127–142. https://doi.org/10.1130/0016-7606(1997)109<0127:VAEDTP>2.3.CO;2

Singer BS, Wijbrans JR, Nelson ST, Pringle MS, Feeley TC, Dungan MA (1998) Inherited argon in a Pleistocene andesite lava: 40Ar/39Ar incremental-heating and laser-fusion analyses of plagioclase. Geology 26:427–430

Smith VC, Shane P, Nairn IA (2004) Reactivation of a rhyolitic magma body by new rhyolitic intrusion before the 15.8 ka Rotorua eruptive episode: implications for magma storage in the Okataina Volcanic Centre, New Zealand. J Geol Soc 161:757–772. https://doi.org/10.1144/0016-764903-092

Smith VC, Shane P, Nairn IA (2005) Trends in rhyolite geochemistry, mineralogy, and magma storage during the last 50 kyr at Okataina and Taupo volcanic centres, Taupo Volcanic Zone, New Zealand. J Volcanol Geotherm Res 148:372–406. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2005.05.005

Steiger R, Jager E (1977) Subcommission on geochronology - convention on use of decay constants in geochronology and cosmochronology. Earth Planet Sci Lett 36:359–362. https://doi.org/10.1016/0012-821X(77)90060-7

Stewart RB (2010) Andesites as magmatic liquids or liquid-crystal mixtures; insights from Egmont and Ruapehu volcanoes, New Zealand. Cent Eur J Geosci 2:329–338. https://doi.org/10.2478/v10085-010-0022-7

Szabo C, Harangi S, Csontos L (1992) Review of Neogene and Quaternary volcanism of the Carpathian Pannonian region. Tectonophysics 208:243–256. https://doi.org/10.1016/0040-1951(92)90347-9

Szakács A, Seghedi I (1995) The Călimani–Gurghiu–Harghita volcanic chain, East Carpathians, Romania: volcanological features. Acta Volcanol 7:145–153

Szakács A, Seghedi I, Pécskay Z (1993) Peculiarities of South Harghita Mts. as terminal segment of the Carpathian Neogene to Quaternary volcanic chain. Rev Roum Géol Géophys Géogr Géol 37:21–37

Szakács A, Seghedi I, Pécskay Z, Mirea V (2015) Eruptive history of a low-frequency and low-output rate Pleistocene volcano, Ciomadul, South Harghita Mts., Romania. Bull Volcanol 77. https://doi.org/10.1007/s00445-014-0894-7

Tanaka K, Shoemaker E, Ulrich G, Wolfe E (1986) Migration of volcanism in the San Francisco volcanic field, Arizona. Geol Soc Am Bull 97:129–141. https://doi.org/10.1130/0016-7606(1986)97<129:MOVITS>2.0.CO;2

Torres-Orozco R, Arce JL, Layer PW, Benowitz JA (2017) The Quaternary history of effusive volcanism of the Nevado de Toluca area, Central Mexico. J S Am Earth Sci 79:12–39. https://doi.org/10.1016/j.jsames.2017.07.008

Turner MB, Bebbington MS, Cronin SJ, Stewart RB (2009) Merging eruption datasets: building an integrated Holocene eruptive record for Mt Taranaki, New Zealand. Bull Volcanol 71:903–918. https://doi.org/10.1007/s00445-009-0274-x

Turner MB, Cronin SJ, Bebbington MS, Smith IEM, Stewart RB (2011) Integrating records of explosive and effusive activity from proximal and distal sequences: Mt. Taranaki, New Zealand. Quat Int 246:364–373. https://doi.org/10.1016/j.quaint.2011.07.006

Vaselli O, Minissale A, Tassi F, Magro G, Seghedi I, Ioane D, Szakacs A (2002) A geochemical traverse across the Eastern Carpathians (Romania): constraints on the origin and evolution of the mineral water and gas discharges. Chem Geol 182:637–654. https://doi.org/10.1016/S0009-2541(01)00348-5

Vinkler A, Harangi S, Ntaflos T, Szakács A (2007) Petrology and geochemistry of pumices from the Ciomadul volcano (Eastern Carpathians)—implication for petrogenetic processes. (in Hungarian with an English abstract). Foldtani Kozlony 103–128

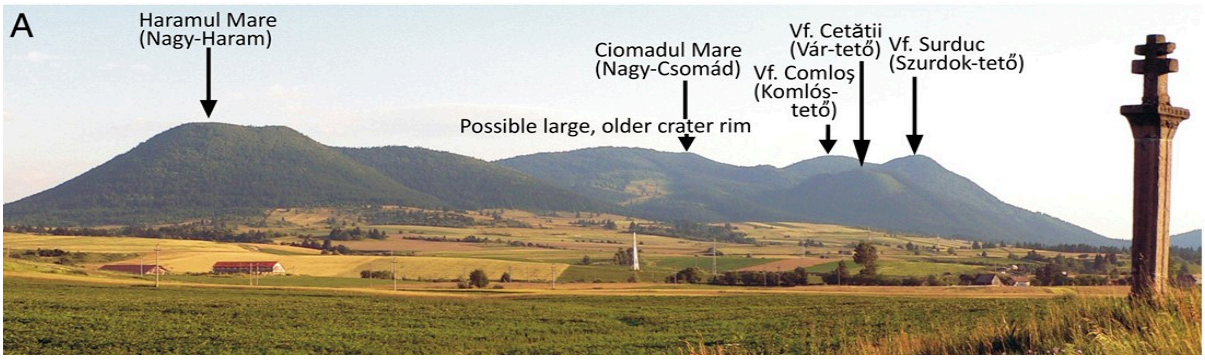
Wulf S, Fedorowicz S, Veres D, Łanczont M, Karátson D, Gertisser R, Bormann M, Magyari E, Appelt O, Hambach U, Gozhyk PF (2016) The "Roxolany Tephra" (Ukraine) - new evidence for an origin from Ciomadul volcano, East Carpathians. J Quat Sci 31:565–576. https://doi.org/10.1002/jqs.2879

Zellmer G, Turner S, Hawkesworth C (2000) Timescales of destructive plate margin magmatism: new insights from Santorini, Aegean volcanic arc. Earth Planet Sci Lett 174:265–281. https://doi.org/10.1016/S0012-821X(99)00266-6

Zellmer GF, Sparks RSJ, Hawkesworth CJ, Wiedenbeck M (2003) Magma emplacement and remobilization timescales beneath Montserrat: insights from Sr and Ba zonation in plagioclase phenocrysts. J Petrol 44:1413–1431. https://doi.org/10.1093/petrology/44.8.1413

Zimmerer MJ, Lafferty J, Coble MA (2016) The eruptive and magmatic history of the youngest pulse of volcanism at the Valles caldera: implications for successfully dating late Quaternary eruptions. J Volcanol Geotherm Res 310:50–57. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2015.11.021

IV.3 Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part II: timing of lava dome activity



Vue Panoramique du complexe volcanique de Ciomadul (Karátson et al., 2013)

(Article)

D. Karátson ; T. Telbisz ; **S. Dibacto** ; P. Lahitte ; A. Szakács ; D. Veres ; R. Gertisser ; Cs. Jánosi ; G. Timár
Published 2019: International Association of Volcanology & Chemistry of the Earth's Interior

Bulletin of Volcanology (2019) 81: 28
https://doi.org/10.1007/s00445-019-1287-8

RESEARCH ARTICLE

Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part II: magma output rates

D. Karátson[1] · T. Telbisz[1] · S. Dibacto[2] · P. Lahitte[2] · A. Szakács[3] · D. Veres[4] · R. Gertisser[5] · Cs. Jánosi[6] · G. Timár[7]

Received: 11 October 2018 / Accepted: 5 March 2019 / Published online: 29 March 2019
© The Author(s) 2019

Abstract

This study, which builds on high-precision unspiked Cassignol-Gillot K-Ar age determinations, presents an advanced DEM-based volumetrical analysis to infer long-term magma output rates for the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) dacitic lava dome complex (East Carpathians, Romania). The volcanic field of Ciomadul developed on the erosional surface of Lower Cretaceous flysch and ~ 2 Ma old andesites and experienced an extended eruptive history from ~ 850 to < 30 ka. Predominantly effusive activity took place during the first stage (~ 850 to ~ 440 ka), producing volumetrically minor, isolated, peripheral domes. Subsequently, after a ~ 250 ky repose interval, a voluminous central dome cluster developed in the second stage (~ 200 to < 30 ka). During the youngest phase of evolution (~ 60 to < 30 ka), highly explosive eruptions also occurred, resulting in the formation of two craters (Mohos and St. Ana). The calculated ~ 8.00 ± 0.55 km^3 total volume of the lava domes, which includes the related volcaniclastic (1.57 km^3) as well as erosionally removed (0.18 km^3) material, is in line with dimensions of other medium-sized dacitic lava domes worldwide. This volume was extruded at an average long-term magma output rate of 9.76 km^3/My (0.0098 km^3/ky). However, most of the domes (7.53 ± 0.51 km^3) were formed in the 200 to < 30 ka period, implying a significantly increased magma output rate of 37.40 km^3/My (0.0374 km^3/ky), more than 30 times higher than in the first stage. Within these long-term trends, individual lava domes of Ciomadul (e.g. those with volumes between 0.02 and 0.40 km^3) would have been emplaced at much higher rates over a period of years to tens of years. The active periods, lasting up to hundreds of years, would have been followed by repose periods ~ 30 times longer. The most recent eruption of Ciomadul has been dated here at 27.7 ± 1.4 ka. This age, which is in agreement with radiocarbon dates for the onset of lake sediment accumulation in St. Ana crater, dates fragmented lava blocks which are possibly related to a disrupted dome. This suggests that during the last, typically explosive, phase of Ciomadul, lava dome extrusion was still ongoing. In a global context, the analysis of the volumetric dynamism of Ciomadul's activity gives insights into the temporal variations in magma output; at lava domes, short-term (day- or week-scale) eruption rates smooth out in long-term (millenia-scale) output rates which are tens of times lower.

Keywords Lava dome · Magma output rate · DEM-volumetry · K-Ar chronology · Carpathian volcanism

Editorial responsibility: S. Self

Electronic supplementary material The online version of this article (https://doi.org/10.1007/s00445-019-1287-8) contains supplementary material, which is available to authorized users.

✉ D. Karátson
dkarat@ludens.elte.hu

[1] Department of Physical Geography, Eötvös University, Pázmány s. 1/C, Budapest H-1117, Hungary

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

[3] Institute of Geodynamics, Romanian Academy, Jean-Louis Calderon St. 19-21, 020032 Bucureşti, Romania

[4] Institute of Speleology, Romanian Academy, Clinicilor 5, 400006 Cluj-Napoca, Romania

[5] School of Geography, Geology and the Environment, Keele University, Keele ST5 5BG, UK

[6] Inimii 3/14, RO-530225 Miercurea Ciuc, Romania

[7] Department of Geophysics and Space Science, Eötvös University, Pázmány s. 1/C, Budapest H-1117, Hungary

Introduction

Lava domes, typically monogenetic landforms (Smith and Németh 2017) resulting from viscous lava extrusion (Davidson and de Silva 2000; Fink and Anderson 2017), occur in a wide range of geodynamic or volcanic settings. In most cases, they are part of composite volcanic edifices, often called lava dome complexes (Lockwood and Hazlett 2010), or belong to silicic caldera systems, where they form during less explosive volcanic periods (Wohletz and Heiken 1992). However, they can also occur as isolated volcanic features, ranging from lava dome fields to separate landforms, which are typical along the Inner Carpathian Volcanic Range (Lexa et al. 2010).

The short-term temporal evolution of lava dome fields and relation with output rate is quite well constrained at individual dome systems (e.g. Riggs et al. 1997; Scott et al. 2008; Ryan et al. 2010; Fink and Anderson 2017). However, the long-term tempo of magma output is much less studied. Exceptions include examples from large, intra-plate volcanic fields such as the San Francisco Volcanic Field, which displays a number of volcano types: scoria cones, lava domes and a composite cone (Tanaka et al. 1986; Wood and Kienle 1990; Priest et al. 2001; Karátson et al. 2010a). This paper focuses on the volcanic arc-related Ciomadul (Csomád)[1] lava dome complex (Mason et al. 1998) that marks the southernmost terminus of the East Carpathian volcanic range in Romania (Fig. 1). Ciomadul, a long-lived volcano, developed over the past ~ 850 ky (Szakács et al. 2015; Molnár et al. 2018; Lahitte et al. this volume). Our main objective is to present the dynamism of the eruptive history over this period and to compare long-term magma output to short-term eruptive rates.

The volcanic evolution of Ciomadul has been intensely studied in the past decade (e.g. Karátson 2007; Vinkler et al. 2007; Harangi et al. 2010, 2015; Popa et al. 2012; Karátson et al. 2013, 2016; Kiss et al. 2014; Szakács et al. 2015). However, there are a number of issues related to the spatial and temporal evolution that have not yet been clarified. In particular, Ciomadul (Fig. 2), which consists of a central, superimposed dome complex and a few scattered peripheral domes (Szakács et al. 2015), evolved during two somewhat contrasting stages. In our paper, we demonstrate that, in terms of magma output, distinguishing between these stages is fundamental. The first stage, lasting from ~ 850 to ~ 440 ka (Molnár et al. 2018; Lahitte et al. this volume), was marked by typically low lava dome growth rates, characterised by mostly effusive activity (Szakács et al. 2015). The second stage, beginning at ~ 200 ka (Lahitte et al. this volume) and ending at less than 30 ka (Karátson et al. 2016; Wulf et al. 2016), was more explosive; in addition to occasional Vulcanian eruptions, both Plinian and phreatomagmatic eruptions occurred, especially during the final phase of activity (Szakács et al. 2015; Karátson et al. 2016, 2017; Wulf et al. 2016; Veres et al. 2018). This latest explosive phase resulted in the formation of the two prominent craters in the central part of the volcanic complex that truncate the main domes: Mohoş (Mohos), hosting a peat bog, and St. Ana (Szent Anna), hosting a lake (Fig. 2).

To constrain the eruptive activity, in particular, magma output rates as well as the temporal and geomorphological relationships of subsequent domes, precise dating is fundamental. Whereas there is largely a consensus that the final explosive phase was confined to ~ > 50 to ~ 30 ka (Moriya et al. 1995, 1996; Harangi et al. 2015; Szakács et al. 2015; Karátson et al. 2016), the timing of the extended, preceding, period of lava dome growth has remained poorly constrained, although knowledge about the onset of volcanism has recently been improved by (U-Th)/He dating (Molnár et al. 2018). In the first part of this work (Lahitte et al. this volume), Cassignol-Gillot unspiked K-Ar dating (Gillot and Cornette 1986) has been applied to provide nine new high-precision K-Ar ages for selected samples, giving insight into the whole lifetime of Ciomadul. While Lahitte et al. (this volume) focused on the implications for the evolution of the magmatic feeding system, we here consider the implications for the volumetric evolution of the dome complex, as discussed previously in Karátson et al. (2018a, b). Thus, in the second part of this work, we take the new ages obtained by Lahitte et al. (this volume), complemented by four further Cassignol-Gillot K/Ar age determinations, which clarify the age of the basal surface and the last activity of Ciomadul. These ages make it possible to analyse the volumetrical dynamism of the lava dome complex over the past 850 ky combining the age data with a digital elevation model (DEM)-based approach, and to infer the volcano-geomorphological evolution of Ciomadul through its whole lifetime.

Geological setting and major evolutionary issues of Ciomadul

From a geodynamic point of view, the NNW-SSE trending East Carpathian volcanic range (Fig. 1) is related to a post-collisional setting (Mason et al. 1998; Seghedi et al. 1998, 2004; Chalot-Prat and Gîrbacea 2000). The volcanic activity developed subsequent to a W-directed, retreating subduction of a land-locked narrow oceanic basin between the Tisia block and the East European platform (Mason et al. 1998; Seghedi et al. 2004). Due to the migration of the magma-generating zone at mantle depths (Mason et al. 1998), a time-space migration of volcanic activity occurred over the past ~ 10 My (Pécskay et al. 1995, 2006; Szakács and Seghedi 1995). During the timespan of volcanism, magma output gradually

[1] Official Romanian names, when mentioned at first, are followed by locally used Hungarian names (in brackets), which is helpful for the reader in finding names on local maps

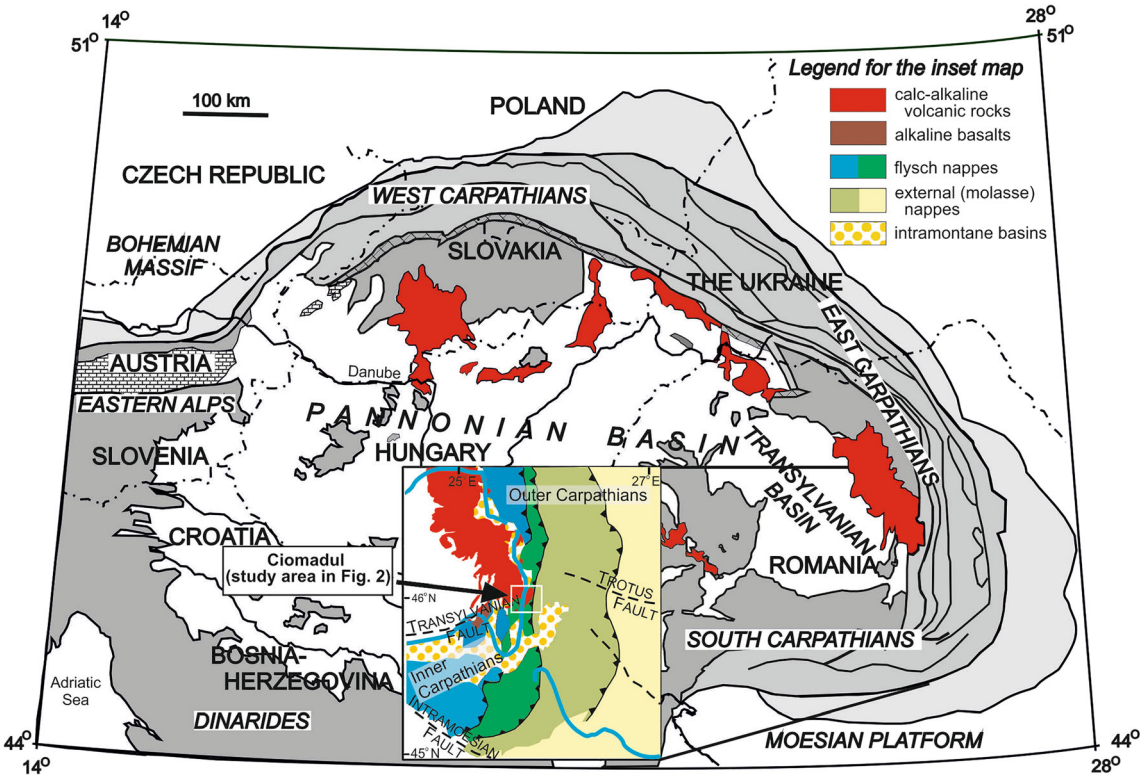


Fig. 1 Tectonic framework and geological setting of Ciomadul (Csomád) volcano

decreased with time (Szakács et al. 1993; Karátson and Timár 2005; Szakács et al. 2015).

The chain terminus of the range crosscuts the fold-and-thrust orogenic belt of the East Carpathians in the Ciomadul region (Fig. 1; Szakács et al. 1993). At Ciomadul, the lava domes were emplaced mostly on Cretaceous flysch (a sandstone-shale band forming the outer Carpathians: Săndulescu 1988) and, at their western side in the Tuşnad (Tusnád) Gorge, on Early Pleistocene andesites and dacites of the adjacent Pilişca (Piliske) volcano (Szakács et al. 2015). In some places, Ciomadul pyroclastic rocks overlie a palaeosol that developed on top of fluvial terrace gravels (Szakács et al. 2015). Direct contacts of Ciomadul dacite lavas or pyroclastics with underlying andesites belonging to Pilişca volcanic edifice, exposed along the Olt riverbed, also occur (Fig. 2).

The prevailing rock type of Ciomadul is porphyritic dacite (SiO_2 = 63–68 wt%; K_2O = 3.0–3.5 wt%: Szakács and Seghedi 1986; Kiss et al. 2014; Lahitte et al. this volume), with a mineral assemblage of plagioclase, amphibole, biotite, occasional clinopyroxene, orthopyroxene, quartz, K-feldspar, olivine, and minor apatite, titanite, zircon and allanite (Jánosi 1983; Szakács and Seghedi 1986; Mason et al. 1998; Kiss et al. 2014; Harangi et al. 2015). The petrogenetic evolution of the volcanism at the chain terminus has been discussed by Seghedi et al. (1987), Szakács et al. (1993), Mason et al. (1998), Vinkler et al. (2007), Kiss et al. (2014) and Lahitte et al. (this volume).

Geographically, the Ciomadul lava dome complex is separated from the main andesitic volcanic range (the Călimani[Kelemen]–Gurghiu[Görgényi]–Harghita[Hargita] Mountains) by the river Olt along the deeply cut Tuşnad Gorge (Fig. 2). The chain terminus east of the gorge is called the "Ciomadul-Puturosu" (Csomád-Büdös) Hills in the geographical literature (Bányai 1964) and has developed over an area of ca. 75 km^2. The central, much larger and younger volcanic dome area with some peripheral domes (Fig. 2) is separated toward the southeast and east by the uplifted Cretaceous flysch zone, which is cut by the older Dealul Mare (Hegyes-tető) dome and the volumetrically insignificant, isolated and older dome remnants (partly volcanic necks) of Puturosu (Büdös) and Balvanyos (Bálványos). The whole Ciomadul-Puturosu area was mapped by Szakács and Seghedi (1990), with the resultant map also published in simplified form by Szakács et al. (2015).

To the southeast of the Ciomadul-Puturosu dacitic dome cluster, the isolated dome of Dealul Mare was also considered to belong to the older Ciomadul domes by Szakács et al. (2015) who obtained a K-Ar age of 1.02 ± 0.07 (all age dates are reported with 1σ uncertainty). Although Dealul Mare is andesitic in composition (Szakács and Seghedi 1986), there are five features which suggest that the dome is part of the

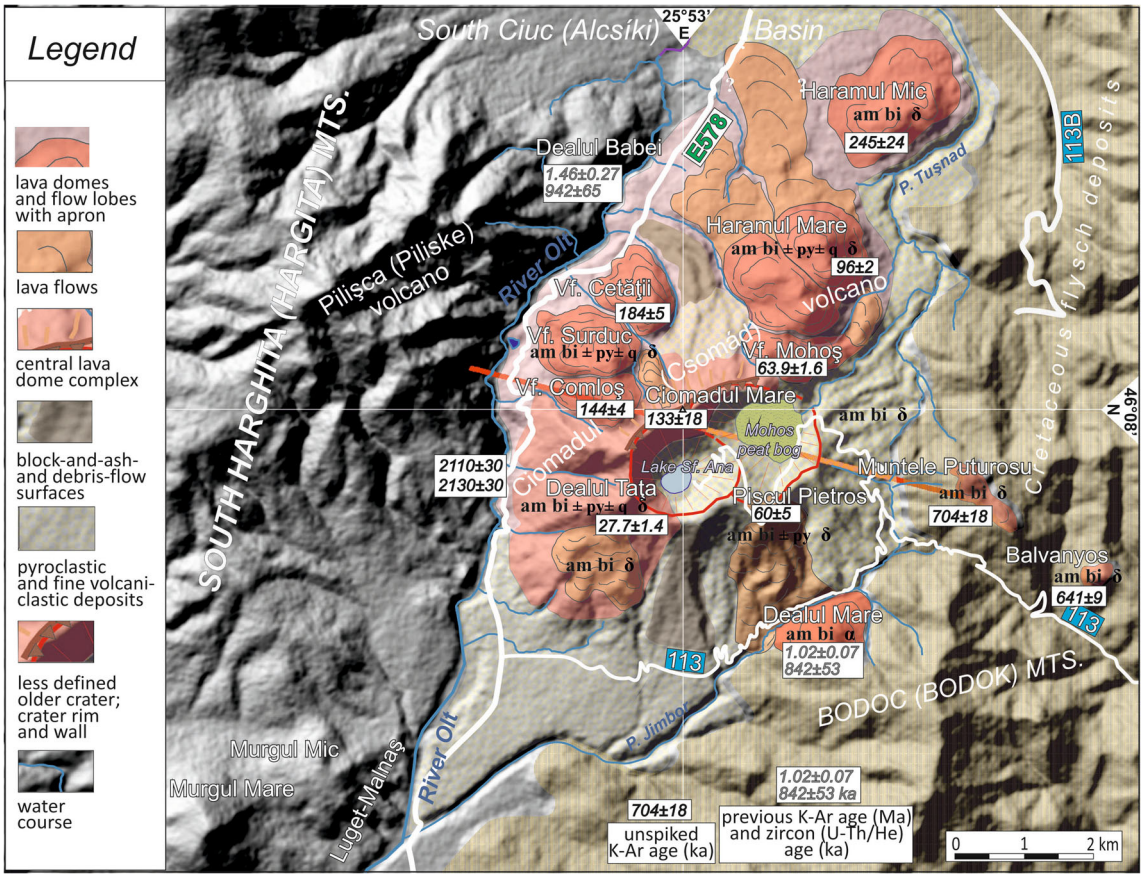


Fig. 2 Volcano-geomorphological map with radiometric ages, draped over SRTM DEM. Cassignol-Gillot K-Ar ages in black, placed in white quadrangles, are reported with 1σ error. All ages refer to massive lava dome rocks except the 27.7 ± 1.4 ka age on the SW slopes of St. Ana crater, which has been obtained on fragmented lava blocks, probably representing an explosively disrupted dome. Other ages in gray refer to previous conventional K-Ar (Szakács et al. 2015) and zircon (U-Th)/He ages (Molnár et al. 2018). International highway E578 is marked in green, other national roads in blue frame. Red diagonal line marks the position of the cross-section in Fig. 3

Ciomadul dome complex: (1) its position is close to the central dome cluster (closer than some of the peripheral dacitic domes such as Haramul Mic in the N, and Puturosul and Balvanyos in the E); (2) its morphology and size are similar to the main dacitic domes; (3) its phenocryst content (plagioclase, amphibole, biotite) is identical to that of the dacitic Ciomadul domes (with a slightly more mafic groundmass composition: Szakács and Seghedi 1986; Szakács et al. 2015); (4) according to the major element geochemistry of the andesite, it belongs to the same cluster of data points in the petrochemical diagrams (except the lower silica content) as the rest of the Ciomadul dome rocks (Szakács and Seghedi 1986); (5) there are mafic components in parts of the dacite dome rocks, such as pyroxene (Szakács and Seghedi 1986; Kiss et al. 2014) or even olivine (Kiss et al. 2014). A newly obtained (U-Th)/He zircon age of 842 ± 53 ka (Molnár et al. 2018) overlaps with the K-Ar age of 1.02 ± 0.07 Ma (i.e. 1020 ± 70 ka; Szakács et al. 2015) at 2σ level and confirms that Dealul Mare is one of the oldest domes of the whole Ciomadul-Puturosu area. On this basis, we use a minimum age of ~ 850 ka for the onset of the Ciomadul volcanism.

The larger area of the chain terminus of the volcanic range (Fig. 2) is characterised by much older and extended volcanism, for which conventional K-Ar and (U-Th)/He ages are available. Dating of the adjacent Pilişca volcanic edifice in the NW has typically yielded older ages than Ciomadul, between 2.6–1.5 Ma (Pécskay et al. 1995; Szakács et al. 2015; Molnár et al. 2018). One of its probably youngest satellite domes, Dealul Babei (Bába Laposa), is dacitic in composition, and has been dated at 1.46 ± 0.27 Ma (Szakács et al. 2015) and 942 ± 65 ka (Molnár et al. 2018), close to the earliest constrained Ciomadul activity.

At the southernmost part of the volcanic range and to the west of river Olt, the two individual domes of Murgul Mare (Nagy Murgó: andesite) and Murgul Mic (Kis-Murgó: shoshonite), as well as the nearby Luget-Malnaş (Lüget-Málnás) shoshonite lava flows (Fig. 2), seem contemporaneous with the older part of Pilişca volcano. Murgul Mare was dated at 2.69 ± 0.22 Ma and 2.25 ± 0.09 Ma by Szakács et al. (2015), and at 1.86 ± 0.08 Ma by Molnár et al. (2018), whereas the Malnaş lava was dated at 2.22 ± 0.14 Ma by Peltz et al. (1987). Given the older ages and the predominantly different

petrography compared with the Ciomadul dacites, the lava domes and flows of the southernmost part suggest a separate evolution and, as such, cannot be considered belonging to the Ciomadul volcanic system. Therefore, Murgul Mare (andesite) and Murgul Mic (shoshonite), along with the shoshonitic lava flows of Luget-Malnaş, are not included in our study.

The basement of the western part of the Ciomadul dacites reveals older andesites of the Pilişca volcano which crop out along the Olt riverbed in the Tuşnad Gorge. A drillcore down to 109 m in the andesite yielded a K-Ar age of 1.93 ± 0.09 Ma (Szakács et al. 2015). To verify the age of the basement on which the Ciomadul dacites were emplaced, we performed further two Cassignol-Gillot K/Ar age determinations on the exposed andesites.

For the Ciomadul-Puturosu dacitic lava dome evolution, the rocks of the southeastern Puturosu dome are somewhat younger than Dealul Mare; they have been dated at ~ 700 ka by both the conventional (Szakács et al. 2015) and the Cassignol-Gillot K-Ar technique (Lahitte et al. this volume). A slightly younger age of 641 ± 9 ka has been obtained on the neighbouring Balvanyos dome (Lahitte et al. this volume), whereas another, much younger age of 440 ± 12 ka probably dates an adjacent dome (locality uncertain). In contrast to the younger, central domes, it is this relatively old Puturosu (meaning "stinky") area that shows the most intense H_2S-bearing CO_2 gas emissions at present (Szakács 2010; Kis et al. 2017).

Haramul Mic (Kis-Haram), which faces the wide alluvial plain of the Ciuc (Csíki) Basin, is the northernmost of the Ciomadul lava domes (Fig. 2). This flat-topped dome was considered previously as one of the oldest, eroded features of the whole lava dome complex and was dated at 0.85 Ma, i.e. similar to Dealul Mare (Pécskay et al. 1995; Szakács et al. 2015). However, it was also proposed that it is just a "low dome" in the sense of Blake (1989), being roughly contemporaneous with the main, central dome group (Karátson et al. 2013). Both the newly obtained 163 ± 11 ka (U-Th)/He age (Molnár et al. 2018) and the 245 ± 22 ka Cassignol-Gillot K-Ar age (Lahitte et al. this volume) confirm that Haramul Mic is indeed significantly younger than the 700–800 ka old southern lava domes (Molnár et al. 2018; Lahitte et al. this volume).

Based on the new Cassignol-Gillot K/Ar groundmass age determinations, the emplacement of the Haramul Mic dome was followed by the satellite dome Vf. Cetății (Vár-tető) at 184 ± 5 ka and, subsequently, the main central dome complex consisting of the roughly coeval Vf. Comloş (Komlós-tető) and Ciomadul Mare (Nagy-Csomád) domes dated at 144 ± 4 ka and 133 ± 18 ka, respectively (Lahitte et al. this volume). After a possible short repose period, the eruptive activity at Ciomadul was followed by construction of the highly symmetrical dome of Haramul Mare (Nagy-Haram) at 96 ± 2 ka (Lahitte et al. this volume). The Ciomadul Mare domes (along with Vf. Comloş, and the not yet dated Vf. Surduc [Szurdok-tető] dome) represent the largest part of the central dome complex by volume.

Finally, the twin-crater morphology of Mohoş and St. Ana was created during the latest explosive phase of the second stage (Szakács et al. 1993; Szakács and Seghedi 1995; Karátson et al. 2013, 2016; Szakács et al. 2015). Karátson et al. (2013) proposed that the flat, uniform, arcuate northern lava dome rim of Ciomadul Mare (with its highest point at 1301 m a.s.l.) may be linked to a large pre-Mohoş crater-forming eruption. This may have been followed by the formation of the Mohoş crater, associated with one of the so-called "Turia phreatomagmatic eruptions" (Karátson et al. 2016) dated at ≥ 50 ka. The Mohoş crater hosts a ~ 60 m-thick lacustrine/peat succession with a number of tephra units (Karátson et al. 2016; Wulf et al. 2016), the oldest of which are not yet dated. Dating of a crater rim dome or flow on the southern slopes, Piscul Pietros (Köves Ponk, Fig. 2), which is truncated by the crater morphology, yielded a K-Ar age of 60 ± 5 ka (Lahitte et al. this volume), in contrast to earlier published K-Ar ages of around 0.5 Ma (Pécskay et al. 1995; Szakács et al. 2015). Such a morphological relationship places the final explosive phase at younger than 60 ka. In this paper, to confirm the age relationship of the Mohoş crater and its surrounding lava domes, new K-Ar dating was conducted on another rim dome in the north, Vf. Mohoş (Mohos-tető).

The final eruptions of Ciomadul originated from the circular-shaped St. Ana explosion crater that cuts the Mohoş crater rim. Two subsequent explosive eruptions labelled as "TGS" (a plinian or subplinian eruption sequence named after the town of Târgu Secuiesc) and "LSPA" (Latest St. Ana phreatomagmatic activity) may have been related to the final crater formation (Karátson et al. 2016, 2017; Wulf et al. 2016). Of these, LSPA might have occurred at ~ 29 ka on the basis of ^{14}C ages obtained from both the lower part of the sediment infill of St. Ana crater lake (Magyari et al. 2014) and the upper part of the Mohoş lacustrine succession (Karátson et al. 2016; Wulf et al. 2016). The present-day St. Ana crater rim reveals fragmented but massive fresh lava dome blocks, which occur in particular on the southern crater slopes and are presumably of LSPA age. Apart from the 60 ± 5 ka Piscul Pietros lava dome (or coulée), there is no other original dome landform nearby with which these blocks can be correlated. Therefore, the exposed rocks might correspond to an explosively disrupted dome in the vicinity, possibly related to St. Ana crater. Cassignol-Gillot K-Ar dating was applied on one of the scattered blocks to constrain this terminal volcanic activity.

The lava domes of Ciomadul are in some cases surrounded by the original breccia apron (Szakács et al. (2015). The apron includes some dacite lava flows (up to 5–6-km long) sourced from the domes (Szakács et al. 2015). However, the majority of the apron also includes finer grained volcaniclastic

deposits, including outwash sheets, debris-flow deposits, and minor block-and-ash flow deposits (cf. Santiaguíto: Rose 1987). A part of these accumulated during the eruptive stages, but significant reworking might have contributed to the aprons post-eruptively, during the Last Glacial Maximum, when the vegetation at Ciomadul was sparse and erosion intensified (Magyari et al. 2014). Erosion certainly reduced the volume of the original domes to some extent, but the eroded material may have largely been added to the apron volume (cf. Kuenzi et al. 1979). More distal volcaniclastic deposits, which are poorly constrained, also occur in the Ciuc Basin to the north of Ciomadul, as well as along the margins of the southern-lying Bodoc (Bodok) and Turia (Torjai) Mountains. However, as Szakács et al. (2015) stated, overall the lava dome shapes show only insignificant post-eruptive erosional overprint.

It should also be noted that the margins of the domes as well as the topographic lows in between the domes (in particular on the eastern and southern flanks of the edifice) are in some places covered or draped by the pyroclastic deposits of the latest explosive phase (Szakács et al. 2015, Karátson et al. 2016). The volume of the pyroclastic deposits has not yet been assessed, but their contribution to Ciomadul is negligible.

DEM-based volumetry

Methodological issues

Volumetrical time inventories of volcanic edifices can be determined at different spatial and temporal scales ranging from regional tectonic/erosional studies (e.g. Stoiber and Carr 1973; White et al. 2006; Karátson et al. 2012) to those considering fast and occasionally m-scale topographic changes occurring at active volcanoes (e.g. Fornaciai et al. 2012; Favalli et al. 2010; Diefenbach et al. 2013). Previously, volumetrical (and other morphometrical) studies simply used topographic map data (Pike and Clow 1981), but since the advent of digital elevation models (DEM) with worldwide (SRTM, ASTER) or regional (e.g. US NED, TINITALY) coverage, the procedure of landform delimitation or volume calculation has become more accurate. A number of recent volumetrical studies have resulted including those covering small monogenetic landforms such as scoria cones (e.g. Favalli et al. 2009; Bemis et al. 2011; Kereszturi and Németh 2012; Kervyn et al. 2012; Bemis and Ferencz 2017) and lava domes (Lahitte et al. 2012; Karátson et al. 2013; Nomikou et al. 2014), as well as large polygenetic landforms such as composite (e.g. Grosse et al. 2009; Karátson et al. 2010b; Lavigne et al. 2013; Germa et al. 2015; Ricci et al. 2015) and shield volcanoes (e.g. Germa et al. 2010; Salvany et al. 2012; Pedersen and Grosse 2014; Grosse and Kervyn 2018). However, relatively few papers discuss the possible error factors of volume calculations. Examples include Bohnenstiehl et al. (2012) who presented how the cone volume calculated by the closed-contouring algorithm changes with respect to the regional slope value and the contour search intervals. These authors found that the volume of low (~ 100-m high) cones might be underestimated by 30–50% if the basal surface is sloping (2°) or the contour interval is relatively large (20 m), and suggested a modified algorithm that takes into account the local slope when the edifice is outlined. Kereszturi and Procter (2016) showed how the calculated eruptive volumes of monogenetic volcanoes are sensitive to the input data type and their spatial resolution.

As discussed in detail for small landforms by Favalli et al. (2009) and Kereszturi et al. (2013), and for larger edifices by Grosse et al. (2012), the precision of volume calculation largely depends on the appropriate delimitation of volcano boundaries and the related basal surface. Defining the boundary of any volcano might be complicated by the diverse, often compound architecture of the volcanic terrain (e.g. disturbed boundaries with adjacent, sometimes superimposed volcanoes and/or surrounding landscape, far-reaching volcanic products, such as long lava flows, and tilted basal surfaces). However, constructional landforms (e.g. composite and shield volcanoes, as well as individual domes and cones), which have a positive topography, are commonly bounded by concave breaks in slope, a feature which is used to define the boundaries in most DEM-based studies (Karátson and Timár 2005; Favalli et al. 2009; Grosse et al. 2012; Karátson et al. 2012). In particular, Grosse et al. (2009) and Euillades et al. (2013) derived automated methods for a more objective boundary definition.

As a result of such advances, volume calculation is now a routine task if the required input parameters, such as appropriate data from regional geology, field mapping, and DEM coverage, are available. DEM data provided by the SRTM data base with 3" (~90 m spatial resolution) was found sufficient for composite and shield volcanoes (e.g. Karátson and Timár 2005; Kervyn et al. 2008; Karátson et al. 2010b, 2012; Lavigne et al. 2013), whereas higher spatial resolution DEMs are required for studying smaller monogenetic landforms such as scoria cones (Fornaciai et al. 2012). Small surface changes on active volcanoes can be studied preferably by LiDAR or photogrammetry-based with a 2–5 m resolution (Fornaciai et al. 2010).

From a methodological point of view, general issues for volume calculations of the lava domes of the Ciomadul area include

1) Data resolution.
2) The method of numerical integration ("rectangular rule" versus "trapezoidal rule" versus "Simpson's rule").
3) Horizontal landform delimitation.
4) The accuracy of the base level (Yanalak and Baykal 2003; Grosse et al. 2012).

In regard to point (2), all three of these methods use cell-based right prisms to calculate the volume, but in the rectangular case the prism top is flat, in the trapezoidal case the prism top is oblique, and in the Simpson case, the prism top is a parabolic surface, which provides a better approximation of the real surface (Press et al. 1988). For point (4), determining the appropriate base level of a given volcano raises several problems, such as the need for information on bedrock, the presence of subvolcanic bodies above or below the basement contact, or the role of tectonic faults.

In order to quantify the error magnitudes attributed to all of these factors, we carried out test volume calculations on some volcanic landforms including small (lava domes) and large (composite volcanoes) edifices, using data from Telbisz et al. (2017). We incrementally changed the spatial resolution, the outlined boundary and the base level of the target landforms, and used different methods of volume calculation to assess the effect of spatial resolution, the integration method, the horizontal delimitation and the base level, on the final result (see Table 4 in Appendix). Our comparison based on 1/9" (~3m), 1/3" (~10 m) LiDAR, 1" (~30m) and 3" (~90 m) SRTM data shows that in most cases the volumes can be appropriately calculated by using SRTM 1" or even SRTM 3". Namely, the average of volume differences between SRTM 1" and the best available spatial resolution dataset is only 2.8%. The integration method of volume calculation (rectangular versus trapezoidal; Simpson's rule vs trapezoidal) yields a negligible difference, which is generally less than 1‰.

On the other hand, delimitation of the horizontal boundaries has a more important effect on the volume; we found that 1% variation in the average edifice radius introduces an average error of 0.8% in terms of volume. In the case of field-based studies (i.e. when reliable geological maps are available), the error of the average edifice radius may be in the 1–5% range, thus the resultant error on volume is less than 4%.

Finally, the most critical factor is the base level. If the volcano is built up on a flat surface, then interpolating the level of the terrain surrounding the edifice can provide a good approximation. If the basement topography is undulating or complicated, and there are no surface outcrops or borehole data to infer the surface geometry of the bedrock, geophysical data and/or appropriate analogues are required (cf. Kereszturi et al. 2013). For instance, using a theoretical approach, error (dV) of volume estimation (V) of a pure cone-shaped volcano (having a slope of α) due to error (dh) in height measurement (h) yields a relative error in volume:

$$dV/V = \left(\pi \cdot ctg^2(\alpha) \cdot h^2 \cdot dh\right) / \left(\pi \cdot ctg^2(\alpha) \cdot h^3/3\right) = 3dh/h \quad (1)$$

where cotangent function is the reciprocal of tangent (tg).

This represents, for instance, a relative error of 10% for a difference of 10 m at the base level of a 300-m-high volcano. Based on calculations of worldwide volcanic edifices (Telbisz et al. 2017), the base level error is 1% of the height, and the inferred volumetrical error is, on average, 6.1%. Admittedly, the base level uncertainty may exceed 1%, if the basement is not constrained by field evidence. Therefore, field constraints on the base level have been considered a crucial issue in our study if we are to obtain precise volumes.

At Ciomadul, the boundaries of the individual lava domes were determined using the geological maps of Szakács and Seghedi (1990, 1995), Szakács et al. (2015), and the volcano-geomorphological map of Karátson et al. (2013). Dome boundaries were field-checked in spring 2017, adding GPS-fixed points of those surface outcrops where the boundary could be observed. Observations included lava flow and talus breccia outcrops in heavily vegetated surfaces, contacts between Ciomadul dome breccias and underlying Pilişca andesites, or flysch exposures. The modified extent of the lava domes and flows are depicted on an updated volcano-geomorphological map of Ciomadul (as given in Fig. 2).

Base level considerations

The northern apron northwest of Haramul Mic in particular suggests that lava flows reached the Olt river valley at the village of Tusnad Nou (Újtusnád). Although the precise areal extent is impossible to outline, the northernmost lava outcrop cut by the river can be connected southward to local hummocks (locally called "ponks"), which are interpreted here as isolated, eroded original lava surfaces (further sculpted by long-term agricultural activity). Based on their position, a lava flow direction from the south can be assumed, i.e. from Haramul Mare or perhaps Haramul Mic (Fig. 2). In addition, according to our field inspection, both Haramul Mare and, especially, Haramul Mic have larger, extended talus breccia aprons, in some places covering the proximal lava flows.

To the west, the Ciomadul dacites directly overlie older andesites of the adjacent Pilişca (Piliske) volcano in the South Harghita Mountains (Szakács et al. 2015). These andesites crop out at numerous sites between 610 and 650 m elevation along the Olt riverbed which is deeply incised in the Tuşnad gorge. The obtained elevations were taken here as defining the basal surface for the dacitic volcanism of Ciomadul.

In the east, the boundary of the uplifted Cretaceous flysch rocks, already indicated by Szakács and Seghedi (1990), has been confirmed by measuring outcrops with GPS in some deeply incised stream and road cuts. The flysch is exposed commonly at around 700–800 m a.s.l., but at the elevated Bolondos Hill, as high as at 980 m a.s.l. In the southeast, in contrast to the published volcanological map (Szakács and Seghedi 1990), the Piscul Pietros lavas flowed farther to the

south, directly overlying both the flysch exposed along the stream of Paraul Jimbor (Zsombor stream) and the older andesites of Dealul Mare at ~ 780–790 m a.s.l. Taking all these additional data into consideration, the basal boundary polygon of Ciomadul has a lowermost point at 579 m, a highest point at 980 m and an average elevation of 704 m.

On the basis of the geological cross sections given in Szakács and Seghedi (1990), the interpolation between the underlying western (Pilişca) andesites and the eastern flysch defines a "pre-Ciomadul" surface, which slightly dips toward the present-day Olt river (Fig. 3). On the DEM, this surface was created by filling the outlined dome area by natural neighbour interpolation. The interpolated surface has an average elevation of 714 m a.s.l., very similar to the 704 m determined from the surface polygon boundary. The interpolated surface indicates a relatively wide valley or basin, which likely existed prior to the volcanic activity. This dipping surface was taken as the pre-Ciomadul basal surface instead of a flat, constant base level.

Individual dome volumes (Table 1) were calculated using the superficial boundary of each dome extended by a gently dipping (< 5°), 100–500 m wide apron based on the volcanological map of Szakács and Seghedi (1990) and our own field observations. To calculate the gradual increase of erupted magma volumes during the evolution of the dome complex, we reconstructed DEMs of the successive dome-building stages. Starting from the basal surface, individual domes with their aprons were added to the DEM step by step, following an order defined by their respective ages. Erosional changes between subsequent domes were considered negligible in relation to their dominantly young, < 200 ka age and an overall 31.5 m/My denudation rate obtained for the larger area (Karátson 1996). Volumes of individual lava domes (or coalesced lava dome groups) were calculated from DEM differences between two subsequent stages. Thus, we did not use a constant base level but an updated topography in each step. The volume calculation method used was the trapezoidal rule.

Sequence of volume calculations

The temporal evolution, defined by the successive growth of individual lava domes, has been constrained using the new Cassignol-Gillot K-Ar dates (as is given in Table 1). The age of Vf. Surduc (Szurdok-tető), which was not determined, has been tentatively placed between Vf. Cetății and Vf. Comloş on the basis that its position is in between the latter two. Within Table 1, a number of domes (e.g. Ciomadul Mare, Haramul Mare) consist of extrusions from more than one vent (they thus represent compound domes such as Soufriére Hills, Montserrat: Hale and Wadge 2008); however, without detailed ages, their emplacement histories cannot be further subdivided.

Results

The resulting total volume of the entire Ciomadul edifice is 7.82 ± 0.41 km^3 (Table 1). About 80% of this volume (6.25 km^3) belongs to the lava domes themselves (note that all estimates here are bulk rock), whereas the remaining 20% (1.57 km^3) includes the undifferentiated volcaniclastic material forming the surrounding aprons. Individual dome volumes, in the case of the simple landforms which could have been determined, are on the order of 0.1–0.4 km^3, i.e. ~ 3–6% of the whole lava dome complex. Some minor domes (e.g. Balvanyos, Mohoş) have even smaller volumes (0.02–0.1 km^3). The two largest coalesced lava domes (Ciomadul Mare and Haramul Mare) have a volume of 4.1 km^3 (~ 53% of the whole complex).

Erosion has affected the original erupted volumes. We have already noted that the talus breccias are mostly related to synvolcanic redeposition, likely enhanced by post-eruptive

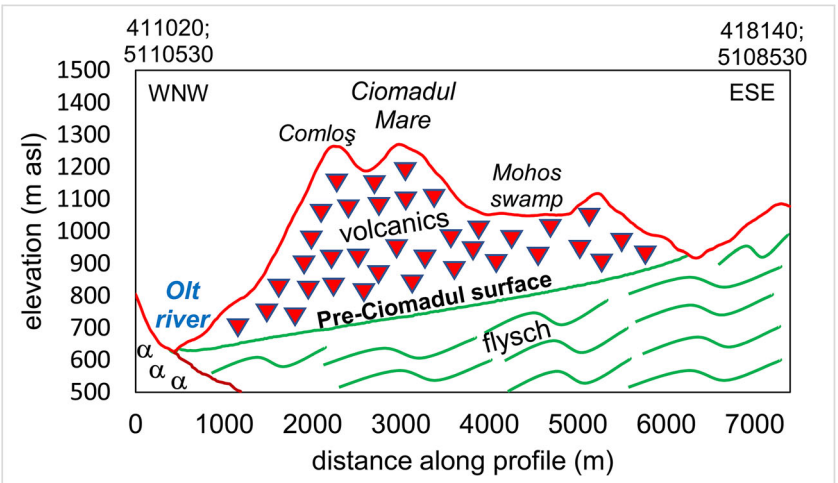


Fig. 3 SRTM DEM-based cross-section through Vf. Comloş and Ciomadul Mare with main geological features, showing the gently dipping (< 5°) basement consisting of ~ 2 Ma andesites (marked with α) and Cretaceous flysch. Coordinates in UTM zone 35 N. For the position of section, see Fig. 2

Table 1 Volumetry and age constraints of the Ciomadul lava domes

	Cassignol K-Ar age (ka)[1, 2]	(U-Th)/He age (ka)[3]	Base level (m asl)	Area (km^2)	Present Volume (km^3)	Proportional volume (as % of total)	Erosion since emplacement (km^3)***
Dealul Mare (Hegyes-tető)	–	842 ± 53	760	1.52	0.30 ± 0.03	3.9%	0.040
Puturosu (Büdös)	704±18[1]	642 ± 44	900	0.47	0.07 ± 0.01	0.9%	0.010
Balvanyos (Bálványos)	641±9[1]	583 ± 30	870	0.20	0.02 ± 0.00	0.3%	0.004
Haramul Mic (Kis-Haram)	245±24[1]	163 ± 11	690	1.34	0.19 ± 0.03	2.4%	0.010
Vf. Cetății (Vár-tető)	184±5[1]	–	684	1.05	0.29 ± 0.02	3.8%	0.006
Vf. Surduc (Szurdok-tető)	164*	–	651	1.28	0.39 ± 0.02	5.0%	0.007
Vf. Comloș (Komlós-tető)	144±4[1]	–	660	0.79	0.43 ± 0.03	5.5%	0.004
Ciomadul Mare (Nagy-Csomád)	133±18[1]	–	616	7.96	2.90 ± 0.15	37.1%	0.033
Haramul Mare (Nagy-Haram)	96±2[1]	–	725	3.86	1.20 ± 0.08	15.4%	0.012
Vf. Mohoș (Mohos-tető)	64±2[2]	–	812	1.02	0.10 ± 0.02	1.3%	0.002
Piscul Pietros (Köves Ponk)	60±5[1]	–	775	1.14	0.34 ± 0.03	4.3%	0.002
Volcaniclastic aprons	28**	–		53.81	1.57 ± 0.13	20.1%	0.044
Total				74.44	7.82 ± 0.55	100%	0.175

[1] Cassignol-Gillot K-Ar age of lava dome rock obtained on groundmass or (for Haramul Mic and Ciomadul Mare) plagioclase microlite: Lahitte et al. (this volume)

[2] Cassignol-Gillot K-Ar age of lava dome rock obtained on groundmass (this work)

[3] (U-Th)/He age of zircon crystals separated from lava dome rock: Molnár et al. (2018)

*Averaged from Vf. Cetății and Vf. Comloș

**Considered as if the whole volume of the surrounding volcaniclastics had been deposited after the last eruption

***Calculating with a long-term erosion rate of 31.5 m/My (Karátson 1996) applied to each dome area

Uncertainties of the present volumes are calculated by using formula (1) assuming 10 m error in base level

erosion. In contrast, at present, debris-flow activity or significant slope wash processes are not observed; a result from thick vegetation cover. In accordance with this, fluvial dissection of the area is also minor due to the young age of volcanism as well as the protective soil and vegetation cover. Field observations confirm that individual or coalesced domes tend to preserve their original shape. The erosionally removed material has fed the weakly evolved drainage network, which transports sediments to the neighbouring basins and the Olt river system (Bányai 1917, 1964; Bulla 1948; Fielitz and Seghedi 2005).

By aggregating periods with low versus high erosion, the volume of the material removed by erosion during the whole life time of Ciomadul can be estimated using the area-specific long-term erosion rate (surface lowering) estimate of 31.5 m/My, which was proposed for the study area using comparative morphometry (Karátson 1996). This rate is an average figure over the Northeast and East Carpathians, integrating a ca. 10 My period with multiple climatic changes. Numerically, this rate is in agreement with values derived by various methods for temperate continental climates (Saunders and Young 1983; Summerfield 1991). We calculated eroded volumes separately for each dome by using the average 31.5 m/My erosion rate, and the area and age of each dome (Table 1). Obviously, the error of the eroded volume is larger for the younger domes due to the fact that the applied erosion rate is long term; however, the magnitude of the overall erosion volume is reliable. The individual eroded volumes give a combined total of 0.18 km^3 erosion for the whole Ciomadul-Puturosu Hills over the past ~ 850 ky. Adding this figure to the present-day volumes, the total original volume of the lava dome complex is proposed to have been 8.00 ± 0.55 km^3. This means that the erosionally removed volume has been insignificant equating only to 2.2% of the total dome volume.

Obviously, such a calculated erosion figure is considered a minimum estimate. On one hand, short-term post-eruptive erosion rates, due, for instance, to unvegetated surfaces, are generally higher than long-term rates (cf. Santiaguíto: Harris et al. 2006). As at Santiaguíto, the presence of areally significant volcaniclastic deposits may have also enhanced erosive processes in some proximal places. Nevertheless, given the little proportion of the eroded volume calculated, these uncertainties make no difference relative to the main results obtained on the volumetry of the volcanic activity.

Cassignol-Gillot K-Ar dating

To constrain the time interval during which Ciomadul's volcanism developed, the minimum age of the basement on which Ciomadul dacites were emplaced, and the age of the

volcano's latest activity, need to be known. Four selected lava samples, the localities of which are described above, were dated using the Cassignol-Gillot K-Ar technique in the Laboratoire GEOPS at Paris-Sud University, Orsay, France (Table 2). Full details of the analytical procedure are given in the accompanying study (Lahitte et al. this volume) as well as in the Supplement. The obtained ages presented here complement the nine new ages included in Lahitte et al. (this volume) and serve as the basis for magma output rate calculations.

Located along the riverbed of the Olt in the southern part of Tuşnad Gorge, two samples from andesitic lava flows (17EC12 and 17EC13), attributed to Pilişca volcano and directly overlain by Ciomadul's dacite lava, were dated at 2130 ± 30 ka and 2110 ± 30 ka, respectively. Such ages, within 2σ error, match the 1.93 ± 0.09 Ma conventional K-Ar age (Szakács et al. 2015) obtained on drillcore samples in the same area. The confirmed old age implies that the topographic level on which Ciomadul was emplaced can be considered palaeogeographically as an erosional surface, formed during the ca. 1 My-long time gap preceding Ciomadul's activity.

The sample of the lava dome of Vf. Mohoş (16CIO05) yielded a well-constrained age of 63.9 ± 1.6 ka (Table 2). This age, within 2σ uncertainty, is the same as that of the Piscul Pietros dome or flow (60 ± 5 ka). One of the scattered dacite lava blocks (sample 16CIO11), draping the southern slope of St. Ana crater, yielded an age of 27.7 ± 1.4 ka. In order to precisely constrain this latest activity, we performed five measurements of different aliquots of the same sample (Table 2). As described above, the exposed blocks may correspond to an extrusive phase, which is correlated, by their position, to one of the final Ciomadul eruptions, possibly the one that excavated the present-day St. Ana crater. The K-Ar age obtained is the youngest measured by direct dating of Ciomadul rocks and, compared with other dating results (e.g. Harangi et al. 2015; Szakács et al. 2015; Karátson et al. 2016), confirms that it can be taken as evidence of the latest activity of the volcanic edifice.

Discussion

Dome volumetry at Ciomadul: a worldwide comparison

Andesitic-dacitic lava domes vary highly in volume from ≤ 0.01 to ~ 30 km^3. In Table 3, examples of some of the best-known andesitic-dacitic domes are given. Probably the largest dome, the Late Pleistocene Chao dacitic coulée (Chile), which is related to the Cerro del León stratovolcano (de Silva et al. 1994), has a volume of 26 km^3, comparable with medium-sized stratovolcanoes. It was emplaced over an area of > 50 km^2. The post-caldera activity at Yellowstone caldera produced even larger-volume individual silicic lava units, such as the 72 ka rhyolitic Pitchstone Plateau of 70 km^3 (Christiansen et al. 2007), but these are flows rather than domes. However, rhyolitic domes can also be exceptionally large, such as the 7.3 ka submarine dome at Kikai caldera, Japan, which has a volume of 32 km^3 (Tatsumi et al. 2018). Another large dacitic dome, the Nevado del Toluca summit dome complex (Mexico), which formed within the past 50 ky, has a volume of 11 km^3 (Capra et al. 2015).

Examples of medium-sized lava domes include Santiaguíto (Guatemala), where four adjacent domes and flows have been extruded since 1922 (Harris et al. 2003), or the 1951 lava dome of Mt. Lamington in Papua New Guinea (Taylor 1958), both with ca. 1 km^3 total volume. Similarly, the eruption of the Soufriére Hills dome complex (Montserrat) resulted in a total volume of 1 km^3 between 1995 and 2009, the dome being constructed in four phases with lobes of 0.1–0.3 km^3 in volume (Wadge et al. 2010; Ryan et al. 2010). At Unzen volcano, Japan, during the 1991–1993 eruption, a total dome volume of 0.2 km^3 was extruded (Nakada et al. 1999).

On the other hand, individual dome-forming events often produce much smaller, overlapping domes or flows, such as the andesitic dome of M. Pelée, Martinique (1902) with a summit plug of 0.01 km^3 (Boudon et al. 2015), or the dacitic intracaldera dome of Mt. St. Helens (1980) also with a volume of 0.01 km^3

Table 2 K-Ar ages obtained on groundmass of Pilişca-type andesites and selected Ciomadul dacites

Sample code, locality name	K%	^{40}Ar* %	^{40}Ar* (× 10^{11} at/g)	Age ± 1σ (in ka)	Weighted mean age ± 1σ (in ka)	Relative uncertainty
17EC12	0.592	19.65	13.24	2142 ± 32	**2130 ± 30**	1.5%
Olt riverbed andesite		20.83	13.10	2118 ± 32		
17EC13	0.599	13.90	13.40	2139 ± 43	**2110 ± 30**	1.6%
Olt riverbed andesite		17,20	13.06	2086 ± 43		
16CIO05	3.845	3.92	2.531	63.0 ± 1.8	**63.9 ± 1.6**	2.6%
Vf. Mohoş dacite		5.87	2.590	64.5 ± 1.4		
16CIO11	3.624	0.86	1.058	28.0 ± 3.3	**27.7 ± 1.4**	5.1%
St. Ana crater rim		0.82	0.973	25.7 ± 3.2		
southern flank dacite (block)		0.90	1.021	27.0 ± 3.0		
		0.88	1.044	27.6 ± 3.2		
		0.98	1.155	30.5 ± 3.1		

Table 3 Volumes of selected worldwide andesitic-dacitic lava domes

Lava dome	Lithology	Volume (km^3)	Reference
Chao (Late Pleistocene)	Dacite	26	de Silva et al. 1994
Nevado de Toluca	Dacite	11	Capra et al. 2015
Santiaguíto (1922)	Dacite	1	Harris et al. 2003
Soufriere (1995–2009)	Andesite	1	Wadge et al. 2010
Unzen (1991–1993)	Dacite	0.2	Nakada et al. 1999
Usu (1944)	Dacite	0.02	Yokoyama 2005
Tarumai (1909)	Andesite	0.01–0.02	Yokoyama 2005
Merapi (2006)	Andesite	~0.01*	Carr et al. 2016
Mt. St. Helens (1980)	Dacite	< 0.01	Scott et al. 2008
Mt. St. Helens (2005)	Dacite	< 0.01	Scott et al. 2008
Pelée (1902)	Andesite	< 0.01	Boudon et al. 2015
Novarupta (1912)	Dacite	0.005	Hildreth and Fierstein 2012

*Published volume of 0.0084 km^3 in Carr et al. (2016) refers to extruded magma in total

(Scott et al. 2008). During one of the current dome-forming episodes (2006) of the basaltic andesite dome complex of Merapi, consisting of dome growth and collapse events (Charbonnier and Gertisser 2008), a total extruded magma volume of ~0.01 km^3 was estimated (Carr et al. 2016). The 1912 eruption of Novarupta produced a small dome only 0.005 km^3 in volume (Hildreth 1983; Yokoyama 2005).

According to our volumetrical results, Ciomadul, with its reconstructed total volume of ~8 km^3 spread over an area of ~75 km^2, belongs to the medium-sized lava dome complexes. However, the dimensions of most individual Ciomadul domes, where morphology allows distinct dome shape determination, are in the range of 0.1–0.4 km^3, similar to those at Santiaguíto, Mt. Lamington and Soufrière Hills. Such a finding makes it likely that those parts of the edifice where individual domes cannot be distinguished also grew by superimposed or amalgamated domes (apart from the scattered peripheral domes of Ciomadul in the NW, N and SE).

Assessment of erosion rates

When calculating the original dome volumes, it is important to assess how much material has been removed by erosion (e.g. Karátson 1996; Bemis et al. 2011). In a previous attempt at Ciomadul, Karátson and Timár (2005) considered the volcano volumes along the whole East Carpathians. They included Murgul Mare and Murgul Mic in the Ciomadul-Puturosu area (which, as we stated above, do not belong to Ciomadul), and calculated a total volume of 15.3 km^3, including erosional removal of 3.1 km^3. If we extract the volume of Murgul Mare and Murgul Mic and their aprons (ca. 2 km^3) as well as the 3.1 km^3 of eroded material, the result is 10 km^3, roughly comparable with the 7.82 km^3 obtained in this study. However, Karátson and Timár (2005) overestimated the eroded volume (3.1 km^3 versus 0.18 km^3 obtained here). This is because the approach of Karátson and Timár (2005) for calculating erosionally removed volumes was to "fill" valleys by surface envelopes using representative cross sections of the individual volcanic edifices. Whereas this method is correct for large, deeply dissected edifices and provides reliable results for other parts of the East Carpathians, it exaggerates the erosion rate for Ciomadul which shows only minor or no fluvial dissection.

Erosion in the Ciomadul-Puturosu area was relatively significant only for the oldest southeastern domes (Dealul Mare, Puturosu and Balvanyos). At Puturosu, even the vent part of the dome is partly exposed, related likely to the significant uplift of the Cretaceous flysch and associated accelerated erosion. By contrast, the even older Dealul Mare dome, due probably to its lower position, still preserves a regular dome shape showing apparently little erosion.

Szakács et al. (2015) presented a total volume of 8.74 km^3 for Ciomadul (including the southern peripheral domes but without erosionally removed material), which is very similar to our calculations. However, in some cases, their individual dome volumes (see Table 4 in Szakács et al. 2015) are significantly larger than our estimates as listed in Table 1. For example, for Dealul Mare, Szakács et al. (2015) estimate 0.57 versus 0.30 km^3 of this work; for Haramul Mic, the difference is 0.34 versus 0.19 km^3; and for Puturosu, 0.17 versus 0.07 km^3.

Time-averaged magma output rates—implications for long-term lava dome growth

On the basis of the volumetrical results (Table 1) and the new geochronological data (Tables 1, 2), time-averaged magma output rates of Ciomadul can be calculated. Certainly, obtaining such rates depends on the number of available radiometric ages and their resolution. The thirteen new K-Ar ages obtained here do not yield constraints to calculate

eruption-scale extrusion rates, but can be used to infer long-term evolutionary trends of Ciomadul in a worldwide context.

The overall magma output rate of Ciomadul, considering its ~ 8.00 ± 0.55 km^3 original volume and the ~ 850– < 30 ka time period of dome formation, is 9.70 ± 0.51 km^3/My (or 0.0097 ± 0.00051 km^3/ky). Note that the errors are simply propagated from the overall error estimate presented in Table 1. This value is almost identical to the ~ 9 km^3/My suggested by Szakács et al. (2015) who, on this basis, inferred a low-frequency, low-output activity for the system.

However, such a rate can be refined, benefitting from the detailed volumetry of individual domes and the new K-Ar ages. We divide the activity of Ciomadul-Puturosu into two stages (Fig. 4) Stage 1 involved formation of the older Puturosu, Balvanyos and Dealul Mare domes. These were emplaced between 850 and 440 ka and are volumetrically much smaller than the domes of stage 2. Stage 2 involved formation of the younger, main lava dome complex over the past ~ 200 ky, and encompasses ~ 95% of the volume. According to the available radiometric ages, the two stages were separated by a ~ 250 ky repose period.

Based on Fig. 4 (see also Lahitte et al. this volume), the two stages of subsequent activity suggest two different magma output trends, with a moderate output rate followed by a significantly increased output rate. For the first stage (between ~ 850–440 ka), the rate is 0.0012 ± 0.0001 km^3/ky, whereas, after the quiescence, in the second stage (~ 200–30 ka) the rate is 0.0374 ± 0.0019 km^3/ky. The ~ 30-fold increase means that most of Ciomadul's volume, 7.53 ± 0.51 km^3 (including the volcaniclastic aprons and the calculated erosion for the central dome area), was emplaced within the ~ 200–30 ka interval. Thus, magma output rate calculation depends on which time interval is considered: the increased rate during ~ 200– < 30 ka is a rate four times higher than the lifetime-averaged long-term output.

This finding modifies the conclusion of a generally low output over the lifetime of such a system. For example, White et al. (2006) reported long-term eruption rates for silicic volcanoes ranging from $< 10^{-5}$ km^3/ky to 10^{-2} km^3/yr., the average being $2.3 \pm 0.8 \times 10^{-3}$ km^3/yr. for andesites and $4.0 \pm 1.4 \times 10^{-3}$ km^3/yr. for rhyolites. In this context, the 0.0012 km^3/ky (=1.2×10^{-3} km^3/ky) magma output rate for stage 1 is low. However, the 3.74×10^{-2} km^3/ky magma output rate stage 2, during which most lava domes were formed, is 10–15 times higher than the worldwide average; even the long-term Ciomadul rate, averaged for the whole life time (9.7×10^{-3} km^3/ky), is 2–4 times higher than the worldwide average. As such, the second stage can be considered an exceptionally intense period of activity relative to the general decrease of magma output along the East Carpathians (e.g. Szakács et al. 1993; Karátson and Timár 2005; Szakács et al. 2015).

Eruption-scale magma output rates, commonly referred to as lava extrusion rates (i.e. those characterising the real emplacement of individual lava domes; cf. Fink and Anderson 2000), are another issue, which cannot be addressed using the available chronological data of Ciomadul, but require comparison with worldwide analogues. As seen from the aforementioned historical cases, domes with volumes of 0.1 to 0.5 km^3 may be emplaced in several months up to tens

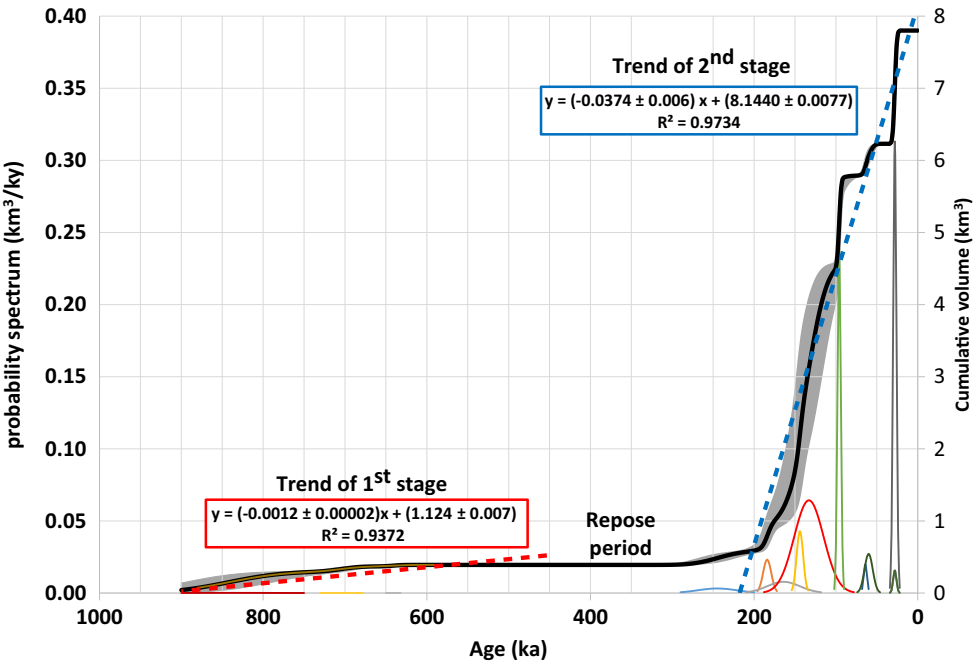


Fig. 4 Magma output rates of Ciomadul with time. Note the two different trends in the first and second stage with correlation coefficient values (coloured boxes). The range of values under the cumulative volume curve (marked as a grey area) shows the uncertainties of the given volume through time. The thin Gaussian-like individual curves refer to the left axis, whereas the thick black curve and the red and blue dashed trends refer to right axis

of years. The DomeHaz database (Ogburn et al. 2015) contains information for roughly 400 lava dome-forming episodes, less than half of which have reported durations (Wolpert et al. 2015). Most of the recorded dome-forming eruptions lasted < 6 years. However, nine lasted > 20 years, and five lasted > 50 years (Wolpert et al. 2015). The longest durations include those of Santiaguíto, Guatemala (97 years since 1922, ongoing, Sangay, Ecuador (187 years, 1729–1916), and Merapi (251 years since 1768, ongoing). Notably, dome extrusion at Santiaguíto has been almost continuous (although variable between 0.2 and 2.1 m^3/s (Rose 1987; Harris et al. 2003), but other long-lived eruptions showed frequent pauses up to several years.

The reported durations make it possible to obtain a frequency relationship. The near-linearity trend suggests that the durations follow a Pareto distribution (a power-law probability distribution: Wolpert et al. 2015). This finding, with respect to the duration of the longest-lived known eruptions (close to 300 years), implies that dome eruptions lasting for thousands of years (or even longer) are unlikely.

The case of Merapi volcano (Indonesia) gives insight into the temporal variation of lava extrusion over hundreds of years (e.g. Siswowidjoyo et al. 1995; Costa et al. 2013; Ogburn et al. 2015). The recent Merapi cone has a several thousand year-long eruptive history (Gertisser et al. 2012) and, in particular, is characterised by a period of dome extrusion since at least 1768, when historical accounts of eruptions became more frequent (Voight et al. 2000). Records and assumptions suggest that all dome-forming episodes within this period were part of a continuous activity, fed by a constant magma supply, with intermittent explosions up to VEI = 4 (Siswowidjoyo et al. 1995; Gertisser et al. 2011). Merapi's latest dome-forming eruptions in 2006 and 2010 showed observed lava extrusion rates of 2.5 to as high as 35 m^3/s (Ratdomopurbo et al. 2013; Pallister et al. 2013). Such high rates can occur occasionally at a number of other lava domes worldwide, including Redoubt, 2009 (> 30 m^3/s maximum rate), Mt. St. Helens cryptodome, 1980 (> 40 m^3/s maximum rate), Shikotsu, 1909 (> 115 m^3/s time average rate), or Rinjani, 1944 (> 120 m^3/s time average rate (Newhall and Melson 1983; Swanson and Holcomb 1990; Miller 1994; Fink and Griffiths 1998; Ogburn et al. 2015).

Numerically, such high rates during eruptive episodes are clearly smoothed out to long-term averages rates, such as those calculated here for Ciomadul. For instance, a 40 m^3/s lava extrusion rate scales up to 1260 km^3/ky. This latter figure is 34,000 times higher than the second-stage magma output rate of 0.0374 km^3/ky at Ciomadul, and implies long repose periods between the active episodes. The length of the inactive periods would thus have had time scales of tens or hundreds of thousands of years. For Ciomadul, Szakács et al. (2015) preferred a small number of eruptive stages separated by long repose intervals (on the order of 10^5 years). To quantify the frequency distribution of eruptions within such eruptive stages, again we can take the example of Merapi volcano. Within its ongoing active period, for the time interval 1890–1992, a 100-year average rate of 100,000 m^3/month (equalling to 1.2 km^3/ky) has been calculated (Siswowidjoyo et al. 1995). This rate is still 32 times higher than that during the second-stage activity at Ciomadul. Therefore, assuming, for instance, a Merapi-type intensity at Ciomadul, during its second stage the average repose period may have lasted ~ 31 times longer than an eruptive period (this period including dome-forming episodes and pauses, as observed at Merapi between 1890 and 1992).

Implications for the volcano-geomorphological evolution of Ciomadul

The geomorphological evolution of the lava dome complex is summarised in Fig. 5. The volcanism of the Ciomadul-Puturosu group developed on a gently westward-dipping erosional surface consisting mostly of Cretaceous flysch and rarer old (~ 2 Ma) Pilişca andesites. The volcanism possibly occupied episodically the South Ciuc basin palaeolake (Fielitz and Seghedi 2005; Karátson et al. 2013). Following the emplacement of the older, isolated southern domes of Murgul Mare (~ 2 Ma), Murgul Mic (age unknown) and the lava flows of Luget-Malnaş (also ~ 2 Ma), the oldest Ciomadul domes (Dealul Mare, Puturosu and Balvanyos) were emplaced at ~ 850–440 ka (Fig. 5a). Dome volumes remained under 1 km^3 in total. After a repose of ca. 250 ky, dome activity resumed in the north of the volcanic edifice (Haramul Mic ~ 200 ka), followed by the Cetății dome at ~ 180 ka, the Comloş and Ciomadul Mare central dome complex at ~ 150–130 ka (Fig. 5b), and eventually by the peripheral Haramul Mare dome at ~ 100 ka (Fig. 5c).

Karátson et al. (2013) proposed an explosion-crater-forming event (with a crater diameter of 2–2.5 km) that truncated the Ciomadul Mare dome(s). Based on the new K-Ar age of 133 ± 18 ka for the Ciomadul Mare dome (Lahitte et al. this volume), such a large eruption could have occurred shortly after this date. On the other hand, timing of the Mohoş crater formation can now be well-constrained by the newly obtained ages of the rim domes given here and Lahitte et al. (this volume). The Piscul Pietros lava dome (or flow) has a similar age as the Vf. Mohoş dome (60–65 ka, Table 2). Both domes were emplaced morphologically at or around the Mohoş crater rim. Piscul Pietros is cut by the crater rim, implying that the formation of Mohoş crater postdates the dome emplacement at around 65–60 ka. Following the explosive activity of the Mohoş crater, the crater underwent

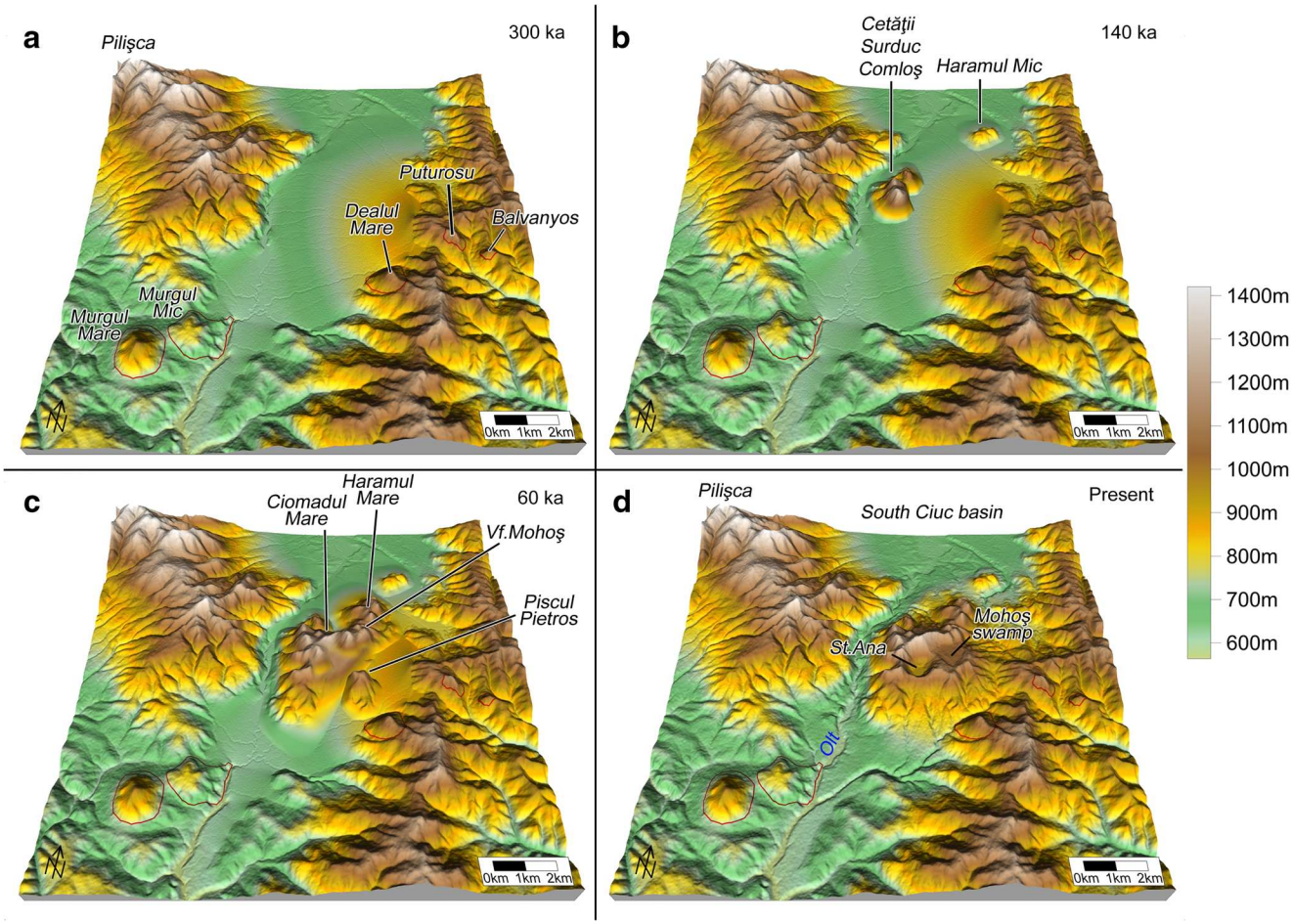


Fig. 5 Palaeo-geomorphological evolutionary stages of Ciomadul. **a** At ~300 ka: only the southeastern peripheral domes exist, which formed between ~850–440 ka. **b** At ~140 ka: subsequent to the emplacement of Haramul Mic (~200 ka), formation of the western domes takes place. **c** At ~60 ka: subsequent to the empacement of the central dome complex (Ciomadul Mare, ~130 ka), formation of the small domes of Vf. Mohos and Piscul Pietros takes place at ~65–60 ka, no central craters exist. **d** Final explosive phase (~51–28 ka) which results in the current twin-crater morphology of Mohos and St. Ana

progressive lacustrine infilling. The lacustrine succession comprises several tephra layers, e.g. the TGS and LSPA tephras presented above (Karátson et al. 2016; Wulf et al. 2016), that are interpreted to have originated from St. Ana crater, a new vent formed subsequent to the Mohoş crater (Fig. 5d).

This latest eruptive phase of Ciomadul has also been constrained in our study (Table 2) by dating the lava dome breccia that drape the southern crater slopes of St. Ana. The presence of this rock testifies that the final activity was not only explosive, as testified by the LSPA tephra, but also lava dome forming. This is suggested by the new K-Ar age of 27.7 ± 1.4 ka which is in agreement with the oldest ^{14}C age of 27,180 ± 462 cal yr. BP of the St. Ana lacustrine sequence, i.e. the minimum formation age of the crater lake (Karátson et al. 2016), obtained from the deepest cored level (reaching into the pyroclastics deposits wrapping the crater bottom; Magyari et al. 2014). Moreover, within 2σ error, the age is coeval with the youngest ^{14}C age of 29,597 ± 610 cal yr. BP for the uppermost (LSPA) tephra layer in the Mohos crater (Karátson et al. 2016; Wulf et al. 2016). On this basis, we propose the final eruption (LSPA) to be responsible for excavating the present shape of St. Ana crater, which was presumably the site of the exploded, latest lava dome.

Notably, the last two explosive eruptions, i.e. TGS and LSPA, are stratigraphically and geochemically distinguishable in the Mohos lacustrine succession (Karátson et al. 2016; Wulf et al. 2016). To highlight that they are chronologically distinct, a simple graphic display presenting their 2σ uncertainty is shown in Fig. 6. For the TGS eruption, we used the well-defined phase-2 pumiceous pyroclastic flow (Karátson et al. 2016), and all published ^{14}C and (U-Th)/He ages (Vinkler et al. 2007; Harangi et al. 2010, 2015; Karátson et al. 2016), while for the last eruption, our individual ages obtained on lava breccia are presented with error bars. The two ages do not overlap even at 2σ level, and show that the last eruption took place at < 30 ka.

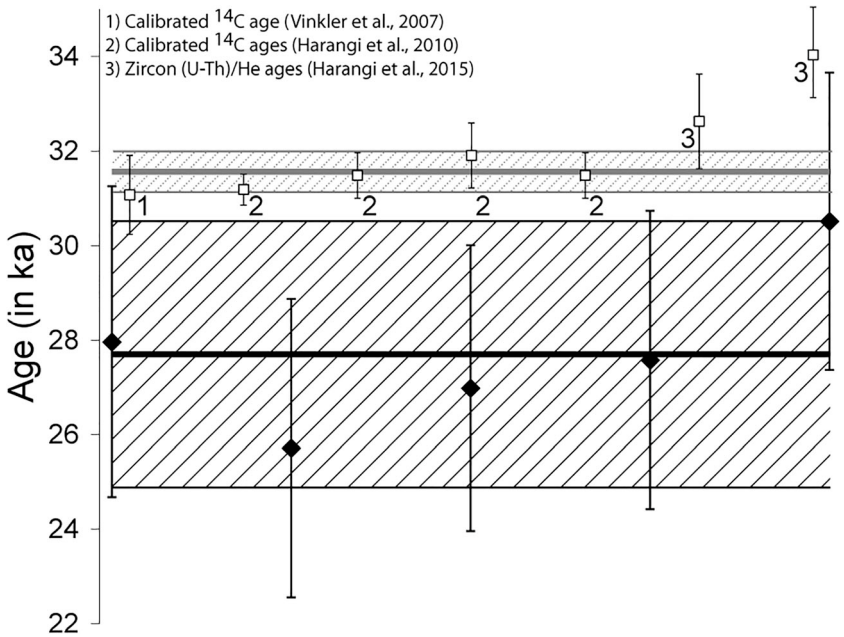


Fig. 6 Distinction between the latest eruption of Ciomadul (new K-Ar age 27.7 ± 1.4 ka, 1σ) (black solid line) with the age of the TGS eruption, phase 2 pyroclastic flow (pale grey solid line). Individual ages (solid vertical lines) are presented here at 2σ uncertainty level. For the TGS eruption, age data are taken from the given references 1), 2) and 3). Dashed, striped diagonal patterns show the mean 2σ uncertainties: 31.6 ± 0.4 ka for the TGS eruption, and 27.7 ± 2.8 ka for the latest eruption

Conclusions

Careful volumetrical analysis, taking into account the present-day volumes of the lava domes constituting the Ciomadul lava dome complex, their base level and the erosionally removed material, suggests a total volume of ~ 8 km^3. By using new K-Ar ages obtained by the Cassignol-Gillot technique, we have determined long-term magma output rates during emplacement of this volume (~ 850 to < 30 ka). Our main finding is that magma output varied significantly during the lifetime of the volcanic complex, with output rates being more than 30 times higher during the second eruptive stage (~ 200 to < 30 ka) than during the first stage (~ 850 to 440 ka). Moreover, our results help clarify the main steps of the volcano-geomorphological evolution of Ciomadul, in particular at the central crater area.

In detail, Ciomadul represents a medium-sized lava dome complex. Its total volume of ~ 8.00 ± 0.55 km^3 (including erosionally removed material which is only ~ 2%) spreads over an area of 74.5 km^2. The first extrusive volcanic stage between ~ 850 to 450 ka, constrained to the SE part, was volumetrically subordinate, whereas, after a ~ 250 ky repose period, the central dome complex was emplaced in the second stage between ~ 200 to < 30 ka representing most of the total volume of the volcanic edifice (~ 7.53 ± 0.51 km^3). For the whole lifetime of Ciomadul, a long-term magma output rate of 9.7 km^3/My (0.0097 km^3/ky) can be calculated. Within this, the first stage was characterised by a low magma output rate of 0.0011 km^3/My, whereas the second stage by a significantly increased magma output rate of 0.0374 km^3/My. The smallest distinguishable domes at Ciomadul are characterised by volumes in the range of 0.1–0.4 km^3, similar to, for example those at Soufrière Hills (Montserrat). These domes could have erupted over several years or decades. Although the chronological resolution of individual eruptions (and related volumes) cannot be assessed, it can be quantified, based on worldwide analogues, that active periods of Ciomadul's lava dome extrusion, which lasted up to hundreds of years, may have been separated by repose periods lasting ~ 30 times longer.

Our findings also constrain the geomorphic evolution of the dome complex which yields an example of millenia-scale evolution of medium-sized extrusive silicic systems. Based on the main findings at Ciomadul, lava dome activity can last for hundreds of ky producing small volumes (≤ 1 km^3). Individual domes of 0.1–1.0 km^3 in volume can grow separately, however, they can also coalesce to form compound landforms on a 1.0 km^3 scale. As the Ciomadul example suggests, reaching a volume up to 10 km^3 can occur at a timescale of 100 ky. The domes may display central craters, which can be filled, covered and/or obliterated by subsequent lava dome eruptions. At Ciomadul, the formation of relatively large craters (≤ 2 km in diameter) was due to an increased late-stage explosivity (and no dome infill at the end), although the volume of pyroclastic products that makes up the dome complex is less than one-tenth of the extruded lava rocks.

Acknowledgements Constructive reviews by Károly Németh and Mike James and editorial handling by Stephen Self and Andrew Harris are appreciated.

Funding information Open access funding provided by Eötvös Loránd University (ELTE). This work has been supported by the Hungarian Scientific Research Fund NKFIH-OTKA No. K 115472 to DK. Financial support for PL and SD was also provided by the SYSTER 2017 program of INSU, CNRS.

Appendix

Error factors in volume calculations for selected volcanic edifices (modified and completed on the basis of Telbisz et al. 2017)

Table 4 Error factors in volume calculations for selected volcanic edifices (modified and completed on the basis of Telbisz et al. 2017)

Name	V_{ref} (km^3)	Area (km^2)	Height (m)	best resolution	Volume differences (dV, %) relative to V_{ref} due to							
					resolution diff.		integration method		delimitation diff. (1% of R)		base level diff. (1% of height)	
					dV_{1s}	dV_{3s}	dV_{rect}	dV_{Simp}	dR (*m*)	dV_{del} (%)	dBL (*m*)	dV_{BL} (%)
Unnamed dome (Shasta North; USA)	0.07	0.8	464	1/9"	1.45%	2.31%	0.13%	0.00%	5	1.2%	5	3.3%
Puu Waawaa (USA)	0.18	2.0	407	1/3"	4.61%	2.24%	0.05%	0.01%	8	0.9%	4	5.0%
Murgul Mare (ROM)	0.27	3.0	326	1"		0.44%	0.16%	0.02%	10	0.4%	3	3.1%
Black Butte (Shasta; USA)	1.12	5.5	764	1/3"	0.95%	1.01%	0.04%	0.00%	13	0.3%	8	3.3%
Putauaki (New Zealand)	1.62	9.6	773	1/3"	7.12%	6.64%	0.00%	0.00%	17	0.4%	8	4.7%
Lookout (Or, USA)	3.36	27.3	184	1/3"	6.01%	6.10%	0.00%	0.00%	29	0.4%	2	1.7%
Ciomadul (ROM), whole	7.80	72.9	721	1"		0.02%	0.14%	0.00%	48	1.6%	7	5.4%
Crater Mt. (Ca, USA)	12.03	87.4	578	1/3"	5.23%	5.19%	0.00%	0.00%	53	0.2%	6	4.4%
Sutter Buttes (Ca, USA)	16.43	182.5	634	1/3"	0.44%	0.45%	0.00%	0.00%	76	0.1%	6	7.8%
Burney (USA)	18.81	117.4	1472	1/3"	2.28%	2.40%	0.01%	0.00%	61	1.1%	15	9.8%
Tongariro (New Zealand)	101.65	496.4	1816	1/3"	1.24%	1.04%	0.00%	0.00%	126	1.1%	18	10.1%
Ruapehu (New Zealand)	244.13	1176.9	2383	1/3"	1.83%	1.91%	0.00%	0.00%	194	1.0%	24	12.5%
Adams (USA)	310.22	756.0	3182	1/3"	1.18%	1.23%	0.00%	0.00%	155	1.0%	32	8.3%
Shasta (USA), whole	327.84	767.8	3510	1/3"	1.07%	1.08%	0.01%	0.00%	156	1.0%	35	5.8%
Minimum	0.1	0.8	183.9		0.44%	0.02%	0.00%	0.00%	5	0.09%	2	1.7%
Maximum	327.8	1176.9	3510.3		7.12%	6.64%	0.16%	0.02%	194	1.61%	35	12.5%
Mean	74.7	264.7	1229.6		2.78%	2.29%	0.04%	0.00%	68	0.76%	12	6.1%

V_{ref}, reference volume calculated from the best resolution DTM, the most reliable delimitation and base level, using trapezoidal rule integration method; dV_{1s}, dV_{3s}, volume difference between V_{ref} and the volume got by using 1″ (3″) SRTM; dV_{rect}, volume difference between V_{ref} and the volume got by using rectangular rule; dV_{Simp}, volume difference between V_{ref} and the volume got by using Simpson's rule method; dV_{del}, volume difference between V_{ref} and the volume got by changing the volcano outline by 1% of the mean radius (dR); dV_{BL}, volume difference between V_{ref} and the volume got by changing the volcano base level by 1% of height (dBL)

Open Access This article is distributed under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 International License (http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided you give appropriate credit to the original author(s) and the source, provide a link to the Creative Commons license, and indicate if changes were made.

References

Bányai J (1917) Kézdivásárhely vidéke Háromszék vármegyében (The land of Kézdivásárhely in Háromszék county; in Hungarian). Földtani Közlöny (Bull Hung Geol Soc) XLVII:1–20

Bányai J (1964) The eruptive age of Lake Szent Anna twin craters (a Szent Anna-tavi ikerkráter erupciójának kora; in Hungarian). Földrajzi Értesítő (Hung Geogr Bull) XIII(1):57–66

Bemis K, Ferencz M (2017) Morphometric analysis of scoria cones: the potential for inferring process from shape. In: Németh K, Carrasco-Nuñez G, Aranda-Gomez JJ, Smith IEM (eds) Monogenetic Volcanism. Geol Soc London spec Publ 446, 61–100

Bemis K, Walker J, Borgia A, Turrin B, Neri M, Swisher C (2011) The growth and erosion of cinder cones in Guatemala and El Salvador: models and statistics. J Volcanol Geotherm Res 201(1):39–52

Blake S (1989) Viscoplastic models of lava domes, IAVCEI Proceddings in Volcanology, Vol 2, Lava flows and domes. Springer Verlag, Heidelberg, pp 88–126

Bohnenstiehl DR, Howell JK, White SM, Hey RN (2012) A modified basal outlining algorithm for identifying topographic highs from gridded elevation data, part 1: motivation and methods. Comput Geosci 49:308–314

Boudon G, Balcone-Boissard H, Villemant B, Morgan DJ (2015) What factors control superficial lava dome explosivity? Sci Rep 5, Article number: 14551. https://doi.org/10.1038/srep14551

Bulla B (1948) A két Csiki-medence és az Olt-völgy kialakulásáról (on the formation of the two Ciuc basins and Olt valley; in Hungarian). Földrajzi Közlemények (Bull Hung Geogr Soc) LXXVI:134–156

Capra L, Roverato M, Groppelli G, Caballero L, Sulpizio R, Norini G (2015) Glacier melting during lava dome growth at Nevado de Toluca volcano (Mexico): evidences of a major threat before main eruptive phases at ice-caped volcanoes. J Volcanol Geotherm Res 294:1–10

Carr BB, Clarke AB, Vanderkluysen L (2016) The 2006 lava dome eruption of Merapi volcano (Indonesia): detailed analysis using MODIS TIR. J Volcanol Geotherm Res 311:60–71

Chalot-Prat F, Gîrbacea R (2000) Partial delamination of continental mantle lithosphere, uplift-related crust–mantle decoupling, volcanism and basin formation: a new model for the Pliocene–quaternary evolution of the southern East-Carpathians, Romania. Tectonophysics 327:83–107

Charbonnier SJ, Gertisser R (2008) Field observations and surface characteristics of pristine block-and-ash flow deposits from the 2006 eruption of Merapi volcano, Java, Indonesia. J Volcanol Geotherm Res 177:971–982

Christiansen RL, Lowenstern JB, Smith RB, Heasler H, Morgan LA, Nathenson M, Mastin LG, Muffler LJP, Robinson JE (2007) Preliminary assessment of volcanic and hydrothermal hazards in Yellowstone National Park and vicinity. US Geol Surv Open-File Report 2007–1071, 94 p

Costa F, Andreastuti S, Bouvet de Maisonneuve C, Pallister JS (2013) Petrological insights into the storage conditions, and magmatic processes that yielded the centennial 2010 Merapi explosive eruption. J Volcanol Geotherm Res 261:209–235

Davidson J, de Silva S (2000) Composite volcanoes. In: Sigurdsson H et al (eds) Encyclopedia of volcanoes. Academic, New York, pp 663–681

de Silva SL, Self S, Francis PW, Drake RE, Ramirez RR (1994) Effusive silicic volcanism in the Central Andes: the Chao dacite and other young lavas of the Altiplano-Puna volcanic complex. J Geophys Res 99:17,805–17,825

Diefenbach AK, Bull KF, Wessels RL, McGimsey RG (2013) Photogrammetric monitoring of lava dome growth during the 2009 eruption of redoubt volcano. J Volcanol Geotherm Res 259:308–316

Euillades LD, Grosse P, Euillades PA (2013) NETVOLC: an algorithm for automatic delimitation of volcano edifice boundaries using DEMs. Comput Geosci 56:151–160

Favalli M, Karátson D, Mazzarini F, Pareschi MT, Boschi E (2009) Morphometry of scoria cones located on a volcano flank: a case study from Mt. Etna (Italy), based on high-resolution LiDAR data. J Volcanol Geotherm Res 186(3–4):320–330

Favalli M, Fornaciai A, Mazzarini F, Harris A, Neri M, Behncke B, Pareschi MT (2010) Evolution of an active lava flow field using a multitemporal LIDAR acquisition. J Geophys Res 115:B11203

Fielitz W, Seghedi I (2005) Late Miocene-Quaternary volcanism, tectonics and drainage system evolution on the East Carpathians, Romania. In: Cloetingh S et al. (eds) Special volume fourth Stephan Müller conference of the EGU on geodynamic and tectonic evolution of the Carpathian arc and its foreland. Tectonophys 410: 111–136

Fink JH, Anderson SW (2000) Lava domes and coulées. In: Sigurdsson H et al (eds) Encyclopedia of volcanoes. Academic, New York, pp 317–319

Fink JH, Anderson SW (2017) Emplacement of Holocene silicic lava flows and domes at Newberry, South Sister, and Medicine Lake volcanoes, California and Oregon. US Geol Surv Sci Investigations Rep 2017–5022–I, 41 p. https://doi.org/10.3133/sir20175022I

Fink JH, Griffiths RW (1998) Morphology, eruption rates, and rheology of lava domes: Insights from laboratory models. J Geophys Res 103(527) https://doi.org/10.1029/97JB02838

Fornaciai A, Behncke B, Favalli M, Neri M, Tarquini S, Boschi E (2010) Detecting short-term evolution of Etnean scoria cones: a LIDAR-based approach. Bull Volcanol 72:1209–1222

Fornaciai A, Favalli M, Karátson D, Tarquini S, Boschi E (2012) Morphometry of scoria cones, and their relation to geodynamic setting: A DEM-based analysis. J Volcanol Geotherm Res 217:56–72

Germa A, Quidelleur X, Labanieh S, Lahitte P, Chauvel C (2010) The eruptive history of Morne Jacob volcano (Martinique Island, French West Indies): Geochronology, geomorphology and geochemistry of the earliest volcanism in the recent Lesser Antilles arc

Germa A, Lahitte P, Quidelleur X (2015) Construction and destruction of Mont Pelée volcano: volumes and rates constrained from a geomorphological model of evolution. J Geophys Res Earth Surf 120(7): 1206–1226

Gertisser R, Charbonnier SJ, Troll VR, Keller J, Preece K, Chadwick JP, Barclay J, Herd RA (2011) Merapi (Java, Indonesia): anatomy of a killer volcano. Geol Today 27(2):57–62

Gertisser R, Charbonnier SJ, Keller J, Quidelleur X (2012) The geological evolution of Merapi volcano, Central Java, Indonesia. Bull Volcanol 74:1213–1233

Gillot PY, Cornette Y (1986) The Cassignol technique for potassium-argon dating, precision and accuracy – examples from the late Pleistocene to recent volcanics from southern Italy. Chem Geol 59: 205–222

Grosse P, Kervyn M (2018) Morphometry of terrestrial shield volcanoes. Geomorphology 304:1–14

Grosse P, van Wyk de Vries B, Petrinovic IA, Euillades PA, Alvarado GE (2009) Morphometry and evolution of arc volcanoes. Geology 37(7):651–654

Grosse P, van Wyk de Vries B, Euillades PA, Kervyn M, Petrinovic IA (2012) Systematic morphometric characterization of volcanic edifices using digital elevation models. Geomorphology 136(1):114–131

Hale AJ, Wadge G (2008) The transition from endogenous to exogenous growth of lava domes with the development of shear bands. J Volcanol Geotherm Res 171(3-4):237–257

Harangi S, Molnár M, Vinkler AP, Kiss B, Tull AJT, Leonard AG (2010) Radiocarbon dating of the last volcanic eruptions of Ciomadul volcano, Southeast Carpathians, eastern-central Europe. Radiocarbon 52(2–3):1498–1507

Harangi S, Lukács R, Schmitt AK, Dunkl I, Molnár K, Kiss B, Seghedi I, Novothny Á, Molnár B (2015) Constraints on the timing of quaternary volcanism and duration of magma residence at Ciomadul volcano, east–central Europe, from combined U–Th/He and U–Th zircon geochronology. J Volcanol Geotherm Res 301:66–80

Harris AJL, Rose WI, Flynn LP (2003) Temporal trends in lava dome extrusion at Santiaguito 1922–2000. Bull Volcanol 65(2–3):77–89

Harris AJL, Vallance JW, Kimberly P, Rose WI, Matías O, Bunzendahl E, Flynn LP, Garbeil H (2006) Downstream aggradation owing to lava dome extrusion and rainfall runoff at Volcán Santiaguito, Guatemala. In: Rose WI, Bluth GJS, Carr MJ, Ewert JW, Patino LC, Vallance JW (eds) Volcanic hazards in Central America. Geol Soc Amer spec paper 412: 85–104

Hildreth W (1983) The compositionally zoned eruption of 1912 in the Valley of Ten Thousand Smokes, Katmai National Park, Alaska. J Volcanol Geotherm Res 18(1-4):1–56

Hildreth W, Fierstein J (2012) The Novarupta-Katmai eruption of 1912—largest eruption of the twentieth century; centennial perspectives. US Geol Surv Prof Pap 1791:259

Jánosi Cs (1983) Prospecțiuni pentru piatră ponce in perimetrul Tușnad–Bixad (Județele Harghita, Covasna), Scale 1:5000. Unpublished geological report, I.P.E.G., Miercurea Ciuc, Romania

Karátson D (1996) Rates and factors of stratovolcano degradation in a continental climate: a complex morphometric analysis of nineteen Neogene/Quaternary crater remnants in the Carpathians. J Volcanol Geotherm Res 73:65–78

Karátson D (2007) From Börzsöny to Hargita. Volcanology, geomorphic evolution, paleogeography (in Hungarian). Typotex, Budapest, pp. 463

Karátson D, Timár G (2005) Comparative volumetric calculations of two segments of the Carpathian Neogene/Quaternary volcanic chain using SRTM elevation data: implications for erosion and magma output rates. Z Geomorphol Suppl 140:19–35

Karátson D, Telbisz T, Singer BB (2010a) Late-stage volcano-geomorphic evolution of the Pleistocene San Francisco Mountain, Arizona (USA), on the basis of high-resolution DEM analysis and Ar-Ar chronology. Bull Volcanol 72:833–846

Karátson D, Favalli M, Tarquini S, Fornaciai A, Wörner G (2010b) The regular shape of stratovolcanoes: a DEM-based morphometrical approach. J Volcanol Geotherm Res 193:171–181

Karátson D, Telbisz T, Wörner G (2012) Erosion rates and erosion patterns of Neogene to Quaternary stratovolcanoes in the Western Cordillera of the Central Andes: an SRTM DEM based analysis. Geomorphology 139-140:122–135

Karátson D, Telbisz T, Harangi SZ, Magyari E, Dunkl I, Kiss B, Jánosi CS, Veres D, Braun M, Fodor E, Biró T, Kósik SZ, von Eynatten H, Lin D (2013) Morphometrical and geochronological constraints on the youngest eruptive activity in East-Central Europe at the Ciomadul (Csomád) lava dome complex, East Carpathians. J Volcanol Geotherm Res 157-158:56–72

Karátson D, Wulf S, Veres D, Magyari EK, Gertisser R, Timar-Gabor A, Novothny Á, Telbisz T, Szalai Z, Appelt O, Bormann M, Jánosi CS, Hubay K, Schäbitz F (2016) The latest explosive eruptions of Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians – a tephrostratigraphic approach for the 51–29 ka BP time interval. J Volcanol Geotherm Res 319:29–51

Karátson D, Veres D, Wulf S, Gertisser R, Magyari EK, Bormann M (2017) The youngest volcanic eruptions in East-Central Europe—new findings from the Ciomadul lava dome complex, East Carpathians, Romania. Geol Today 33(2):60–65

Karátson D, Veres D, Lahitte P, Wulf S, Telbisz S, Szakács A, Gertisser R, Novothny Á, Dibacto S (2018a) Volcanic and geomorphic evolution of the Late Quaternary Ciomadul lava dome complex, the youngest eruptive center of the Carpathian Basin. In: Hambach U, Veres D (eds) Crossing New Frontiers: INTAV International Field Conference on Tephrochronology, "Tephra Hunt in Transylvania", Moieciu de Sus, Romania. Book of Abstracts, Keynote 5, 23–24 pp

Karátson D, Telbisz T, Lahitte P, Dibacto S, Veres D, Szakács A, Gertisser R, Jánosi Cs (2018b) Magma output rates of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) lava dome complex using digital elevation model (DEM) volumetry and Cassignol - Gillot K-Ar dating. In: Mattoni S (ed) Cities on Volcanoes 10: "Millenia of Stratification between Human Life and Volcanoes: strategies for coexistence", Naples, Italy. Abstracts Volume, Istituto Nazionale di Geofisica e Vulcanologia, p 355

Kereszturi G, Németh K (2012) Structural and morphometric irregularities of eroded Pliocene scoria cones at the Bakony-Balaton Highland volcanic field, Hungary. Geomorphology 136:45–58

Kereszturi G, Procter J (2016) Error in topographic attributes for volcanic hazard assessment of the Auckland Volcanic Field (New Zealand). New Zealand J Geol Geophys 59(2):286–301

Kereszturi G, Németh K, Cronin SJ, Agustin-Flores J, Smith IEM, Lindsay J (2013) A model for calculating eruptive volumes for monogenetic volcanoes - implication for the Quaternary Auckland Volcanic Field, New Zealand. J Volcanol Geotherm Res 266:16–33

Kervyn M, Ernst GGJ, Goossens R, Jacobs P (2008) Mapping volcano topography with remote sensing: ASTER vs. SRTM. Int J Remote Sens 29(22):6515–6538

Kervyn M, Ernst GGJ, Carracedo JC, Jacobs P (2012) Geomorphometric variability of "monogenetic" volcanic cones: evidence from Mauna Kea, Lanzarote and experimental cones. Geomorphology 136:59–75

Kis BM, Ionescu A, Cardellini C, Harangi S, Baciu C, Caracausi A, Viveiros F (2017) Quantification of carbon dioxide emissions of Ciomadul, the youngest volcano of the Carpathian-Pannonian Region (Eastern-Central Europe, Romania). J Volcanol Geotherm Res 341:119–130

Kiss B, Harangi S, Ntaflos T, Mason PRD, Pál-Molnár E (2014) Amphibole perspective to unravel pre-eruptive processes and conditions in volcanic plumbing systems beneath intermediate arc volcanoes: a case study from Ciomadul volcano (SE Carpathians). Contrib Mineral Petrol 167(3):1–27

Kuenzi WD, Horst OH, McGehee RV (1979) Effect of volcanic activity on fluvial-deltaic sedimentation in a modern arc-trench gap, southwestern Guatemala. Geol Soc Am Bull 90:827–838

Lahitte P, Samper A, Quidelleur X (2012) DEM-based reconstruction of southern Basse-Terre volcanoes (Guadeloupe archipelago, FWI): contribution to the Lesser Antilles Arc construction rates and magma production. Geomorphology 136(1):148–164

Lahitte P, Dibacto S, Karátson D, Gertisser R, Veres D (this volume) Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians I: timing of lava dome activity constrained by the unspiked K-Ar method. Bull Volcanol xxx

Lavigne F, Degeai J-P, Komorowski J-C, Guillet S, Robert V, Lahitte P, Oppenheimer C, Stoffel M, Vidal CM, Surono, Pratomo I, Wassmer P, Hajdas I, Hadmoko DS, de Belizal E (2013) Source of the great A.D. 1257 mystery eruption unveiled, Samalas volcano, Rinjani Volcanic Complex, Indonesia. Proc Natl Acad Sci U S A 110(42): 16742–16747

Lexa J, Seghedi I, Németh K, Szakács A, Konečný V, Pécskay Z, Fülöp A, Kovács M (2010) Neogene-Quaternary volcanic forms in the Carpathian-Pannonian Region: a review. Central Eur J Geosci 2(3):207–210

Lockwood JP, Hazlett RW (2010) Volcanoes–global perspectives. Wiley-Blackwell 552 p

Magyari EK, Veres D, Wennrich V, Wagner B, Braun M, Jakab G, Karátson D, Pál Z, Ferenczy GY, St-Onge G, Rethemeyer J, Francois JP, von Reumont F, Schäbitz F (2014) Vegetation and environmental responses to climate forcing during the Last Glacial Maximum and deglaciation in the East Carpathians: attenuated response tomaximum cooling and increased biomass burning. Quat Sci Rev 106:278–298

Mason PRD, Seghedi I, Szakács A, Downes H (1998) Magmatic constraints on geodynamic models of subduction in the Eastern Carpathians, Romania. Tectonophys 297:157–176

Miller TP (1994) Dome growth and destruction during the 1989–1990 eruption of Redoubt volcano. J Volcanol Geotherm Res 62(1–4): 197–212

Molnár K, Harangi SZ, Lukács R, Dunkl I, Seghedi I, Schmitt AK, Kiss B, Garamhegyi T, Seghedi I (2018) The onset of the volcanism in the Ciomadul Volcanic Dome Complex (Eastern Carpathians): eruption chronology and magma type variation. J Volcanol Geotherm Res 354:39–56

Moriya I, Okuno M, Nakamura T, Szakács A, Seghedi I (1995) Last eruption and its 14C age of Ciomadul volcano, Romania (in Japanese with English abstract). Summaries of Researches Using AMS at Nagoya University, VI, 82–91

Moriya I, Okuno M, Nakamura T, Ono K, Szakács A, Seghedi I (1996) Radicarbon ages of charcoal fragments from the pumice flow deposit of the last eruption of Ciomadul volcano, Romania (in Japanese with English abstract). Summaries of Researches Using AMS at Nagoya University, VII, 252–255

Nakada S, Shimizu H, Ohta K (1999) Overview of the 1990-1995 eruption at Unzen volcano. J Volcanol Geotherm Res 89(1–4):1–22

Newhall CG, Melson WG (1983) Explosive activity associated with the growth of volcanic domes. J Volcanol Geophys Res 17:111–131

Nomikou P, Parks MM, Papanikolaou D, Pyle DM, Mather TA, Carey S, Watts AB, Paulatto M, Kalnins ML, Livanos I, Bejelou K, Simou E, Perros I (2014) The emergence and growth of a submarine volcano: the Kameni islands, Santorini (Greece). GeoRes J 1:8–18

Ogburn SE, Loughlin SC, Calder ES (2015) The association of lava dome growth with major explosive activity (VEI≥4): DomeHaz, a global dataset. Bull Volcanol 77:40. https://doi.org/10.1007/s00445-015-0919-x

Pallister JS, Schneider DJ, Griswold JP, Keeler RH, Burton WC, Noyles C, Newhall CG, Ratdomopurbo A (2013) Merapi 2010 eruption—Chronology and extrusion rates monitored with satellite radar and used in eruption forecasting. J Volcanol Geotherm Res 261:144–152

Pécskay Z, Edelstein O, Seghedi I, Szakács A, Kovacs M, Crihan M, Bernad A (1995) K–Ar datings of the Neogene-Quaternary calcalkaline volcanic rocks in Romania. In: Downes H, Vaselli O (eds) Neogene and related volcanism in the Carpatho-Pannonian Region. Acta Vulcanologica 7: 53–63

Pécskay Z, Lexa J, Szakács A, Seghedi I, Balogh K, Konečný V, Zelenka T, Kovacs M, Póka T, Fülöp A, Márton E, Panaiotu C, Cvetković V (2006) Geochronology of Neogene-Quaternary magmatism in the Carpathian arc and intra-Carpathian area: a review. Geol Carpath 57: 511–530

Pedersen GBM, Grosse P (2014) Morphometry of subaerial shield volcanoes and glaciovolcanoes from Reykjanes peninsula, Iceland: effects of eruption environment. J Volcanol Geotherm Res 282:115–133

Peltz S, Vajdea E, Balogh K, Pécskay Z (1987) Contributions to the geochronological study of the volcanic processes in the Călimani and Hargitha Mountains (East Carpathians, Romania). Dări de Seamă ale Sedintelor Inst. Geol Geofiz 72-73(1):323–338

Pike RJ, Clow GD (1981) Revised classification of terrestrial volcanoes and a catalog of topographic dimensions with new results on edifice volume. US Geol Surv Open-File Rep OF 81, 1038

Popa M, Radulian M, Szakács A, Seghedi I, Zaharia B (2012) New seismic and tomography data in the southern part of the Harghita Mountains (Romania, Southeastern Carpathians): connection with recent volcanic activity. Pure Appl Geophys 169(9):1557–1573

Press WH, Flannery BP, Teukolsky SA, Vetterling WT (1988) Numerical Recipes. Cambridge University Press

Priest S, Duffield WA, Malis-Clark K, Hendley II JW, Stauffer PH (2001) The San Francisco volcanic field Arizona. USGS Fact Sheet 017–01, 2 p

Ratdomopurbo A, Beauducel F, Subandriyo J, Agung Nandaka IGM, Newhall CG, Suhama SDS, Suparwaka H, Sunarta (2013) Overview of the 2006 eruption of Mt. Merapi. J Volcanol Geotherm Res 261:87–97

Ricci J, Lahitte P, Quidelleur X (2015) Construction and destruction rates of volcanoes within a tropical environment based on K-Ar dating and numerical reconstructions: examples from the Basse-Terre Island (Guadeloupe, Lesser Antilles). Geomorphology 228:597–607

Riggs NR, Hurlbert JC, Schroeder TJ, Ward SA (1997) The interaction of volcanism and sedimentation in the proximal areas of a mid-tertiary volcanic dome field, Central Arizona, USA. J Sediment Res 67: 142–153

Rose WL (1987) Volcanic activity at Santiaguito volcano 1976-1984. Geol Soc Am Bull Spec Pap 212:17–27

Ryan GA, Loughlin SC, James MR, Jones LD, Calder ES, Christopher T, Strutt MH, Wadge G (2010) Growth of the lava dome and extrusion rates at Soufriere Hills Volcano, Montserrat West Indies: 2005–2008. Geophys Res Lett 37:L00E08. https://doi.org/10.1029/2009GL041477

Salvany T, Lahitte P, Nativel P, Gillot PY (2012) Geomorphic evolution of the Piton des Neiges volcano (Réunion Island, Indian Ocean): competition between volcanic construction and erosion since 1.4 Ma. Geomorphology 136:132–147

Saunders I, Young A (1983) Rates of surface process on slopes, slope retreat and denudation. Earth Surf Process Landf 8:473–501

Scott WE, Sherrod DR, Gardner CA (2008) Overview of the 2004 to 2006, and Continuing, Eruption of Mount St. Helens, Washington. In: Sherrod DR, Scott WE, Stauffer PH (eds) A Volcano Rekindled: The First Year of Renewed Eruption at Mount St. Helens, 2004–2006. US Geol Surv Prof Pap 1750, p 856

Seghedi I, Szakács A, Udrescu C, Stoian M, Grabari G (1987) Trace element geochemistry of the South Harghita volcanics (East Carpathians). Calc-alkaline and shoshonitic association. D S Inst Geol Geofiz 72-73/1:381–397

Seghedi I, Balintoni I, Szakács A (1998) Interplay of tectonics and neogene postcollisional magmatism in the intracarpathian region. Lithos 45(1–4):483–497

Seghedi I, Downes H, Szakács A, Mason PRD, Thirlwall MF, Roşu E, Pécskay Z, Márton E, Panaiotu C (2004) Neogene-Quaternary magmatism and geodynamics in the Carpathian-Pannonian region: a synthesis. Lithos 72:117–146

Siswowidjoyo S, Suryo I, Yokoyama I (1995) Magma eruption rates of Merapi volcano, Central Java, Indonesia during one century (1890–1992). Bull Volcanol 57:111–116

Smith IEM, Németh K (2017) Source to surface model of monogenetic volcanism: a critical review. In: Németh K, Carrasco-Nuñez G, Aranda-Gomez JJ, Smith IEM (eds) Monogenetic Volcanism. Geol Soc London spec Publ 446: 1–28

Stoiber RE, Carr MJ (1973) Quaternary volcanic and tectonic segmentation of Central America. Bull Volcanol 37:304–325

Summerfield MA (1991) Global geomorphology. An lntroduction to the study of landforms. Longman Sci Tech, Harlow, copublished with Wiley, New York, NY, 537 p

Swanson D, Holcomb R (1990) Regularities in growth of the Mount St. Helens dacite dome, 1980–1986. In: Fink JH (ed) Lava flows and domes: emplacement mechanisms and Hazard implications (IAVCEI pro, 3–24 pp). Springer-Verlag, Berlin

Szakács A (2010) Post-volcanic Phenomena in the East Carpathians. In: Evelpidou N, de Figueiredo T, Mauro F, Tecim V, Vassilopoulos A (Eds) Natural heritage from East to West. Case studies from 6 EU Countries, Springer Verlag, ISBN 978–3–642-01576-2, 87–93 pp

Szakács A, Seghedi I (1986) Chemical diagnosis of the volcanics from the Southeasternmost part of the Harghita Mts. Proposal for a new nomenclature. Rev Roum Geol Geophys Geogr Geologie 30:41–48

Szakács A, Seghedi I (1990) Quaternary dacitic volcanism in the Ciomadul massif (South Harghita Mts, East Carpathians). IAVCEI general assembly, 3-8 September 1990, abstract volume, Mainz

Szakács A, Seghedi I (1995) The Călimani–Gurghiu–Harghita volcanic chain, East Carpathians, Romania: volcanological features. Acta Vulcanol 7:145–153

Szakács A, Seghedi I, Pécskay Z (1993) Pecularities of South Harghita Mts. as the terminal segment of the Carpathian Neogene to Quaternary volcanic chain. Rev Roum Geol Geophys Geogr Ser Geologie 37:21–36

Szakács A, Seghedi I, Pécskay Z, Mirea V (2015) Eruptive history of a low-frequency and low-output rate Pleistocene volcano, Ciomadul, South Harghita Mts., Romania. Bull Volcanol 77:12

Tanaka KL, Shoemaker EM, Ulrich GE, Wolfe EW (1986) Migration of volcanism in the San Francisco volcanic field, Arizona. Geol Soc Am Bull 97(2):129–141

Tatsumi Y, Suzuki-Kamata K, Matsuno T, Ichihara H, Seama N, Kiyosugi K, Nakaoka R, Nakahigashi K, Takizawa H, Hayashi K, Chiba T, Shimizu S, Sano M, Iwamaru H, Morozumi H, Sugioka H, Yamamoto Y (2018) Giant rhyolite lava dome formation after 7.3 ka supereruption at Kikai caldera, SW Japan. Sci Rep 8(1):2753

Taylor GA (1958) The 1951 eruption of mount lamington, Papua. Aust Bur Min Resour Geol Geophys Bull 38:1–117

Telbisz T, Karátson D, Látos T (2017) Vulkánok térfogatszámításával kapcsolatos módszertani kérdések (methodological problems in connection with volcano volumetry: in Hungarian). Az elmélet és a gyakorlat találkozása a térinformatikában (theory meets practice in GIS), 8th Conf, Debrecen University Press, 367–374 pp

Veres D, Cosac M, Schmidt C, Murătoreanu G, Hambach U, Hubay K, Wulf S, Karátson D (2018) New chronological constraints for middle Palaeolithic cave sequences in eastern Transylvania, Romania. Quat Int 485:103–114

Vinkler AP, Harangi SZ, Ntaflos T, Szakács A (2007) Petrology and geochemistry of pumices from the Ciomadul volcano (Eastern Carpathians) - implication for petrogenetic processes. (in Hungarian with an English abstract). Földtani Közlöny 137(1): 103–128

Voight B, Constantine EK, Siswowidjoyo S, Torley R (2000) Historical eruptions of Merapi volcano, Central Java, Indonesia, 1768–1998. J Volcanol Geotherm Res 100:69–138

Wadge G, Herd R, Ryan G, Calder ES, Komorowski J-C (2010) Lava production at Soufrière Hills Volcano, Montserrat: 1995–2009. Geophys Res Lett 37:L00E03. https://doi.org/10.1029/2009GL041466

White SM, Crisp JA, Spera FJ (2006) Long-term volumetric eruption rates and magma budgets. Geochem Geophys Geosyst 7(1):1–20

Wohletz K, Heiken G (1992) Volcanology and geothermal energy. University of California Press, Berkeley, 432 p

Wolpert RL, Ogburn SE, Calder ES (2015) The longevity of lava dome eruptions. J Geophys Res Solid Earth 121(2):676–686

Wood CA, Kienle J (1990) Volcanoes of North America: United States and Canada. Cambridge University Press, NY 354 p

Wulf S, Fedoriwicz S, Veres D, Lanczont M, Karátson D, Gertisser R, Bormann M, Magyari EK, Appelt O, Hambach U, Gozhyk PF (2016) The 'Roxolany Tephra' (Ukraine) − new evidence for an origin from Ciomadul volcano, East Carpathians. J Quat Sci 31: 565–576

Yanalak M, Baykal O (2003) Digital elevation model based volume calculations using topographical data. J Surv Eng 129(2):56–64

Yokoyama I (2005) Growth rates lava domes with respect to viscosity of magmas. Ann Geophys 48(6):957–971

Chapitre V :
Growth and erosion rates of the East Carpathians volcanoes constrained by numerical models: Tectonic and climatic implications

(Article: Published 2020 to Geomorphology)

Dibacto, S., Lahitte, P., Karátson, D., Hencz, M., Szakács, A., Biró, T., Kovács, I., D. Veres

Geomorphology 368 (2020) 107352

Contents lists available at ScienceDirect

Geomorphology

journal homepage: www.elsevier.com/locate/geomorph

Growth and erosion rates of the East Carpathians volcanoes constrained by numerical models: Tectonic and climatic implications

S. Dibacto [a,*], P. Lahitte [a], D. Karátson [b], M. Hencz [b], A. Szakács [c], T. Biró [b], I. Kovács [d], D. Veres [e]

[a] GEOPS, Univ. Paris-Sud, CNRS, Université Paris-Saclay, Rue du Belvédère, Bât. 504, 91405 Orsay, France
[b] Eötvös University, Department of Physical Geography, H-1117 Budapest, Pázmány s. 1/C, Hungary
[c] Department of Environmental Sciences, Sapientia University, Calea Turzii nr. 4, 400193 Cluj Napoca, Romania
[d] Geological and Geophysical Institute of Hungary, Geochemical and Laboratory Department, Stefánia út 14, 1143 Budapest, Hungary
[e] Institute of Speleology, Romanian Academy, Clinicilor 5, 400006 Cluj-Napoca, Romania

ARTICLE INFO

Article history:
Received 5 October 2019
Received in revised form 9 July 2020
Accepted 14 July 2020
Available online 20 July 2020

Keywords:
Numerical reconstruction
Volcano growth
Erosion rate
Paleo-climatic constraint

ABSTRACT

The East Carpathian volcanic range experienced an along-arc, Late Miocene to Quaternary migration of eruptive activity during its ~11 Ma-long activity. Here, a novel and complex methodology is presented that yields new geochronological and geomorphological constraints on the evolution of the 20 volcanic edifices. New unspiked K-Ar ages either constrain their lifespan (6.79 ± 0.10–6.47 ± 0.09 Ma for Seaca-Tătarca; 5.47 ± 0.08–4.61 ± 0.07 Ma for Vârghiș) or date the youngest volcanic activity (central Călimani). In parallel, numerical reconstructions of volcanic paleo-topographies were performed to quantify their shape at the end of their construction stage. The inferred initial volcano size shows a wide range (3 to 592 km^3), making up the four main successive volcanic segments (910, 880, 279 and 165 km^3 for Călimani, Gurghiu, North Harghita and South Harghita segment, respectively) totalizing 2200 km^3 and an average growth rate of 200 km^3/Ma at range-scale. At the volcano-scale, with only consideration to their respective time spans (i.e. avoiding repose periods), growth rate is characterized by two major trends: a moderate growth rate (137 km^3/Ma) for the older volcanoes (11–3.6 Ma) followed by a lower growth rate (28 km^3/Ma) obtained for the Plio-Quaternary volcanoes. Comparing reconstructed and current topographies yielded a total eroded volume of 524 ± 125 km^3, defining averaged denudation of 22% and a 20 m/Ma erosion rate. Erosion rates for major climatic periods were computed, which highlight the contrasting climatic contexts since 11 Ma. The highest erosion rate (38 m/Ma) occurred during transitional moderate subtropical-continental climate period (9.5–8.2 Ma). An intermediate erosion rate (14 m/Ma) characterized a moderate continental climate period (8.2–6.8 Ma) when conditions became less humid. The lowest erosion rate (7 m/Ma) reflects the prevailing continental but occasionally semi-arid climate (6.8–5.8 Ma). The highest erosion rate (28 m/Ma) was obtained for Plio-Quaternary times during the interglacial/glacial cycles. Such a quantitative morphometric and geochronological approach demonstrates its efficiency to study volcanic dynamism, including both constructional and erosional processes, through time.

© 2020 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

A major geomorphological approach consists of assessing the time-dependent evolution of paleo and present topographies of landforms alongside the geological processes involved in their genesis, and, if possible, in numerically quantifying such processes (Leverington et al., 2002; Persson et al., 2004; Székely and Karátson, 2004; Wright et al., 2006; Grosse et al., 2009; Tucker and Hancock, 2010; Grosse et al., 2012; Karátson et al., 2012; Lahitte et al., 2012; Salvany et al., 2012). In volcanic fields with readily dateable topographic surfaces, one can constrain both dynamisms of volcanic growth and degrees of dismantling. Obviously, short-lived, recent, well datable volcanoes (i.e. of Late Quaternary age) can be studied with a high level of precision, whereas for older systems the precision will decrease. Growth and destruction of volcanoes may or may not be coupled, controlled by either endogenic (tectonic forces, volcanic eruptions) or exogenic processes (erosion controlled by climatic factors) (Thouret, 1999). A number of studies have aimed at constraining the total long-term erosion of volcanic surfaces using two approaches: 1) investigate long-lived but steady sourced volcanic systems such as stratovolcanoes based on edifice changes to track long-term erosional processes (Hildenbrand et al., 2008; Germa et al., 2011; Lahitte et al., 2012; Karátson et al., 2012; Salvany et al., 2012; Ricci et al., 2015a); and 2) study short-lived but dispersed small volcanic systems such as monogenetic volcanic fields using individual point-like data to extrapolate and understand the entire field

* Corresponding author.
E-mail address: stephane.dibacto-kamwa@universite-paris-saclay.fr (S. Dibacto).

https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2020.107352
0169-555X/© 2020 Elsevier B.V. All rights reserved.

behaviour (Kereszturi et al., 2013; Blaikie et al., 2015; Grosse et al., 2018). However, in the case of active volcanoes (with current eruption), a mass balance can be carried out either by quantifying the evolution of the topography of the volcano before, after, during and after the eruption or by carrying out a balance of the sediment load which is then reported on the surface of the watershed (Thouret et al., 2014). Digital elevation models (DEM) allow for characterizing the patterns of erosion, and to extract geomorphic and structural information on large-volume edifices which cannot be easily studied in the field (Favalli et al., 1999; Székely and Karátson, 2004). DEM-based quantitative geomorphological investigations enable the calculation of constructed and/or eroded volumes and thus estimate magma output as well as erosion rates. These, in turn, can be linked to hydroclimate variability driving the long-term erosion processes: in the Carpathians, a humid continental climate (Karátson and Timár, 2005; Karátson et al., 2019); in other areas with tropical and/or arid climates (Le Friant et al., 2004; Samper et al., 2007; Hildenbrand et al., 2008; Germa et al., 2010, 2015; Karátson et al., 2012; Lahitte et al., 2012; Salvany et al., 2012; Ricci et al., 2015a, 2015b; Bablon et al., 2018).

This study combines new geochronological constraints with a quantitative geomorphological overview of the Călimani-Gurghiu-Harghita[1] volcanic range (hereafter CGH, Fig. 1) in order to decipher its long-term topographic evolution. The unspiked Cassignol-Gillot K-Ar technique has been used to obtain precise ages on four of the 17 volcanic centres (Central Călimani, Seaca-Tătarca, Vârghiş and Pilişca volcano). Also, we performed DEM analysis to numerically model the paleotopography of the volcanoes by computing the best fitting surface to the volcanoes, making it possible to obtain constructed and eroded volumes. Combining geomorphological information with available geochronological data allow us to accurately assess the geomorphic evolution by calculating growth and erosion rates, which in turn help constrain the timing and dynamism of magmatic processes and to investigate links between tectonic and magmatic dynamism (Wadge, 1982, 1984; Grosse et al., 2018).

From cumulative erosion rates, computed at the scale of each volcano, we investigate their variations and how they correlate to the main climatic fluctuations under variegated but temperate continental climate-dominated conditions (Karátson, 1996), that the CGH area has experienced since the onset of volcanism started at 10.6 Ma (Pécskay et al., 1995).

2. Geological setting

The Carpathians are a major mountain range in Central and Eastern Europe spanning from Eastern Bohemia (Czech Republic), Poland, Slovakia, Hungary, Ukraine, to Romania and Serbia. Linked to the Alpine and Dinaric systems, they encompass the Pannonian and Transylvanian Basins (inset Fig. 1). Volcanic activity related to complex Tertiary to Quaternary geodynamic processes occurred both along the inner part of the Carpathian orogen and in the Carpatho-Pannonian Basin (Rădulescu and Săndulescu, 1973; Csontos et al., 1992; Szabó et al., 1992; Szakács and Seghedi, 1995; Mason et al., 1996, 1998; Seghedi et al., 1998, 2004a, 2004b, 2005a, 2005b; Fielitz and Seghedi, 2005; Seghedi et al., 2019).

Located in the eastern part of Romania's Inner Carpathians, the 160 km long CGH volcanic range constitutes the youngest, longest and southeasternmost segment of the Carpathian volcanic range (Fig. 1). The CGH is a typical post-collisional volcanic range as it developed after the stacking of the collision-related East Carpathian nappe system (Matenco and Bertotti, 2000). After the collision and the step-by-step propagation of the CGH volcanism parallel with the orogen, the plate boundaries more or less sealed. It was assumed to be associated with asthenosphere upwelling, explained by progressive break-off of an assumed Miocene subducted slab (Mason et al., 1998; Seghedi et al., 1998), as suggested by the present high heat flow coinciding exclusively with the volcanic area (Tari et al., 1999; Demetrescu et al., 2001). The CGH consists of a NW–SE-trending row of several adjoining and partially overlapping volcanoes mostly characterized as composite volcanoes in the axial part and resulting from complex eruptive histories, including several cone-building phases interrupted by destruction phases (Szakács and Seghedi, 1995). The subduction-related, post-collisional volcanism (Rădulescu and Săndulescu, 1973; Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004a; Lexa et al., 2010) resulted in products which display calc-alkaline to alkaline compositions with andesite-dominated rock types (Mason et al., 1996, 1998; Seghedi et al., 2011). Volcanism of the overall CGH segment was interpreted as coeval with the last peak of crustal deformation in the Carpathian bend zone, characterized by uplift in the orogenic zone and subsidence in the foreland with amplitudes in the order of 2–4 km (Matenco et al., 2010).

3. Volcanism of the CGH range and its timing

The CGH volcanic range divides into four sub-segments corresponding respectively from the north to south to Călimani, Gurghiu, Northern and Southern Harghita (Fig. 1). As a result of the migration of volcanic activity along the range, the overlap between its 17 eruption centres is limited, allowing one to individualize them quite well. The first comprehensive study of CGH (Szakács and Seghedi, 1995, 1996) pointed out the systematic decrease of volume, height and width of the volcanic edifices from north (Călimani) to south (Southern Harghita), most of them surrounded by extended and partly coalesced volcaniclastic aprons.

The pre-volcanic basement of the CGH volcanic range belongs to two different major tectonic units, lithologically characterized by Proterozoic to Lower Palaeozoic metamorphic rocks overlain by Mesozoic, mostly carbonatic, sedimentary rocks of the East Carpathian's “Crystalline-Mesozoic Zone” in the eastern part (Sandulescu, 1988). A thick Paleogene-Neogene sedimentary pile including ductile rocks such as clay and salt prone to plastic deformation (Ciupagea et al., 1970; Szakács and Krézsek, 2006) forms the pre-volcanic basement in the western part along the rim of the Transylvanian Basin. A topographic “anomaly” consisting in reverse-dipping (i.e. toward volcano centre instead of toward volcano periphery) of the peripheral outer slopes of some volcanoes (e.g. Făncel-Lâpuşna and Seaca-Tătarca in Gurghiu Mts, and Vârghiş volcano in North Harghita, Fig. 1) was interpreted by Szakács and Krézsek (2006) as resulting from complex interactions between the pre-volcanic basement and the overlying volcanic edifices. Namely, the Late Miocene volcanoes grew up on a pre-volcanic basement including a thick salt layer which was squeezed-out, displaced and involved in enhanced diapirism governed by gravitational effects of the volcano loading. These processes modified in a certain degree also the original volcanic topography by volcano spreading (Delaney, 1992; Borgia, 1994; Merle and Borgia, 1996; Lagabrielle et al., 2000; Wooller et al., 2004; Borgia et al., 2005; Grosse et al., 2009, 2012), namely increasing edifice diameter and reducing relative height differences between volcano centre and periphery, hence reducing relief energy and erosion rates.

Available ages along the CGH range (Peltz et al., 1987; Szakács et al., 1993; Pécskay et al., 1995, 2006; Seghedi et al., 2004b, 2005a, 2005b; Molnár et al., 2018; Karátson et al., 2019; Lahitte et al., 2019) defined a quasi-continuous eruptive activity from 10.6 to 0.03 Ma. The southwardly shift in eruption centres has been linked to progressive slab detachment following an oblique subduction stage (Mason et al., 1998; Seghedi et al., 1998).

For the past 10.6 Ma, the CGH range has been experiencing a temperate subtropical-continental climate with occasionally arid periods in the Late Miocene and a relatively humid climate with occasional periglacial regimes and interglacial/glacial variability during the Pliocene and Quaternary (Karátson, 1996; Fielitz and Seghedi, 2005;

[1] Official Romanian names are completed by locally used Hungarian names in Tables, also helpful for the reader to find names on local maps.

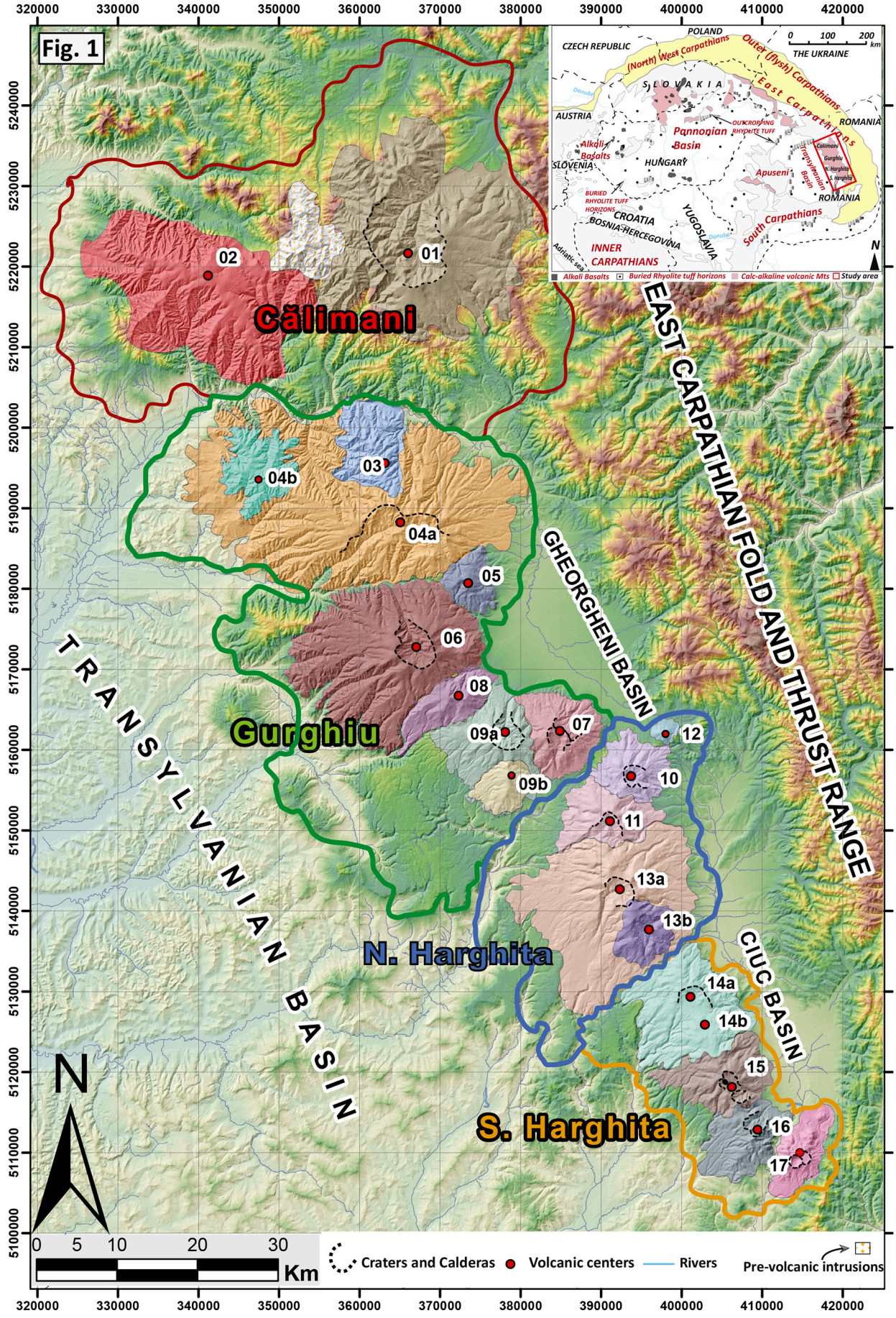


Fig. 1
Călimani
Gurghiu
N. Harghita
S. Harghita
EAST CARPATHIAN FOLD AND THRUST RANGE
TRANSYLVANIAN BASIN
GHEORGHENI BASIN
CIUC BASIN
01
02
03
04a
04b
05
06
07
08
09a
09b
10
11
12
13a
13b
14a
14b
15
16
17
N
0 5 10 20 30
Km
Craters and Calderas
Volcanic centers
Rivers
Pre-volcanic intrusions
POLAND
CZECH REPUBLIC
THE UKRAINE
SLOVAKIA
AUSTRIA
HUNGARY
SLOVENIA
ROMANIA
CROATIA
BOSNIA-HERCEGOVINA
YUGOSLAVIA
INNER CARPATHIANS
(North) West Carpathians
Outer (flysh) Carpathians
East Carpathians
South Carpathians
Pannonian Basin
Transylvanian Basin
Apuseni
Alkali Basalts
BURIED RHYOLITE TUFF HORIZONS
OUTCROPPING RHYOLITE TUFF
Danube
Adriatic sea
Alkali Basalts
Buried Rhyolite tuff horizons
Calc-alkaline volcanic Mts
Study area

Table 1
New K-Ar dating results (details of measurement in S.M).

Sample code	Rock type	K%	Mean age ± 1σ (Ma)	
17EC14	Dacite	2.730	1.98 ± 0.06	Pilisça
17EC15	Dacite	2.841	2.11 ± 0.04	
17EC11	Pyr. andesite	1.503	4.61 ± 0.07	Vârghiş
17EC09	Pyr. andesite	1.551	4.65 ± 0.07	
17EC06	Pyr. andesite	1.932	4.79 ± 0.07	
17EC10	Pyr. andesite	1.995	4.89 ± 0.07	
17EC07	Pyr. andesite	1.326	5.06 ± 0.07	
17EC08	Am. andesite	2.373	5.47 ± 0.08	
17EC02	Pyr. andesite	1.219	6.47 ± 0.09	Seaca-Tătarca
17EC01	Pyr. andesite	1.328	6.52 ± 0.09	
17EC05	Pyr. andesite	1.517	6.61 ± 0.09	
17EC04	Pyr. andesite	1.461	6.65 ± 0.09	
17EC03	Pyr. andesite	1.193	6.79 ± 0.10	
17KEL6	Px-Amph And.	1.680	8.33 ± 0.12	Călimani
17P-KEL6	Px-Amph And.	1.648	8.30 ± 0.12	
17KEL5	Monzodiorite	2.755	8.26 ± 0.12	
17KEL1	Dacite	2.291	6.69 ± 0.10	

Magyari et al., 2014). Details and evidence concerning climate changes in the Carpathian area are given in the discussion.

4. Methods

4.1. K-Ar ages by unspiked Cassignol–Gillot technique

Seventeen new groundmass K-Ar ages are first presented here (Table 1). Results were obtained on samples collected from four volcanoes representing the three main sectors of the range (Călimani, Gurghiu, North and South Harghita). Measurements followed the protocol of rock sampling, preparation and measurement as described by Germa et al. (2011) and detailed in the Supplementary materials (S.M.).

4.2. DEM-based volume calculations

Using a quantitative DEM-based approach of volumetry (Székely and Karátson, 2004; Karátson and Timár, 2005; Favalli et al., 2009; Grosse et al., 2009; Kervyn et al., 2012; Lahitte et al., 2012; Lavigne et al., 2013; Karátson et al., 2013; Germa et al., 2015; Ricci et al., 2015a), we numerically modelled the paleo-topographies of all CGH volcanoes. To constrain the shape that they displayed directly after the end of their respective activity, we follow the method introduced by Lahitte et al. (2012) and improved since by Germa et al. (2015). The resultant modelled volcanic surfaces are used to assess constructed and eroded volumes (Ricci et al., 2015a), and then, using the available chronological data, to constrain the time-space dynamism of volcano surface evolution through both construction and erosion rates. To achieve our objectives, the topography of the CGH volcanic range was analysed from the Shuttle Radar Topography Mission (SRTM) 30 m-resolution DEM. Topographic surfaces were modelled at 100 m-resolution that compromises sufficient details of reconstruction and time of calculation without affecting their quality (Wright et al., 2006; Grosse et al., 2009; Karátson et al., 2010; Kervyn et al., 2012).

4.2.1. Volcanic paleo-surface model

The main body of work relates to the topographic reconstruction of a volcano, i.e. the modelling of the surface that it reached after its growth ceased (the so-called pre-erosional volcanic surface, or PEVS). To model such surfaces, we use as input data the sectors of the current topography that still testify to the PEVS or, in other words, that have undergone ideally zero or minimal erosion since the volcano construction ceased. In detail, each grid cell of the present-day DEM was converted in a XYZ point, forming a huge input database (20 million points). Next, different morphometric parameters such as slope, topographic position index (TPI, Weiss, 2001) and topographic openness (TO, Yokoyama et al., 2002; Favalli and Fornaciai, 2017) were computed, assigned as attributes for each point and combined to select only points belonging to PEVS. These so-called constraining points (CPs) are commonly located on quasi-planar surfaces found commonly in the mid- to lower flanks of the volcanoes which, during long-term erosion, tend to be preserved relatively to the upper flanks and central parts that encompassed central depressions (Karátson et al., 2016; Favalli and Fornaciai, 2017). More than 200,000 CPs for the entire CGH volcanic range (Fig. 2A) were extracted. For practical reasons, they were reduced to one tenth without breaking the homogeneity of their distribution. The Seaca-Tătarca volcano (06 in Fig. 1) example is shown in Fig. 3 to illustrate CPs extraction (purple dots in Figs. 2A, 3A and C) from its whole surface (green dots in Fig. 3A and coloured surface in Fig. 3C) and in consideration to slope, exposition, TO and TPI parameters. The elevation versus distance to centre diagram (Fig. 3A) highlights how CPs, independently of their position along the volcano profile (lower, mid or upper), belong to planezes surfaces, i.e. to the locally (at hundred-meter scale) uppermost surface of the volcano. Note that only the main edifice was selected without considering the volcaniclastic materials of the ring plain immediately surrounding the central edifice (Zernack et al., 2011; Németh and Palmer, 2019). Finally, a careful visual control has been carried out in order to remove outlier points accidentally present in the ultimate CPs database. From their respective CPs, numerical reconstructions of 15 from the 16 selected volcanoes have been modelled using the ShapeVolc (SV) algorithm (Lahitte et al., 2012). Only Pilişca volcano (a small-sized shield volcano topped by a few lava domes in South Harghita; Szakács and Seghedi, 1995) has been reconstructed by the Kriging interpolation (Krige, 1951).

The ShapeVolc algorithm dedicated to volcano surface modelling was used successfully in various dismantling contexts: large flank collapse (Lahitte et al., 2012; Germa et al., 2015), caldera formation (Lavigne et al., 2013) or regressive erosion (Salvany et al., 2012; Ricci et al., 2015a, 2015b). This algorithm, as well as the one proposed by Favalli et al. (2014), fit the ideal surface by minimizing the mean square error between this surface elevation and those of the CPs.

ShapeVolc algorithm, assuming that a volcano displays at first order an axial symmetry (Karátson et al., 2012), finds, using the simplex algorithm, the set of parameters that define the first order geometry of a volume defined by a surface of revolution. Adjusted parameters are: XYZ coordinates of the axis of revolution (the location and elevation of the vent/summit); the elliptical shape of the edifice (i.e. the shape of its contour lines); and the parameters of the generatrix of the surface revolution (i.e. the function, black dots in Fig. 3B, that best fit the non-eroded upper volcanic surface). As the current elevation of each CPs is the lowest one possible for the uppermost surface, parameters are calculated in order to find the lowest possible surface of revolution passing above most of the CPs (see black curve relatively to purple dots in Fig. 3A).

A common way to model volcano shape and volume consists of a simple rotation of the best generatrix curve around an axis located at the volcano summit, defining a pure surface of revolution (Karátson et al., 2010, 2012). However, such kind of modelling does not consider the ellipticity of the volcano that is a common characteristic of edifices (Grosse et al., 2012, 2014; Favalli et al., 2014; Grosse and Kervyn, 2018). The observed improvement of results, when ellipticity is

Fig. 1. Geological setting of the studied area (East Carpathian Volcanic Range). Each volcano is labelled as following (Romanian names, Hungarian ones can be found in Table 1): Călimani sector (surrounded by red outline): 01 – Central Călimani including Rusca-Tihu cones Lucaciul, Tămăul and Călimani caldera; 02 – Moldovanul. Gurghiu sector (green outline): 03 - Jirca; 04 – Fâncel-Lăpuşna, including cones Fâncel (04a) and Obarsia (04b); 05 –Bacta; 06 – Seaca-Tătarca; 07 – Ciumani; 08 – Borzont; 09 – Şumuleu including cone Şumuleu (09a) and Vf. Ascuţit (09b). North Harghita sector (blue outline): 10 – Ostoroş; 11 – Ivo-Cocoizaş; 12 – Râchitis; 13a – Vârghiş and 13b – Szeles Vésze cone. South Harghita sector (yellow outline): 14 – Luci-Lazu (14a and 14b); 15 – Cucu; 16 – Pilişca; 17 –Ciomadul lavas domes. Inset: Regional topographic sketch map of Carpathian orogen.

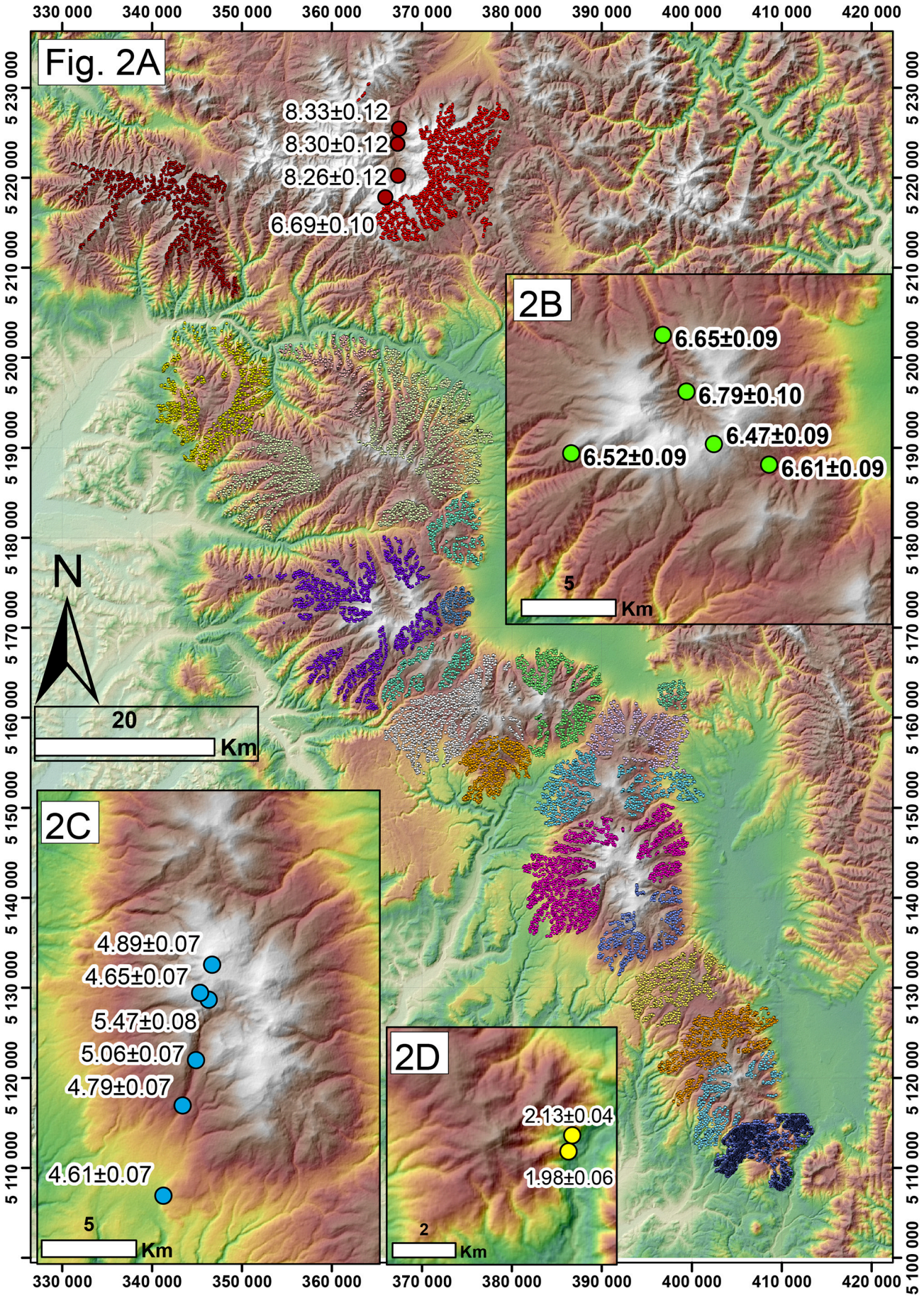


Fig. 2. A) Constraining points (CPs) of each single volcanic edifice. New unspiked K/Ar ages (in Ma): A) Călimani. B) Seaca-Tătarca volcano. C) Vârghiş volcano. D) Pilişca volcano.

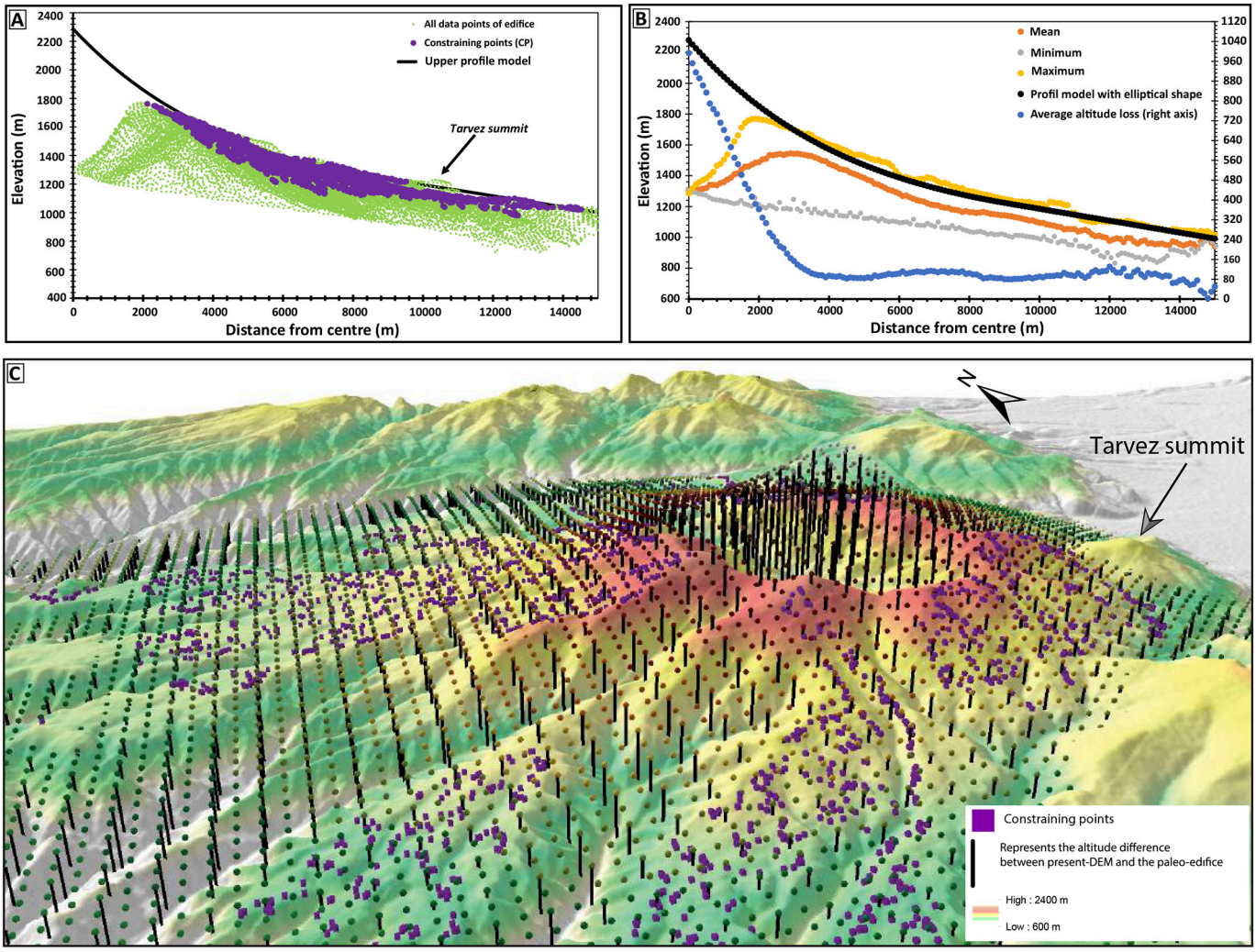


Fig. 3. Modelling of the best fitting surface with all relevant parameters, example of Seaca-Tătarca volcano: A) Elevation versus distance to centre diagram, green dots project the whole volcano surface, purple dots are CPs and black dots are the best model profile. B) Projection of mean (orange), max (yellow) and min (grey) elevation of the whole volcano surface, after a summarization by a 100 m-long window. Note how the best model profile (black dot) fit well with the upper surface (yellow dots). Average altitude loss (blue dots) computed as the difference between the best model profile and the mean elevation profile. C) Perspective view of the best modelled surface: purple dots are the CPs extracted from the DEM (coloured surface). Coloured dots show the best modelled surface. Black sticks highlight the loss of elevation (i.e. the intensity of erosion).

considered advocate for closely considering volcano eccentricity in our reconstructions (see details given in S.M.), has been done in this study: eccentricity and azimuth have been systematically computed.

Moreover, as taking into account the volcanic complexity of the surface is crucial to optimize precision in volume calculation, a major improvement is here introduced to allow ShapeVolc to take into account the second order of magnitude of details of volcanic surfaces. Indeed, if most volcanoes can be defined at first order by a mathematically defined, elliptical surface of revolution, the complexity of volcanic construction introduces heterogeneities on this mathematic perfection that commands modelling the second order of magnitude of their shape. Concretely, each PEVS model was performed in two steps. 1) The first order of magnitude of the volcanic surface was obtained by defining the unique set of parameters (listed above) that best fit to all CPs of the volcano. 2) The second step locally adjusts the surface to find elevation of each cell of the 100 m-resolution paleo-surface model with only considering the closest CPs of the given cell and selected by classical research criteria (typically the 20 nearest CPs in each of the eight 45°-large angular sectors). This time-consuming step (up to 120,000 elevation points to be modelled for a large volcano) allows for defining the uppermost PEVS and takes into account the irregularities of the surface such as local elevation variations and small details in the volcanic structure (presence of parasitic and/or adventive cones or domes, such as Tarvez in Fig. 3A). This second order of detail becomes essential for young volcanoes where the very small amount of erosion material imposes the most adjusted surface as possible.

Uncertainty of our modelled volcano shapes (σZ_{SV}, Table 2) is calculated as the standard deviation of the difference (ΔZ_P) between the altitude of the constraining points (Z_{CP}) and the altitude of the modelled ones (Z_{SV}).

4.2.2. Volumetric data, growth and erosion rates

Estimating the volcano volume requires knowing the surface of its basement prior to its construction, the so-called pre-volcanic basal surface (PVBS). Details of PVBS modelling by kriging interpolation are given in the S.M.

Comparisons of pre-erosional volcano surface to PVBS and the present DEM allow calculations of constructed (V_C) or eroded (V_E) volumes, respectively. Next, the growth rates (GR, in km^3/Ma) defined by V_C divided by volcano lifespan (Δt) constrains the eruptive dynamism; the erosion rate (ER, in m/Ma) defined by V_E divided by the area and the

Table 2
Volumetric data (computed from modelled volcanic uppermost surface) and growth rate for each of CGH volcano (labelled as in Fig. 1) and each CGH sectors (at bottom of the table). Values are quoted with uncertainties at 1σ-level. Constructed volume (V_C, in km^3), degree of denudation (D_{Den}): proportion of volcano lost by dismantling processes (in %). All morphometric values from this study except for Ciomadul volcano (Karátson et al., 2019).

Sector	Label and volcanoes	Radiometric data			Volumetric data						
		$Age_{Beginning}$ (Ma)	$Age_{Endning}$ (Ma)	Lifespan (ΔT) (Ma)	Visible area (km^2)	Height (m) a. base.l ± uncertainty (σZSV) (m)	Constructed volume (V_c in km^3)	Growth rate (GR) (km^3/Ma)	Eroded volume (V_E in km^3)	Erosion rate (ER) (m/Ma)	Degree of denudation (D_{Den})
Călimani	01: Central Călimani (Kelemen)	10.6	6.7	3.9	1041	2072 ± 82	592 ± 115	152	158 ± 85	17 ± 9	27%
	02: Moldoveanul (Moldovánka)	10.2	7.7	2.5	779	1053 ± 78	320 ± 82	128	108 ± 61	16 ± 9	34%
	03: Jirca (Nagy-Erdős)	9.2	8.4	0.8	137	1028 ± 45	112 ± 34	140	13 ± 6	11 ± 5	27%
	04: Fâncel-Lăpuşna (Fancsal)	8.7	6.0	2.7	828	1499 ± 58	355 ± 90	131	88 ± 48	15 ± 8	29%
	05: Bacta (Bakta)	7.5	6.6	0.9	59	490 ± 41	11 ± 6	12	3 ± 2	7 ± 6	32%
	06: Seaca-Tătarca (Mezőhavas)	6.8	6.5	0.3	543	1650 ± 63	248 ± 57	825	61 ± 34	17 ± 10	27%
	07: Ciumani (Csomafalvi Délhegy)	7.1	6.3	0.8	106	1284 ± 60	67 ± 18	84	9 ± 6	12 ± 9	18%
	08: Borzont	–	–	–	59	493 ± 45	21 ± 8	–	3 ± 3	–	24%
Gurghiu	09: Şumuleu (Somlyó)	6.7	6.2	0.5	242	1073 ± 80	69 ± 25	138	12 ± 19	8 ± 12	18%
	10: Ostoroş (Osztoróc)	6.3	6	0.3	93	1008 ± 37	49 ± 16	163	6 ± 3	10 ± 6	20%
	11: Ivo-Cocoizaş (Fertő-tető)	6.3	5.7	0.6	95	1104 ± 57	55 ± 16	92	7 ± 5	12 ± 10	23%
North Harghita	12: Râchitis (Csíkmagosa)	–	–	–	67	269 ± 24	3 ± 3	–	1 ± 2	–	21%
	13: Vârghiş (Madarasi-Hargita)	5.5	4.6	0.9	355	1611 ± 39	172 ± 34	191	25 ± 14	14 ± 8	16%
	14: Luci-Lazu (Nagykőbükk-Tetőfenyő)	4.3	3.6	0.7	306	843 ± 74	108 ± 37	155	18 ± 23	15 ± 19	21%
	15: Cucu (Kakukkhegy)	2.8	2.2	0.6	88	586 ± 64	29 ± 11	49	5 ± 6	22 ± 26	20%
South Harghita	16: Pilişca (Piliske)	2.5	1.5	1.0	95	709 ± 51	20 ± 8	20	3 ± 5	18 ± 26	17%
	17: Central Ciomadul (Csomád)	0.2	0.03	0.2	72	–	7 ± 1	37	0.2 ± 0.1	26 ± 4	3%

CGH sector	Activity duration (Ma)	Total volume constructed per area (km^3)	Growth rates per area (km^3/Ma)	Degree of denudation per sector (D_{Den} %)	Eroded volume (km^3)	Erosion rates (m/Ma)
Călimani	3.9	910 ± 140	235	30	265 ± 105	17
Gurghiu	3.4	883 ± 117	270	25	190 ± 63	11
North Harghita	2.4	279 ± 41	116	20	39 ± 15	9
South Harghita	4.3	165 ± 40	39	15	27 ± 24	28
CGH total	~11 Ma	2239 ± 192	~200	~22	524 ± 125	~20

erosion duration (i.e.; volcano age) and the degree of denudation (D_{Den}, the percentage of volcano volume removed by erosion), defined by V_E divided by V_C, are computed. Details of the modelling of PVBS and calculation of volumes and uncertainties, degree of denudation, growth and erosion rates are given in the S.M. The inferred erosion is highlighted in Fig. 3C by the black sticks that connect the present DEM as well as the PEVS surfaces.

Our reconstructions include both coherent and fragmented volcanic materials making up the edifices, and thus, they refer to bulk volumes instead of DRE (dense rock equivalent). Our constructed volumes and growth rates take into account the volcaniclastic aprons, but they are excluded from the V_E and ER since our calculations do not differentiate the volcaniclastic aprons (their source and to which volcano they belong); so, an accurate proportioning is quasi-impossible. Our volcano GR differs from magma output rates sensu stricto as they only integrate a part of the whole pyroclastic material. However, it allows the obtaining of a general framework of magmatic activity through space and time along the CGH range and can be used as a good proxy for magma output rates (Wadge, 1982, 1984; Grosse et al., 2018).

5. Results

5.1. K-Ar ages

New K-Ar ages are reported in Table 1, with all uncertainties quoted at 1-sigma level (1σ). All Ar analyses were successfully duplicated at the 1σ level except sample 17EC14 that required a third measurement (see details of each measurement in the S.M.). Radiometric dating results are presented in chronological order in the following sections, compiled in Table 1 and discussed in Fig. 2A–D.

5.1.1. Călimani edifice

The four oldest dated samples of lava flows and intrusions belong to the Călimani caldera edifice. The oldest ages (8.30 ± 0.12 and 8.33 ± 0.12 Ma) were obtained on two distinct outcrops from the same andesite lava flow, illustrating the good reproducibility of our dating method. The monzodioritic intrusion exposed in the central part of the Călimani caldera is slightly younger (8.26 ± 0.12 Ma). In contrast, the dacitic lava dome at Pietricelul, built up on the Călimani caldera rim, constrains the post-caldera activity (6.69 ± 0.10 Ma) and is comparable with the youngest ages measured previously in the Călimani area (Pécskay et al., 1995).

5.1.2. Seaca-Tătarca volcano (Gurghiu Mts)

Five andesitic lava flows were dated on this large lava dominated volcano. Stratigraphical coherence is observed, as the oldest ages have been obtained on the innermost and lowest samples (6.65 ± 0.09 and 6.79 ± 0.10 Ma). Two intermediates ages were obtained from lava flows on the upper flanks of the volcano on the SSE and western sides (6.61 ± 0.09 and 6.52 ± 0.09 Ma, respectively). The youngest age was obtained on the uppermost rim of the erosional depression (6.47 ± 0.09 Ma) in accordance with the relative stratigraphy. From the dated samples (that likely constrain the whole Seaca-Tătarca volcano stratigraphy), we infer a constructional period of ~330 ± 140 ka.

5.1.3. Vârghiş volcano (North Harghita Mts)

From the six andesite lava flows dated on the Vârghiş volcano, the oldest age (5.47 ± 0.08 Ma) has been obtained on the only amphibole lava located in the lowest outcrop of the north sector of the central depression (identified as a sector-collapse depression by (Szakács and Seghedi, 1995, 2000). Two lava flows sampled inside the depression

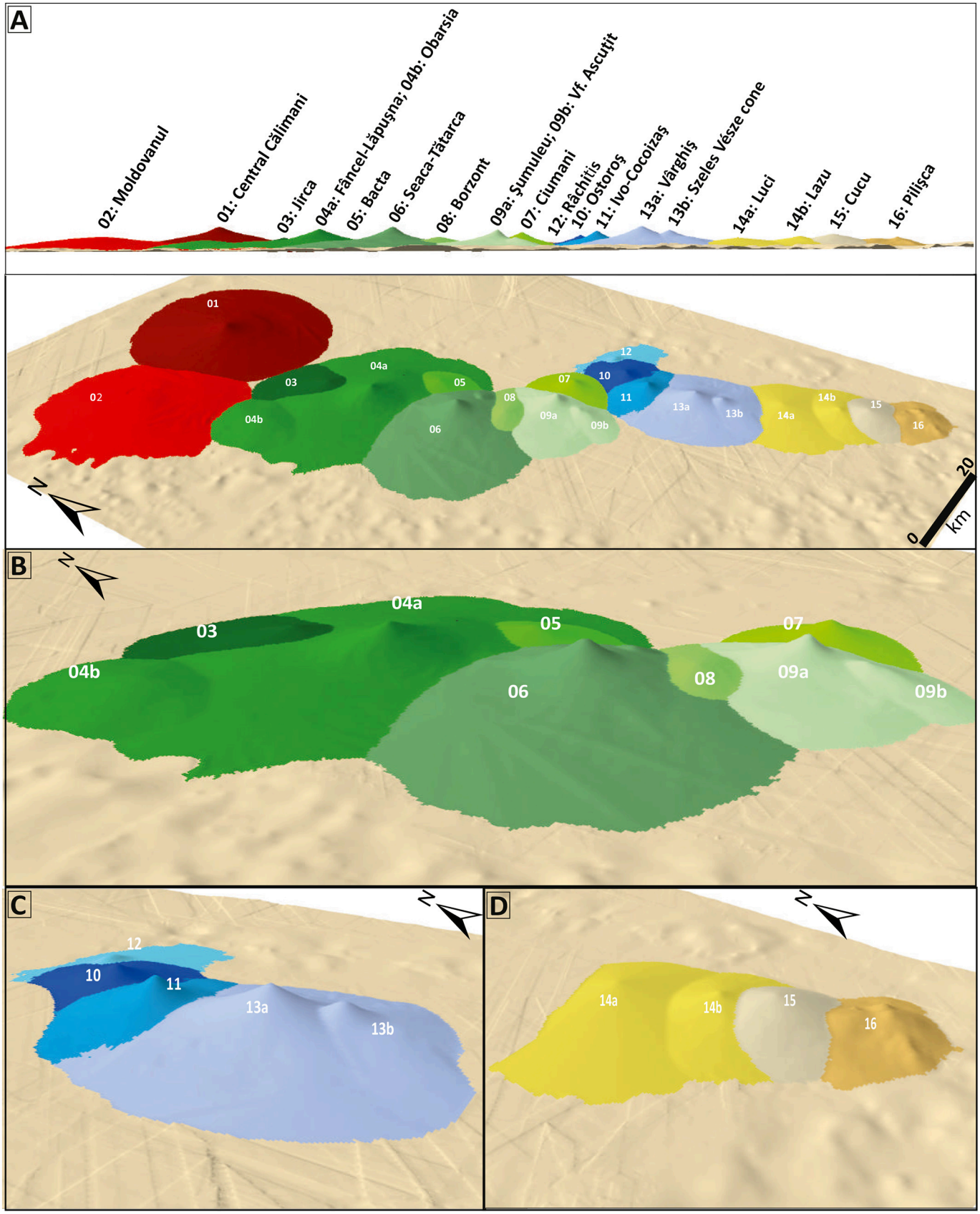


Fig. 4. Modelled paleo-volcanic surfaces (as they would be directly after the cessation of volcanism, i.e. before erosion effect): A) North (red colours) - South (yellow colours) cross-section and perspective views of the whole reconstructed CGH range. B), C), D) zoomed representation of Gurghiu, North Harghita and South Harghita sectors, respectively. Numbers refer as the same labels as in Fig. 1 and Table 2. Cream coloured surface is the pre-volcanic basement surface (PVBS).

have provided intermediate ages (5.06 ± 0.07 and 4.79 ± 0.07 Ma) whereas two other (4.65 ± 0.07 and 4.89 ± 0.07 Ma) came from the upper flank of Harghita Mădăraş summit, described as a depression rim dome (Szakács and Seghedi, 1995). Finally, the post sector collapse and youngest activity is constrained at the southern periphery of the edifice (4.61 ± 0.07 Ma). From these ages, we infer a constructional period of ~900 ± 140 ka.

5.1.4. Pilişca volcano (South Harghita)

Two dacitic lava rocks from the Pilişca volcano (1.98 ± 0.06 and 2.11 ± 0.04 Ma) might represent late-stage dacitic lava domes stratigraphically overlying andesitic lavas of the early volcano stage located along the riverbed of the Olt river in the Tuşnad Gorge (2.11 ± 0.03 and 2.13 ± 0.03 Ma, in Karátson et al., 2019).

5.2. Volcanic surface models

5.2.1. Paleo-volcanic surfaces

From their constraining points (Fig. 2A), 16 CGH volcanoes were modelled (Fig. 4). Their morphometric characteristics are summarized in Table 2 (more exhaustively discussed in S.M.). They display two types of radial profile according to their main concave (modelled by an exponential or polynomial curve) or convex (Gaussian curve) shape (Grosse et al., 2009). Ellipticity ranges from 0.16 (quasi-circular edifice) to 0.80 (strongly elongated one). Uncertainties of modelled surfaces range from 24 m to 82 m. Modelled volcanoes are characterized by contrasting sizes, from very small parasitic cones (Râchitis edifice, #12, 3 ± 3 km^3) to large composite volcanoes (Central Călimani edifice, #01, 592 ± 115 km^3; Figs. 1 and 4).

In the Călimani sector (Fig. 4A), the Central Călimani (#01, constituted by the current S and SE flanks of Rusca-Tihu and the associated cones of Lucaciul and Tămăul) and Moldovanul (#02) edifices have been reconstructed. They display contrasting shapes; the quasi-circular Central Călimani is best fitted by a concave shape (steep summit) whereas the more elliptical Moldovanul fits to a convex shape (relatively flat summit).

For Gurghiu sector (Fig. 4B), seven volcanoes have been modelled (#03 to #09, Fig. 4B). Whereas all have quite similar concave shape, four volcanoes (#03, #04, #05, #08) exhibit relatively high ellipticity (0.61–0.80) whereas the others are almost circular (0.16–0.37).

In North Harghita, all four modelled volcanoes (#10 to #13, Fig. 4C) display a marked ellipticity (0.33–0.80) and concave shape, except the very small Râchitis with a convex profile.

In South Harghita (Fig. 4D), the dual Luci-Lazu (#14a and #14b) and Cucu (#15) volcanoes display contrasting ellipticity (0.20 and 0.49, respectively) but both with quasi-linear profiles (almost conical shape). Pilişca (#16), the youngest volcano in our study (only the late Pleistocene Ciomadul is younger in the whole CGH, Szakács and Seghedi, 1995; Karátson et al., 2019; Lahitte et al., 2019), has a such "un-geometric" shape that it requires kriging interpolation.

5.2.2. Volumetric results

Using the output from the geomorphological models, the main individual data for each volcano are compiled in Table 2 and comprise the area (A), Height, constructed (V_C) and eroded (V_E) volumes, growth (GR) and erosion (ER) rates and the degree of denudation (D_{Den}). To compute GR and ER, we considered all available radiometric ages from previous studies, most remaining conventional K-Ar ages being obtained on whole rock. For each volcano, we calculated an average age using as bracketing temporal constraints the oldest and youngest available ages and assuming that the average age represents the peak of activity.

The V_C computed for the 16 volcanoes modelled in this study ranges between 3 ± 3 and 592 ± 190 km^3. Fitting the volcano volume and area by a power-law function shows a good positive correlation ($R^2 = 0.93$; Fig. 5A) defined by:

$$V_c = 0.015 \times (A)^{1.51} \quad (1)$$

We note that data on Fâncel-Lăpuşna (in Gurghiu) seems out of this general trend; however, its inclusion or exclusion from the analysis practically does not alter the correlation (R^2 remains 0.93). Dimensional analysis shows that volume and surface are related by a power-law function with a 1.5 exponent. For instance, a regular cone (radius R, height H, slope α) is defined as:

$$V = \tan(\alpha)/\left(3 \times \pi^{1/2}\right) \times A^{1.5} \quad (2)$$

Using the computed volume and area of the 16 analysed volcanoes (some showing very irregular shapes due to emplacement above or around older ones and having different shapes, all displaying second order of magnitude, i.e. not a simple mathematical shape), we obtained roughly the same 1.5 correlation exponent between the two variables (Fig. 5A). We interpret this quasi-ideal correlation as the expression that, although each volcano experienced its own history of construction, the individual long-term growth was averaged out as a quite similar and common evolution along the range. Such a quantification approach, based on enhanced morphometry, can be considered as numerical validation of the trend predicted for arc volcanoes evolving from single cone to massif (Grosse et al., 2009).

Plotting the height versus volume diagram as proposed by Grosse et al. (2009) (Fig. 5A inset), they fall in the field of the massif trend which is coherent with the complexities of their topography and eruptive history. Furthermore, the power-law curve fitting CGH data in the height versus volume diagram (Fig. 5A inset) has a power exponent close to 1/3 (0.35). Again, this means, inversing the equation, that volume is almost related to height by a factor of three and confirms the more and less homomorphic shapes of all CGH volcanoes.

The V_E computed in this study ranges between 0.2 km^3 (Ciomadul) and 158 ± 85 km^3 (Călimani), increasing toward the north of the range with ER range between 7 and 26 m/Ma. The degree of denudation of the studied volcanoes is in the range of 3–34% (the average weighted mean being 22%), which means that within the studied period (~11 Ma), less than one third of the original volcanic edifice has been removed by erosion.

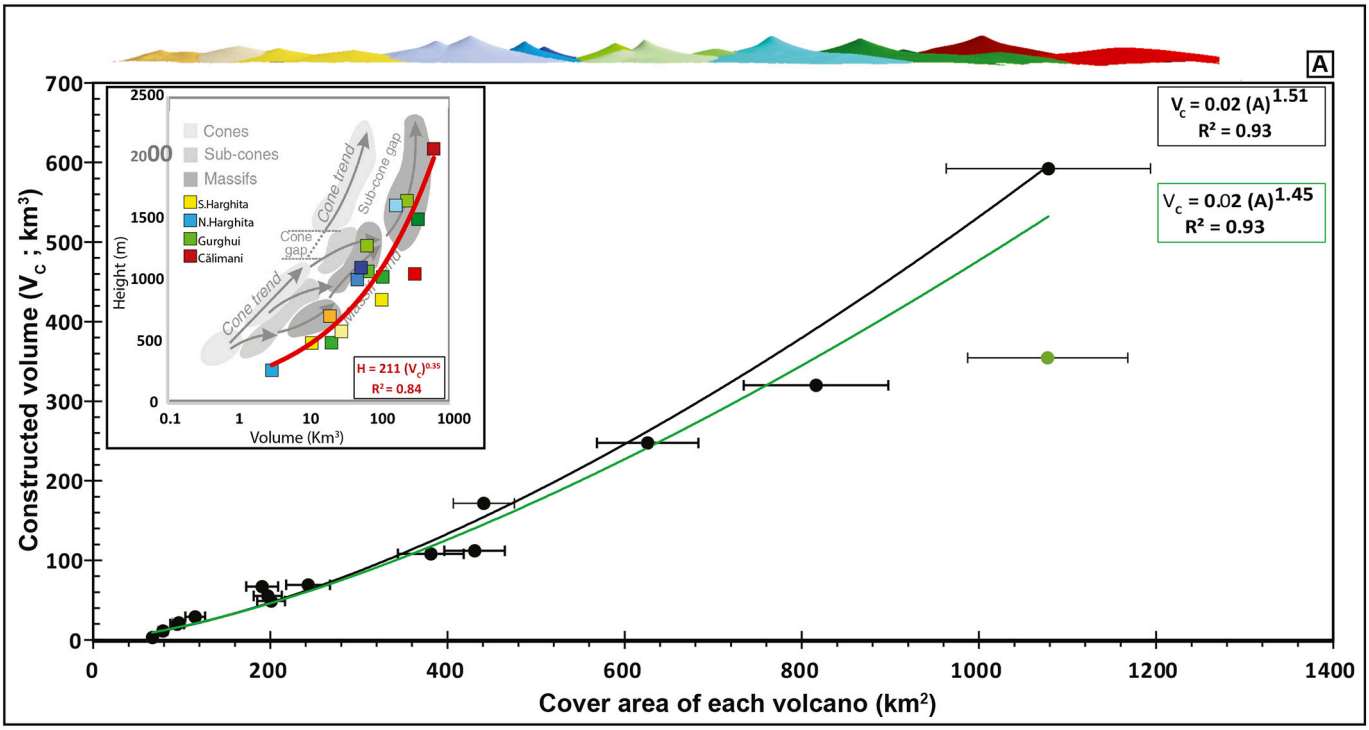
Plotting the V_C against V_E shows a strong linear positive correlation with $R^2 = 0.95$ (black line, Fig. 5B) whereas D_{Den} values (expressed as percentages in Fig. 5B) do not systematically fit with the V_C, i.e. small edifices (e.g. Bacta, Jirca, Moldovanul), as well as large ones (Călimani, Fâncel-Lăpuşna) can display a high degree of denudation.

No correlation ($r^2 = 0.01$) exists between the degree of denudation (D_{Den}) and height (H) (Fig. 6A) and, logically, with volume or area as they are strongly correlated. Additionally, no effect on erosion by any altitudinal contrast appears. On the other hand, D_{Den} fit relatively well with latitude ($R^2 = 0.62$, Fig. 6B). As morphometry of volcanoes cannot explain this fit, other parameters such as age, spatial climate fluctuation, rock strength and edifice slope can possibly drive this regional variation of the D_{Den} values. These aspects will be further addressed in the discussion.

6. Discussion

6.1. Volume comparison with previous results

Summarizing individually modelled constructional volumes (i.e. prior to erosion) leads to a total original volcanic volume of 2240 ± 190 km^3 in the CGH range during ~11 Ma, higher than the 1400–1606 km^3 range previously proposed (Szakács et al., 1997; Karátson and Timár, 2005; Seghedi et al., 2019) obtained with basic approaches. We interpret this higher value compared to previous studies as due to the complete integration of erosionally removed volumes over the whole edifice. Hence, our approach illustrates the importance of



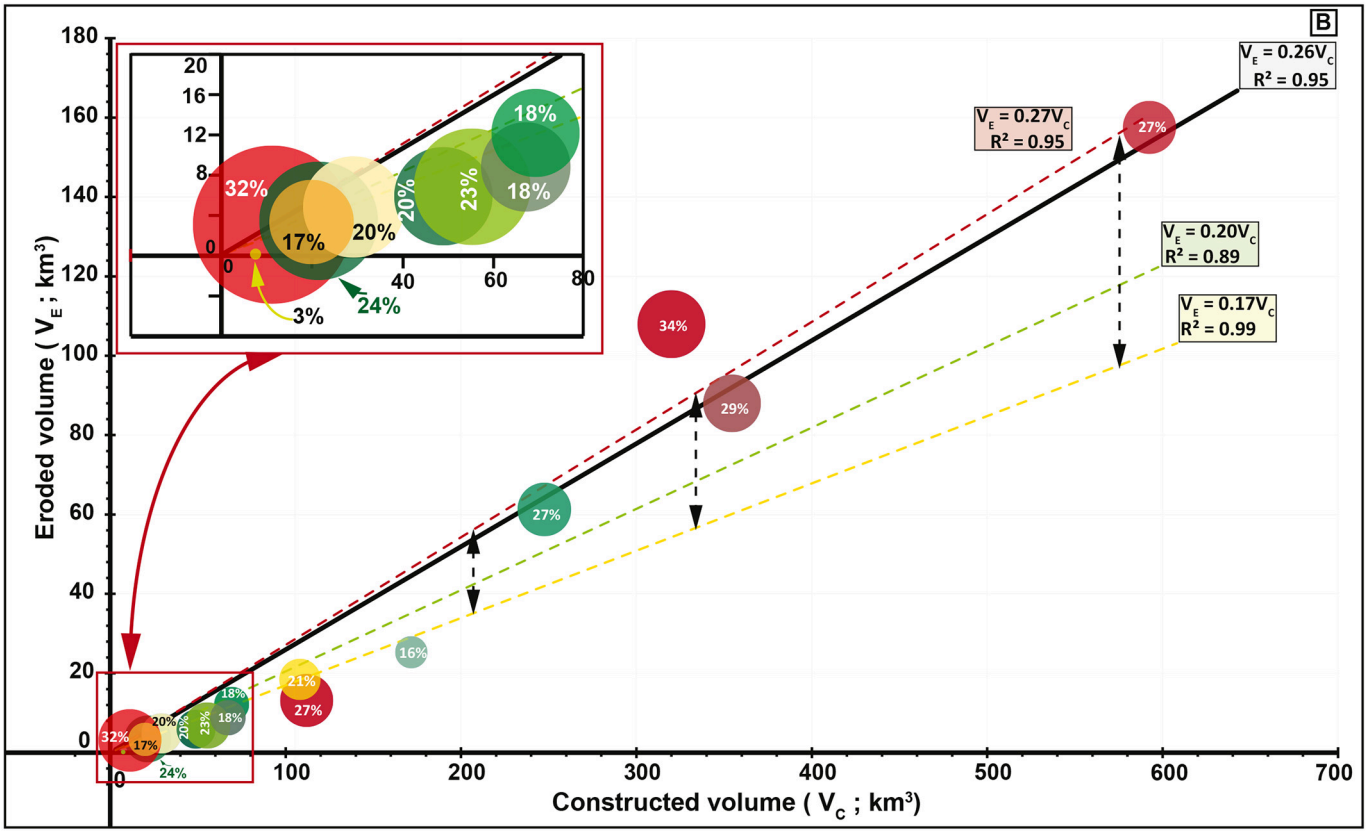


Fig. 5. A) Correlation between total constructed volume with volcano area (uncertainties displayed at 1σ-level): Green line and box parameters: power-law fitting function obtained with consideration of all volcanoes. Black line and box parameters: fitting without consideration of Făncel-Lâpuşna volcano (green dot). Inset: height and volume of CGH volcanoes plotted on the height versus volume diagram of Grosse et al. (2009) with fitting power-law function. B) Correlation of eroded volume with constructed volume of each CGH volcano: circle diameters with respect to degree of denudation values (expressed in %). Colour of symbols, line and parameters box refer to volcano ages: older (red), intermediate (green) and youngest (yellow) volcanoes. Black line and parameters box represent the V_E-V_C correlations for all volcanoes whereas colour lines show fitting for the corresponding periods. Black arrow explained in text.

reconstructing a full paleo-topography of the volcanic edifice, especially for heavily dismantled volcanoes such as those in the Călimani and Gurghiu segment.

A clear anticorrelation exists between relative uncertainties of constructed volume ($\sigma RELV_C$, range from 19% to 50%, details in S.M.) and average height (ΔH_{mean}, Fig. 7) and fits particularly well ($R^2 = 0.87$)

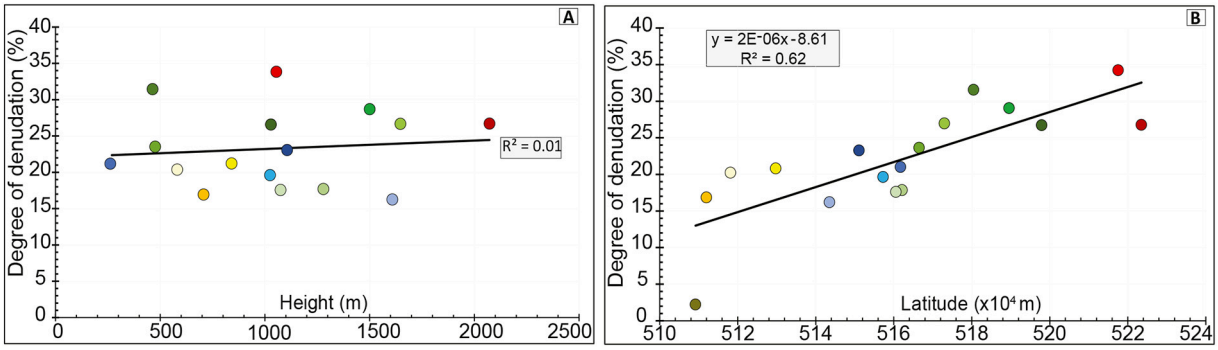


Fig. 6. Correlation between degree of denudation of each volcano of the range with A) the height, B) the latitude. Colours symbols with respect to belonging segment (yellow: South Harghita, blue: North Harghita, green: Gurghiu, red; Călimani).

to an inverse function. Even if calculation of relative uncertainty is obtained from a complex integration of elementary uncertainties over the whole area of the volcano, it can be approximated as.

$$\sigma RELV_C \approx \text{sqrt}\left(\sigma_{Mean_upper_surface}{}^2 + \sigma_{Mean_lower_surface}{}^2\right)/\Delta H_{mean} \quad (3)$$

where, ΔH_{mean} is the average elevation of the edifice, and both σ_{Mean} terms are the average uncertainties of the basal and upper surfaces. Consequently, for a given volume, the smaller the ΔH_{mean}, the more poorly constrained its average height, and the higher, the relative uncertainty associated to its reconstructed volume ($\sigma RELV_C$).

6.2. K-Ar age constraints

6.2.1. Comparison with previous radiometric age data

All new K-Ar ages (obtained on Central Călimani, Seaca-Tătarca, Vârghiş and Pilişca volcanoes, Table 1, Fig. 2A–D) match within 1σ with the previous, respective conventional K-Ar ages. As such, the main issue is not necessarily the absolute values but, rather, improving their precision, since the uncertainty has been reduced by a factor of 3 to 5 (typically around 0.1 Ma vs 0.4 Ma). This improvement is crucial for correctly defining the dynamism of the volcanism, which requires precise constraints on volcano lifespans.

The lifespan of Seaca-Tătarca volcano, for example, is shortened from a previous estimate of 1 ± 0.4 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b) to 340 ± 140 ka. For Vârghiş volcano, the new results slightly extend its youngest activity (4.61 ± 0.07 Ma, this work, vs 4.9 Ma in Pécskay et al., 1995) and refine its relatively long lifespan from 0.7 ± 0.4 to 0.9 ± 0.1 Ma. For Pilişca volcano, newly dated units do not sufficiently encompass its full activity to allow constraining its lifespan based only on the new K-Ar ages.

6.2.2. Example of volcano growth through time: The case of Seaca-Tătarca volcano

The study of the well-defined, regular-shaped simple edifice of Seaca-Tătarca benefits from regularly distributed, well-dated samples, allowing for precisely correlating its volume growth rate through time (Fig. 8A and B), and proposes a growth model encompassing its whole construction phase. For this purpose, the dated samples are projected in a graph of elevation versus distance to centre, with correction of the ellipticity of the edifice (Fig. 8A). Next, considering the average topographic profile of the volcano at the end of its construction and assuming a homothetic construction (i.e. shape remains self-similar all the time), we computed the proportion of the volcano volume that was already constructed with constant growth rate when subsequent, dated lava flows erupted.

Based on this, the location of the oldest sample (17EC03) is calculated as corresponding to 10% of the construction of the edifice (Fig. 8A) which is consistent with its outcrop in the large, central erosive depression that has not yet sufficiently dismantled the innermost part of the volcano to reach its basement. Though coming from a lower elevation than the previous one, sample 17EC04, belongs to an upper section of the volcano (21% of the construction). It outcrops in a river valley

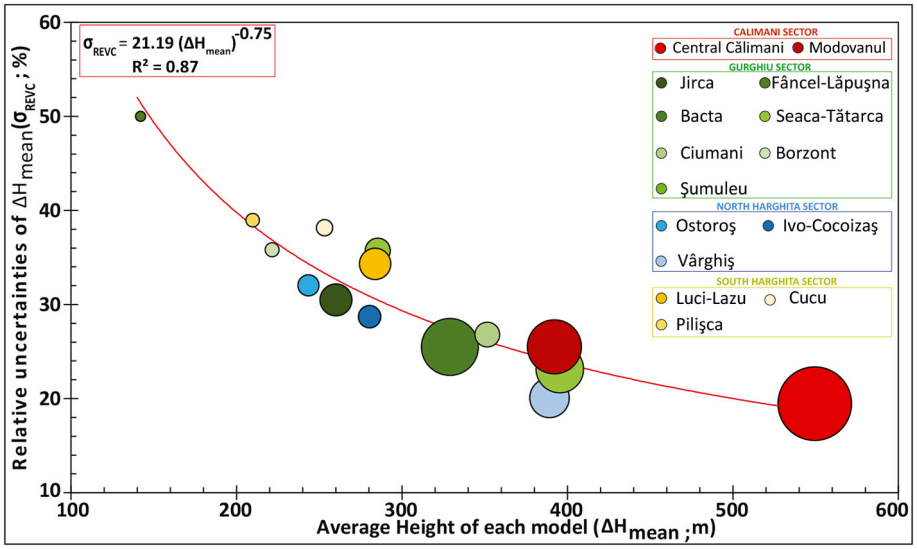


Fig. 7. Relative uncertainty of constructed volume versus average height diagram with best fitting function. Circle diameter proportional to volcano volume.

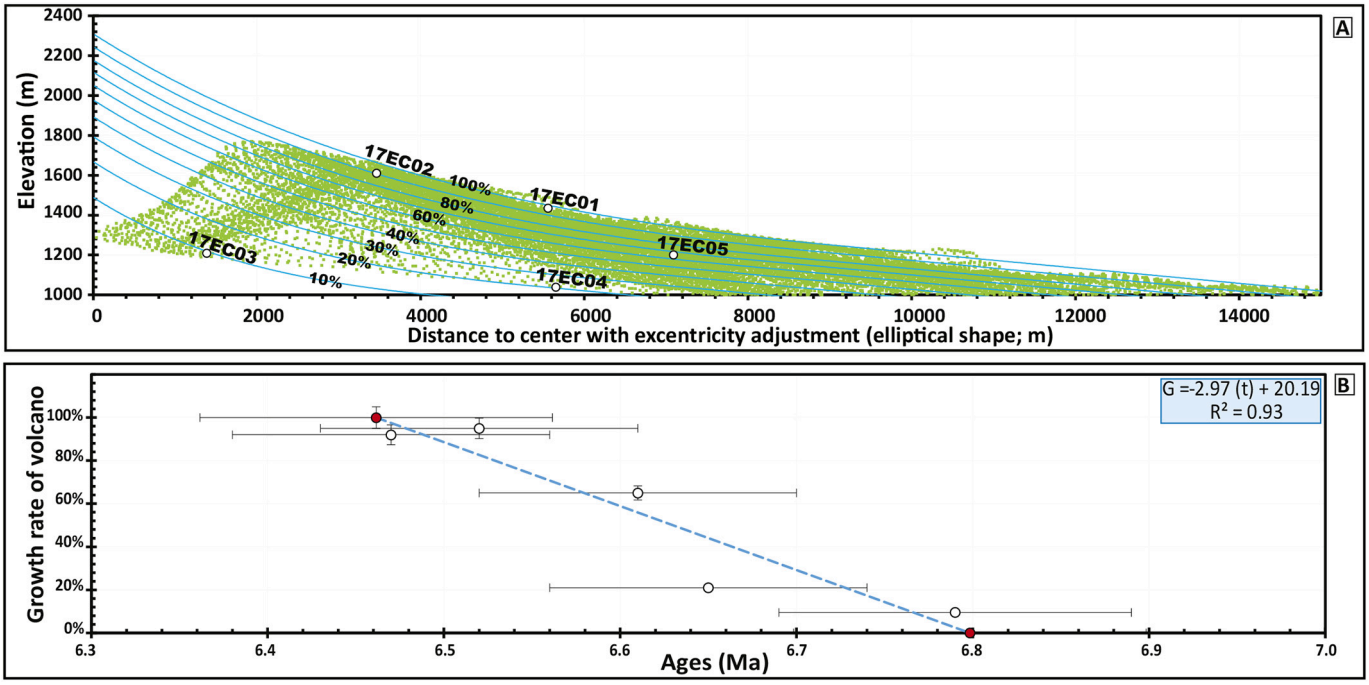


Fig. 8. Model of growth of Seaca-Tătarca volcano through time: A) Projection in elevation versus distance to centre of the whole Seaca-Tătarca volcano surface (green dots) with projection of the dated samples (white dots). Blue line displays the chronological model of growth based on the modelled uppermost volcanic surface. Note how the blue lines regularly spaced every each 10% of volume become closer upward. B) Proportions of constructed of Seaca-Tătarca volcano versus time diagram. White dots: growth proportion associated to each dated sample deduced from panel A, red dots represent interpolation of 0 and 100% of construction (i.e. begin and end of the activity).

whose topographic profile (represented by the lowest green dots in Fig. 8A) is less sloping than the volcanic sequence it crosscuts. Consequently, outcrops along this valley display younger and younger volcanic units toward the periphery of the volcano. Sample 17EC05 corresponds to an intermediate position during the construction of the edifice (65%) despite its location in the upper flanks. Indeed, as the volcano grew, its area increased, too, requiring more and more material to increase its elevation. Consequently, each new % of growth (i.e. elevation) occupied progressively lower thicknesses (in Fig. 8A, blue lines regularly spaced at 10% are closer and closer upward). The uppermost

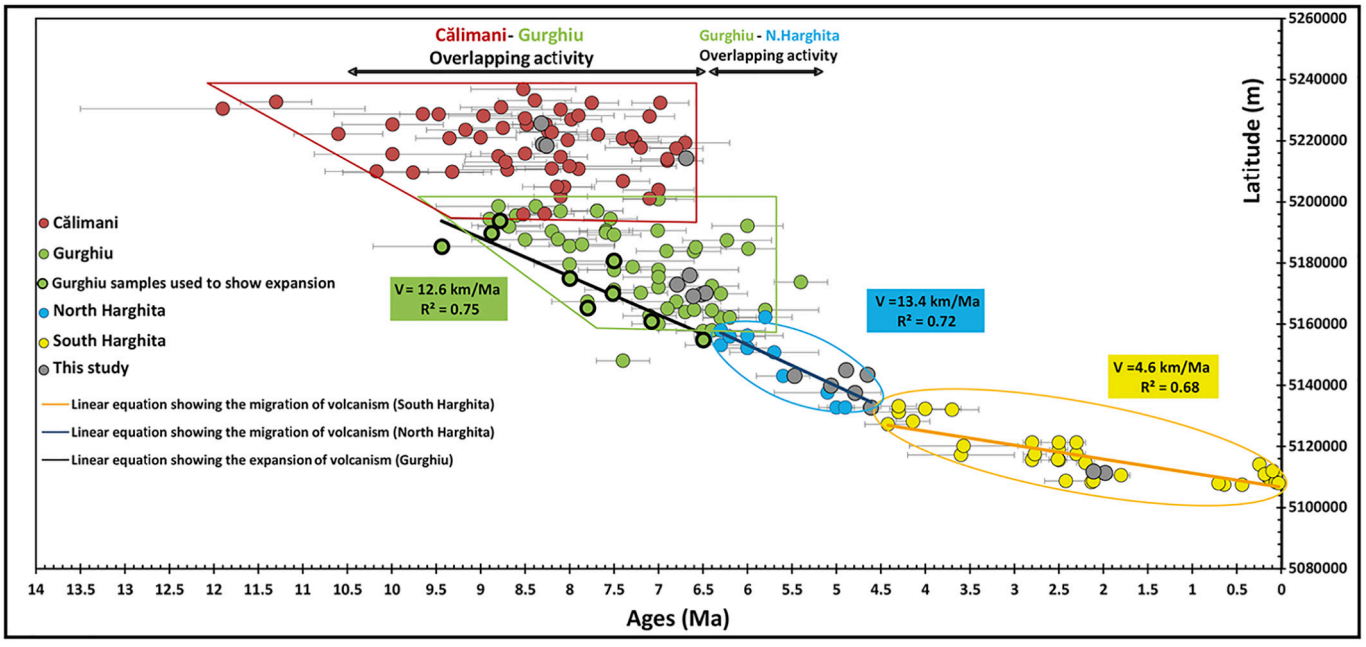


Fig. 9. All available ages of CGH volcanic range projected along a N-S profile (Y-axis is the UTM coordinates of samples). Colours symbols as in Fig. 5 except grey symbols plotting newly dated samples. Coloured outlines display the spatio-temporal range of volcanic activity. Heavy lines show either the expansion (Gurghiu case, using only heavily outlined green symbols) or migration (N. and S. Harghita cases, using all their respective ages) through time (details in the text), with quantification in the coloured rectangles. Black double arrows highlight the synchronism in sectors.

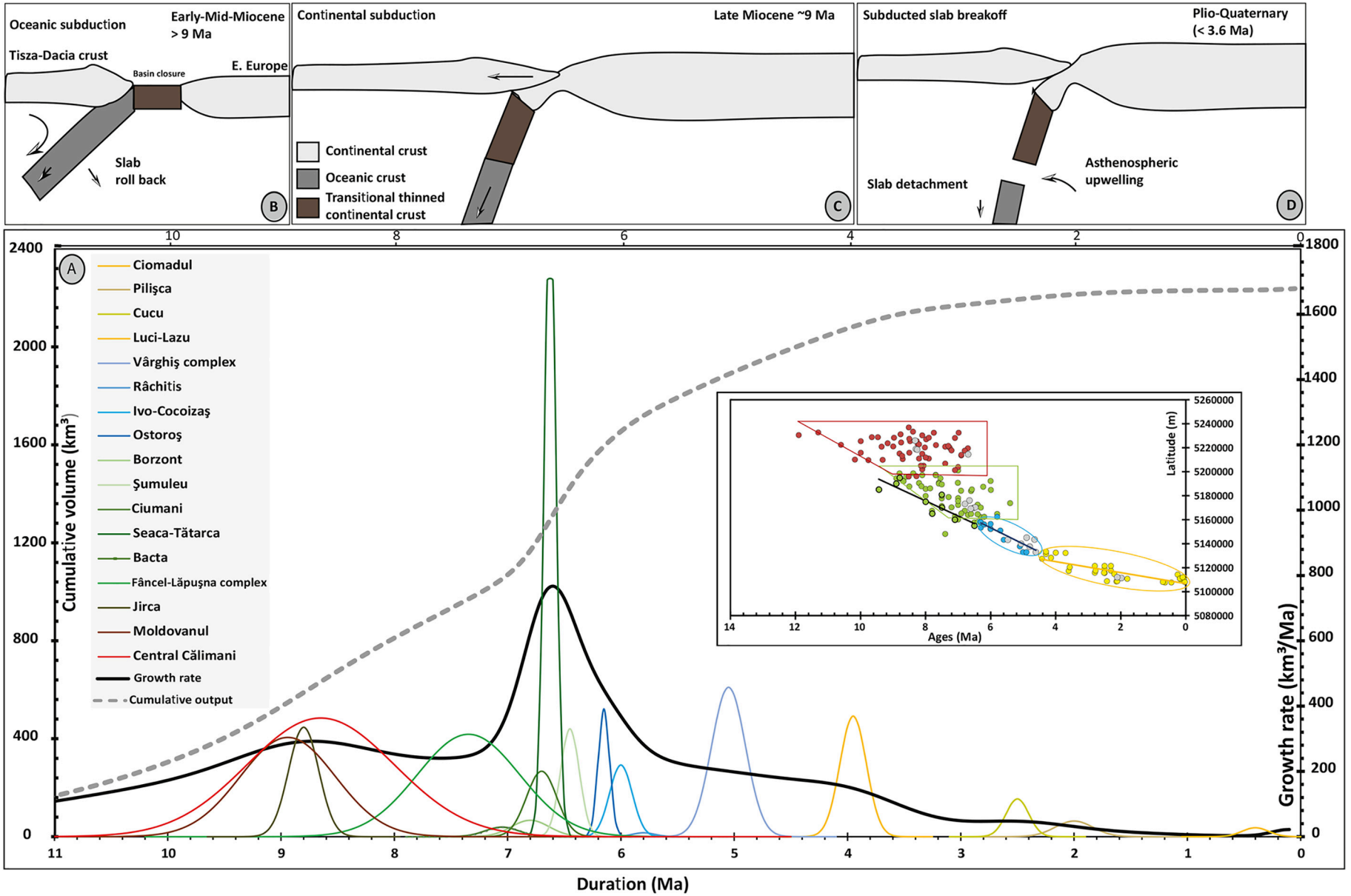


Fig. 10. Cumulative volume and magma output rates through time (A), correlated to the main Tertiary tectonic events affecting the East Carpathian range (displayed as cartoons B, C and D). A) Individual variation of volcanic output through time (coloured lines). Cumulative erupted volume (dashed line and left axis) and global growth rate (plain line and right axis) variations through time over the whole CGH range. Inset displays in this figure to highlight volume – space correlations. B) Oceanic crust subduction occurring during the Early–Mid-Miocene convergence episode. C) Thinned continental crust subduction and collisional features in the overriding plate. D) Slab detachment of the dense oceanic lithosphere from buoyant continental lithosphere and upwelling of the hot asthenospheric mantle into the gap to be juxtaposed against the base of the mechanical lithosphere.

and youngest dated lava flows (17EC02 and 17EC01, Fig. 8A) correspond almost to the last stage of the edifice construction (92% and 95%, respectively).

From these growth proportions through time (white dots in Fig. 8B), and assuming magma output rate as constant (straight line in Fig. 8B), we can define the growth pattern of the whole volcano. In particular, the age of the onset and end of its activity can be inferred as the time interval where the growth line intersects 0% and 100% of growth proportions, respectively. With consideration of uncertainties, this interpolation leads to a full construction of Seaca-Tătarca volcano from 6.80 Ma to 6.46 Ma (red dots in Fig. 8B) and, consequently, a lifespan of ~340 ka. Based on such detailed findings of a selected volcanic edifice, we can assume that detailed chronological studies on similar-sized volcanoes along CGH would result in faster growth rates as well.

6.3. Spatio-temporal evolution of the CGH volcanism

Compiling all available K-Ar ages (Fig. 9), i.e. the new unspiked K-Ar ages along with those on Ciomadul and Pilişca and the numerous conventional K-Ar ages, the previously recognized diachronism in volcanic activity along the CGH range can be confirmed, generally characterized by decreasing ages southward from the late Miocene (~11 Ma) volcanism in Călimani to the sub-recent (<0.1 Ma) activity at Ciomadul (Rădulescu and Săndulescu, 1973; Peltz et al., 1987; Szakács et al., 1993, 2018; Pécskay et al., 1995, 2006; Seghedi et al., 2004b, 2005a, 2005b; Karátson et al., 2019; Lahitte et al., 2019). However, detailed analysis along the range highlights overlaps in volcanic activity between some segments. In particular, the activity of Călimani and Gurghiu was partially simultaneous, roughly between 9.8 and 6.3 Ma (Seghedi et al., 2004b, 2005b; Pécskay et al., 2006). A second overlap is observed between the latest activity in Gurghiu and the early activity of North Harghita (6.3–5.1 Ma).

Detailed observation of southward age progression along the CGH range allows for observing various compartments in each segment (Fig. 9). For Călimani, volcanic activity was coeval in both edifices (Central Călimani and Moldovanul), the earliest activities starting in the northern area and then shifting southwards. This mechanism is highlighted by the trapezoid box in Fig. 9 illustrating how early activity started only in the north but subsequently took place simultaneously in the entire segment. In Gurghiu, also, southward age progression does not establish a real migration, but, instead, an extension of the volcanically active area (green trapezoid in Fig. 9). Isolating the oldest Gurghiu ages for each 20 km-large windows allows constraining its southward expansion (black line on Fig. 9). Starting from only Jirca's activity at the beginning, the volcanism experienced a widespread expansion of activity at a rate of 12.6 km/Ma ($R^2 = 0.75$) over the whole segment (all volcanic centres being active quasi contemporaneously). It seems that during this period, the volcanism reached its paroxysm and accounted for the main activity apparent at around 6.6 Ma (Fig. 10).

On the contrary, volcanism in North and South Harghita shows a well-defined southward migration. A full progression of ages can be observed toward the south, as activity in each subsequent volcanic centre generally begins at a progressively later date with relatively good correlations. Between 6.3 and 4.6 Ma, volcanism migrated at a rate of 13.4 km/Ma ($R^2 = 0.72$) over the whole North Harghita segment. Subsequently, from 4.3 to 0.03 Ma, volcanism continued to progress southward along South Harghita. Samples obtained for each volcanic centre show a narrow age range (typically <1 Ma), reflecting the migration of activity but at a slower rate (4.6 km/Ma, $R^2 = 0.68$; Fig. 9) than along the older parts of the CGH.

6.4. Growth rates evolution through time and tectonic implications

Combining ages with the new volume constraints allows for characterizing the major phases of volcanic activity, the quiescence periods and the evolution of magma output (Fig. 10A). To quantify this, the volume of each volcano is assumed to be erupted between the youngest and the oldest available ages, with a maximum output occurring at half-time of the age range (Grosse et al., 2018) and individual GR through time is defined, at volcano-scale, by a Gaussian-like curve (coloured curves in Fig. 10A). Next, summing all individual outputs through time, we computed cumulative growth rate (dashed grey line in Fig. 10A). Finally, the derivation of this curve gives the GR through time for the whole CGH volcanic activity (bold line in Fig. 10A). Even though the regional GR does not consider the possible subvolcanic bodies (see discussion in Karátson and Timár (2005), it remains a good proxy for investigating overall magma output rate.

Starting around 11 Ma, the CGH range experienced three main periods of volcanic activity isolated by two long periods of relative quiescence (3.6–2.8 Ma and 1.5–0.9 Ma, Fig. 10A): first, a long and continuous period of activity between 10.6 and 3.6 Ma with a maximum pulse of activity at 6.6 Ma (contemporaneous to the growth of Seaca-Tătarca volcano); and next, a drastic decrease of volcanic activity with only episodic activities at 2.8–1.5 Ma and 1–0.03 Ma during the growth of Pilişca and Ciomadul. The migration of volcanism can be correlated to changes in the magma storage system (along with magma composition) influenced or triggered by changes in plate tectonic processes (see global context in Crisp, 1984; White et al., 2006; East Carpathian features in Mason et al., 1998; Seghedi et al., 2011). Before 3.6 Ma, most volcanoes (Fig. 10A, B and C) erupted relatively high volumes (>50 km^3) of basaltic andesite to andesite lavas with a typical calc-alkaline composition (Seghedi et al., 2011). Their homogeneous Sr-Nd-Pb isotopic composition may reflect a common mantle source (Mason et al., 1996, 1998; Seghedi et al., 2011). On the contrary, South Harghita volcanoes of the 3.6–0.03 Ma period (Fig. 10A and D) are smaller (<30 km^3) and show different chemical composition with progressively increasing K-content (from calc-alkaline to high-K calc-alkaline and shoshonite) and adakite-like features, reflected by the increased proportions of dacites and shoshonites (Szakács et al., 1993; Seghedi et al., 2011).

The two different magma sources should have been responsible for the observed morphometric dichotomy in volcano size between the northern segments (from Călimani up to Luci-Lazu edifice in North Harghita) and the three last edifices (Cucu, Pilişca, Ciomadul in South Harghita). Such conclusions fit with observations of Crisp (1984) and White et al. (2006), who showed that more mafic magmas are more easily mobilized in the lithosphere and tend to erupt higher volumes (northern CGH volcanoes) than the differentiated ones (i.e. most of South Harghita).

Subsequent GR values computed at segment-scale (234, 276, 116 and 39 km^3/Ma from north to south segments, Table 2) as well as values at volcano-scale (>100 km^3/Ma until 3.6 Ma and <50 km^3/Ma after) clearly support the decrease of volcanic intensity along the range, as previously identified by (Szakács and Seghedi, 1995; Szakács et al., 2018), and the effect of different magma sources (Seghedi et al., 2011). Moreover, Bouguer and magnetic anomalies surveys (Seghedi et al., 2019) revealed positive residual anomaly in the northern and axial part of the range, indicating the presence of high-density subvolcanic bodies which may be correlated to the high eruptive volumes computed in those segments. Contrarily, in the Southern Harghita, residual magnetic anomalies are negative, indicating the presence of low-density structures in coherence with the small volumes of volcanoes.

In Gurghiu segment, the main magmatic pulse of activity observed around 6.6 Ma (Fig. 10A) can be plausibly related to the migration of the subducted slab through the magma generating zone in the mantle and the initiation of the progressive detachment of the slab following an oblique subduction stage (Mason et al., 1998; Seghedi et al., 1998, 2011). This main pulse temporally coincides with an E–W compressional event that occurred across the entire Carpatho-Pannonian region during the late Miocene, interpreted as reflecting the arrival of thick and buoyant continental crust at the trench and its resistance to subduction

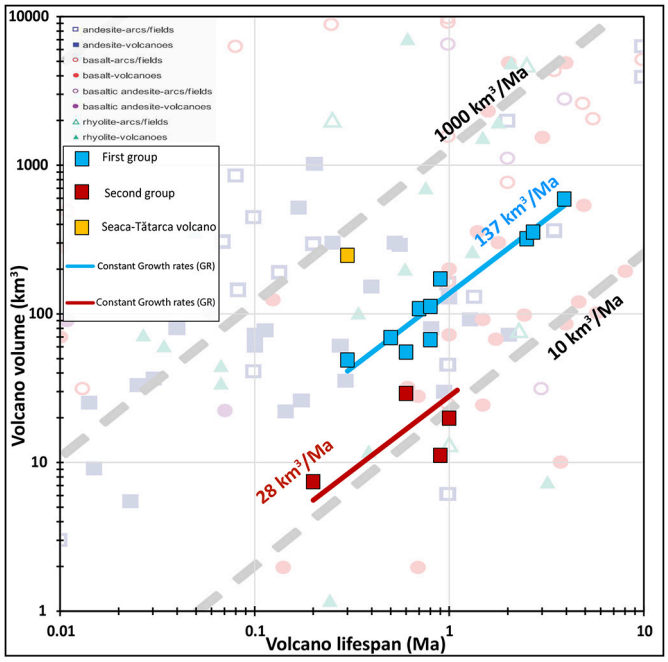


Fig. 11. Volumes versus lifespan in a log-log diagram. Trends of both group (red and blue diagonal lines) as well as grey dashed lines represent constant rates of magma output. Background of the figure displaying various volcanic contexts around the world from White et al. (2006).

(Peresson and Decker, 1997). Moreover, Gurghiu zone is mostly located at the intersection of regional tectonic elements with normal faults associated with paleo-basins (Seghedi et al., 2019). Interaction of tectonic structures would have created an area of low resistance, facilitating the penetration of magma and development of its ascent paths, thereby allowing rapid magma output and construction of large volcanic centres in this segment. Moreover, the largest positive magnetic anomaly identified under Gurghiu segment (Seghedi et al., 2019) was suggested to have been the solidified plumbing system responsible for generating the Seaca-Tătarca and Şumuleu volcanoes. Under a collisional regime, the progressive slab detachment toward the south (Fig. 10D) may have triggered gradual migration of magma production in South Harghita, along with emplacement of adjacent or overlapping volcanic structures (Mason et al., 1998; Seghedi et al., 2005b).

A decreasing volcano volume toward southeast (Szakács and Seghedi, 1995) (Fig. 4A; Table 2) can also be explained by the progressive opening of the lithospheric tear during slab steepening (Mason et al., 1998; Seghedi et al., 1998, 2011). Finally, during the final stages of subduction, a decrease in the convergence rate in the extreme south of the CGH (Fig. 10D) was evidenced (Seghedi et al., 2011), possibly also responsible for the smaller dimensions of the last three volcanoes.

The two Plio-Quaternary quiescence periods (3.6–2.8 and 1.5–0.9 Ma, Fig. 10A–D) were interpreted as linked to changes in magma sources by Seghedi et al. (2011). Interestingly, the 1.5–0.9 Ma time gap is a period when K-alkalic and Na-alkalic volcanism developed in other areas (shoshonites at Bixad/Malnaş and alkali-basalts in Perşani Mountains; Downes et al., 1995; Panaiotu et al., 2004).

Growth rate can be used as a good proxy for revealing the dynamism, fluctuation and intensity of volcanism. Globally, long-term eruption rates for silicic volcanism range from $<10^{-5}$ km^3/ka to 10^1 km^3/ka, the average being 2.3 ± 0.8 km^3/ka for andesitic systems (Vidal and Bonneville, 2004; White et al., 2006). Plotting CGH growth rates results (Fig. 11) in the volcano volume versus lifespan graph of White et al. (2006) highlights two distinct magma output trends. The first group (most edifices of the three northernmost segments, plus Luci-Lazu volcano, blue symbols in Fig. 11) shows an average GR of 137 km^3/Ma. The second one (the three youngest Pliocene-Quaternary edifices of South Harghita plus a small Late Miocene edifice in Gurghiu, red symbols in Fig. 11) is characterized by five times lower GR (28 km^3/Ma).

Seaca-Tătarca volcano with the highest GR (825 km^3/Ma, yellow symbol in Fig. 11) remains isolated from these two trends. The exceptionally high GR value does not only originate from the high precision on dating results, which allows drastically refining its lifespan (340 ka). Indeed, even considering the typical 1 Ma-long lifespan computed for most northern CGH volcanoes, its GR would remain two times higher than the given general trend. This implies both an exceptionally intense dynamism of Seaca-Tătarca activity and the call for getting more accurate age results for other volcanoes, since the lifespan of most CGH volcanoes probably could be in the same order of magnitude.

Over the entire CGH range, the calculated average GR is 200 km^3/Ma (ratio between total volume emitted by all volcanoes during the whole range lifespan ~11 Ma, without consideration of the repose periods), slightly larger than previously proposed 152–164 km^3/Ma range (Szakács et al., 1997; Karátson and Timár, 2005). Even if fluctuations in CGH growth rate occurred through time (10–825 km^3/Ma), values remain low compared to values for andesitic volcanoes (blue squares in Fig. 11 background) from other subduction-related arcs (White et al., 2006). It testifies to the less intense magma generation processes in the long term here than in areas where subduction is more intense, such as the West Indies, Japan and the Andes (White et al., 2006). Again, higher-precision dating may result in more intense GR at the lifetime scale of individual edifices as is the case with Seaca-Tătarca. Such a finding matches with worldwide (real, short-term) GR values of composite cones such as at Parinacota volcano, Chile (Hora et al., 2007).

6.5. Erosion rate and degree of denudation through time

Summing eroded volumes of all CGH volcanoes gives a total of 524 ± 125 km^3 (Table 2) and an average D_{Den} of 22%, close to the 23% proposed by Karátson and Timár (2005). At segment-scale, only the inferred eroded volume for Călimani segment (265 ± 105 km^3) does not match at 1σ with the previous results of Karátson and Timár (2005), the new value being three times larger. The

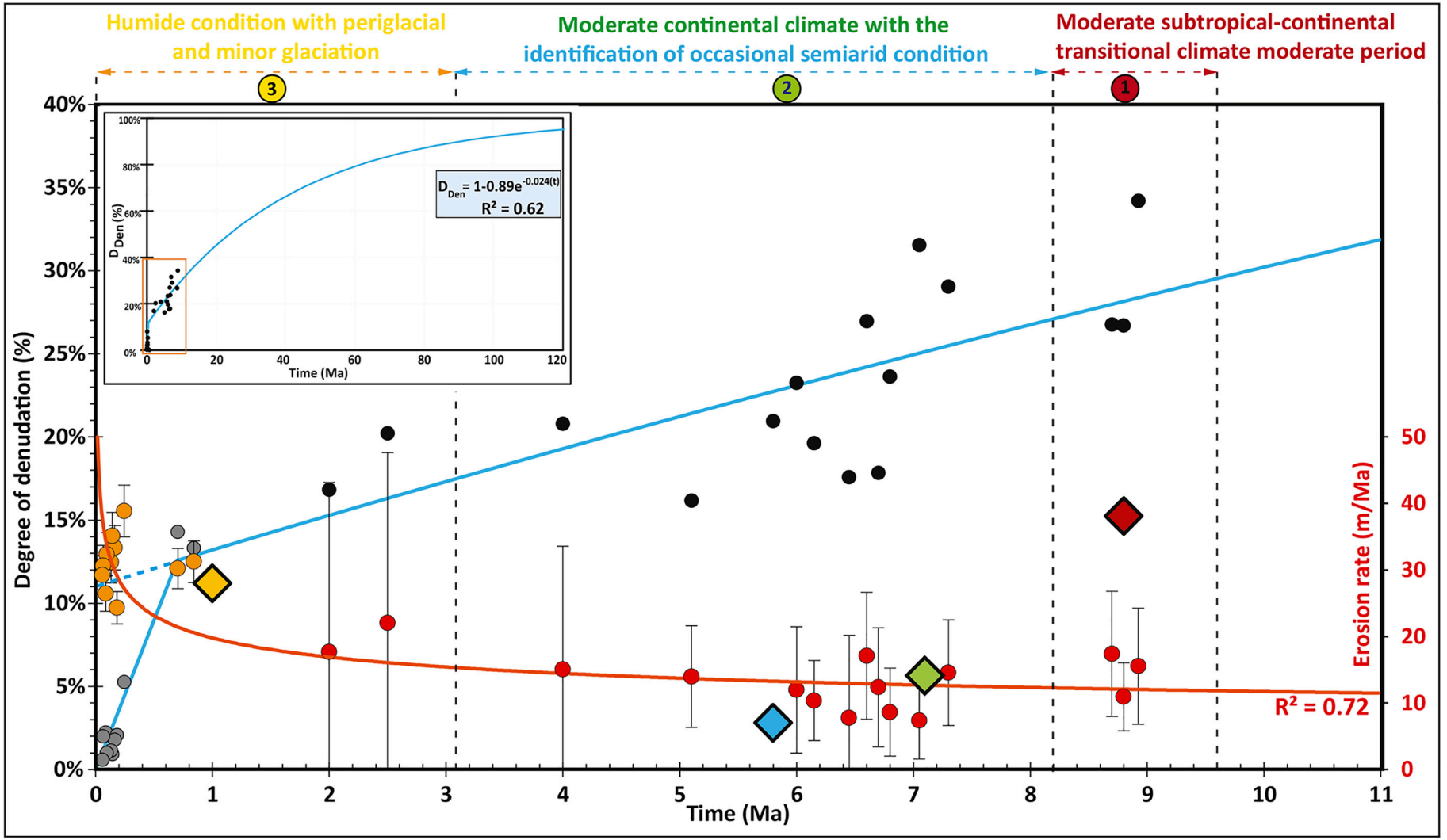


Fig. 12. Graph of dismantling parameters versus time. Black and grey circles (left axis) are the computed degree of denudation values of each volcano (i.e. averaged along its whole erosion history), fitted by the reverse exponential curve (with parameters in the blue box). Grey circles are values from the dozen domes of the Ciomadul volcanic complex (Karátson et al., 2019; Lahitte et al., 2019; details in S.M.), black dots are D_{Den} values from this work (all other CGH volcanoes). Orange and red circles are the cumulative averaged erosion rate of each volcano (right axis) and fitted by the red quadratic curve. Contrarily to red/orange circles that show average-integrated erosion rates, large diamonds (right axis) represent the erosion rates computed for specific periods when specific climatic context (summarized on top of the figure) occurred: red diamond for erosion regime occurring during 10.8–6.9 Ma; green diamond: 8.7–5.5 Ma; blue diamond: 7.0–4.6 Ma; yellow diamond: Quaternary.

discrepancy, as presented above, rise from the difference in estimation of pre-erosional volumes (V_C) that directly impact on the estimation of eroded volumes.

At volcano-scale, the V_E vs V_C plot can be interpreted with respect to D_{Den} values as it is the ratio between these two parameters (Fig. 5B). Volcanoes with different volumes but experiencing the same D_{Den} rate (i.e. build at the more and less same period) would follow a linear correlation with constant slope (dashed lines in Fig. 5B). South Harghita volcanoes built during Plio-Quaternary present the lowest D_{Den} values (~17%); average D_{Den} reaches 20% for 5.1–6.8 Ma old volcanoes and 27% for the older ones (>7.1 Ma; Călimani and northern volcanoes). On this graph, the vertical black arrows represent the additional of erosion affecting the older volcanoes and relatively to the average behaviour of the younger ones. This additional erosion increases with the volume of the volcano (bigger volcanoes produced more eroded material). However, in CGH range, larger volcanoes are also mostly the older ones, another parameter positively correlated to the V_E values (older volcanoes suffered longer erosion leading to larger eroded volume). Therefore, as volcano size (V_C) and age are globally positively correlated (Fig. 10A), these parameters sum these effects on V_E behaviour ($V_E = F(V_C) + G(Age)$). Nonetheless, even if the amount of erosion (V_E) seems to be nicely correlated to V_C, it is less relevant than the correlation between D_{Den} and the time (dashed line in Fig. 5B). By averaging D_{Den} values (Table 2 and black dots in Fig. 12) on each CGH segment leads to the following D_{Den} values: 30%, 25%, 20% and 15% (bottom of Table 2), confirming the progressive degradation of volcanoes toward north, as first quantified by (Karátson, 1996).

Correlation of the D_{Den} versus time allows establishing relationships between erosion rate (ER, i.e. aerial denudation or lowering of edifice height) and time. To better constrain the fast evolution of D_{Den} for the early stage of dismantling, we added to the CGH volcanoes dataset (this work, black dots in Fig. 12) the values proposed for the dozen edifices of the Ciomadul volcanic complex dating to between 0.03 and 0.8 Ma (Karátson et al., 2019; Lahitte et al., 2019, deduced D_{Den} summarized in Supplementary material, grey dots in Fig. 12).

In the case of dismantling evolving through time according to a single behaviour, the trend of D_{Den} would evolve from 0 at $t = 0$ (no erosion right after the volcano construction) to 100% after an infinite duration (with any volcano completely eroded). In order to verify $D_{Den}(0) = 0$, the best function to fit such behaviour is a reverse exponential function ($D_{Den}(t) = 1 - k \cdot e^{-l.t}$), with $k = 1$.

However, considering the exhaustive data set of denudation rate (0 to 11 Ma of denudation duration) leads to a best fit function with k ~ 0.9 that intersects the D_{Den} axis at 10% (dash blue line and y axis in Fig. 12). This means that a perfectly newly constructed volcano would have already lost 10% by dismantling right after its construction. This leads to an improvement of the D_{Den} behaviour, with the consideration of a more complex dismantling history, during the first 1 Ma of the erosion, when erosion occurred simultaneously to (and competed with) the growing volcano and just after the end of its construction. It is highlighted by the fast denudation rates affecting the domes of the Ciomadul complex (grey dots in Fig. 12), "instantaneously" erupted along the past 1 Ma. The good correlation between their age (i.e. erosion lifespan) and D_{Den} values supports interpretation of D_{Den} changes through time as better approximated by two distinct trends. First, a very fast evolving trend in the early stage with D_{Den} evolving from 0 to 14% during about the first 1 Ma (grey dots in Fig. 12). This trend also incorporates the proportion of the volcano dismantled during its 0.4–1 Ma-long construction phase (with an average proportion of 1% lost by 0.1 Ma-long lifespan). Then, a long-term (constrained by all other CGH volcanoes) trend fitted by the following equation (inset Fig. 12; see Supplementary material for the detail of calculation):

$$D_{Den} = 1\text{–}0.89e^{-0.024t} \left(R^2 = 0.62\right) \text{ with t in Ma} \quad (4)$$

Namely, the first stage of erosion (the first hundred thousand years [0–<0.4 Ma] and, subsequently, with less intensity up to 0.8 Ma) is much more intense due to the presence of unafforested slopes, unconsolidated material (and possibly the erosion pattern inherited from the activity period of the volcano) which result in high erosion rates. It is followed by a second slowly decelerating long-term trend that can be considered as steady-state erosion in the <20 Ma window.

Reciprocally, the averaged through time erosion rate (red and orange dots in Fig. 12) is fitted by a quickly decreasing function in the early stage, followed by a slowly decreasing rate (red curve in Fig. 12) with $R^2 = 0.72$. Both cumulated ER and D_{Den} parameters support a general behaviour that is time dependent.

In conclusion, our results fit with the already observed (Ruxton and McDougall, 1967; Francis, 1983; Karátson, 1996; Karátson et al., 2012) changes in volcano degradation: a short-term post-volcanic erosion (<0.8 Ma) was characterized by a rapid lowering and slope dissection/valley formation of the edifices with relatively high ER (24–39 m/Ma, Fig. 12), followed by a drastic decrease until reaching an equilibrium stage, where erosion rate slowly decrease as mainly operating through a well-established drainage network (Ollier and Brown, 1971; Karátson, 1996; Karátson et al., 2012) (shown by the red curve based on orange and red dots in Fig. 12).

On the other hand, within the long-term erosion, there are obvious changes in ER values which can be linked to past climate variability. A crucial record for disentangling hydrographic evolution in the Black Sea–Carpathian area from Late Neogene has been provided by the marine core DSDP Site 380A (Leg 42B; Popescu, 2006). This record, along with the long-term trend in the palynological steppe index curve (Traverse, 1978) which is a proxy representative of past climate changes between cooler and warmer phases (Suc, 1984), indicates a continuously decreasing trend in warm and wet taxa for the Carpathian area throughout Late Neogene and a strong variability during the Quaternary (Popescu, 2002, 2006).

However, ER is expected to depend on several factors in addition to climate conditions such as lithology or edifice topography such as local slope (e.g. Cotton, 1952; Ollier and Brown, 1971; Francis, 1983; Karátson et al., 1999; Thouret, 1999; Reiners et al., 2003). Again, Fig. 6A clearly shows that morphometric parameters (e.g. height, area, volume) do not control denudation; therefore, erosion of CGH volcanoes is mostly controlled by hydroclimate variability and/or slope characteristics. For instance, Champagnac et al. (2014) showed, based on mountainous relief with 10–35° slope, that the behaviour followed by erosion over time can be approximated by a quadratic relationship. CGH volcanoes, with typically 10–21° slopes (Karátson, 2007), fit well with this observation. Therefore, since volcanoes in CGH present relatively uniform and moderate slopes and are largely dominated by andesite composite volcano types, we suggest that the contrasts in erosion have been mostly driven by past hydroclimate fluctuations with the relatively small impact of topography and rock strength.

From the integrated erosion rate (ER) at segment-scale (17, 11, 9, 28 m/Ma in Călimani, Gurghiu, North Harghita and South Harghita, respectively, Table 2), it is possible to infer the ER that the main specific time intervals the CGH range experienced (Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006; Erdei et al., 2007): 1) a short time period of subtropical-moderate continental transitional climate (Late Miocene, ~9.5–8.2 Ma); 2) a moderate continental climate with intervening semiarid periods (Late Miocene up to Pleistocene, ~8.2–4 Ma); and 3) a humid continental climate with periglacial regimes during the Pleistocene glaciations (Late Pliocene-Quaternary, from ~3.0 Ma up to present). Knowing the cumulated ER of the period t_1 and $t_1 + t_2$, we computed the specific ER driving dismantling during the period t_2 that leads to the cumulative ER of the period $t_1 + t_2$. For instance, the cumulated ER for North Harghita equals the erosion regime that specifically controlled the dismantling of North Harghita before the construction of South Harghita plus the erosion regime during the dismantling of South Harghita. Obviously, the ER calculated for a certain period allows

Table 3
Specific erosion rates along CGH range history for each contemporaneous climate period (details in Fig. 12 legend).

Sector	Period of activity (Ma)	Average age (Ma)	Erosion rate (m/Ma)	Climate fluctuation
Călimani	10.8–6.9	8.8	38	Short-time moderate period subtropical-continental transitional climate (More Humid; 3)
Gurghiu	8.7–5.5	7.1	14	Moderate continental climate (Less humid; 2)
North Harghita and Luci-Lazu edifice	7–4.6	5.8	7	Moderate continental climate with the identification of occasional semiarid condition (2)
South Harghita (Cucu, Pilişca, Ciomadul)	<3–present	1.0	28	Moderate continental Humid condition with periglacial and minor glaciation (1)

inferring the behaviour of erosion in response to prevailing climatic conditions.

This approach leads us to infer four successive erosion regimes showing a strong fluctuation over time (Table 3 and large diamonds in Fig. 12). 1) The highest ER (38 m/Ma, for the 10.8–6.9 Ma period, red diamond), obtained for the construction period of Călimani (Fig. 12), fits with the influence of the transitional moderate subtropical-continental climate period as defined above (Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006). 2) Decreasing ER for Gurghiu (14 m/Ma, 8.7–5.5 Ma, green diamond) and North Harghita (7 m/Ma, 7.0–4.6 Ma, blue diamond) accords with the subsequent, drastically decreased erosional processes characterizing a moderate continental climate. The extremely low value of 7 m/Ma, pointed out for Late Miocene to Pliocene times, can be explained by occasional semiarid conditions (Lisiecki and Raymo, 2005). Indeed, Pliocene was already characterized by long-term shifts between the humid forest biotopes and run-off and the dry steppes, with changes linked to large amplitude climatic and moisture variations (Suc, 1984; Popescu, 2002, 2006). 4) Finally, the 28 m/Ma ER obtained for the Plio-Quaternary period (<3 Ma, yellow diamond) can reflect the prevailing more humid conditions (Suc, 1984; Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006; Schreiber and Unger, 2006) with a minor impact of glacial erosive activity and periglacial regime.

These results of erosion rate specific to the main time intervals analysed are following reconstructions of variability in sea levels and progressively stronger land glaciations from Late Neogene to recent times (Lisiecki and Raymo, 2005). These are correlated to a shift from prevalent chemical weathering during Late Neogene to enhanced surface processes, run-off and physical weathering prominent during the Quaternary (Gibbard and Lewin, 2009). The latter reflect rapid and high-amplitude successive hydroclimate variability between humid and glacial periods (colder and generally drier periglacial conditions) and shorter, wetter and warmer interglacials (Lisiecki and Raymo, 2005).

For the entire range, average ER is ~20 m/Ma, lower than the 31.5 m/Ma proposed by Karátson (1996). The latter value was calculated for the highest crater-topped summit regions only and consequently overestimated the average erosion rate over the whole area as omitting the peripheral aprons affected by lower ER. Our calculated ER for the highest volcanoes (Central Călimani, Fâncel-Lăpuşna, Seaca-Tătarca, Vârghiş and Şumuleu) give high values (>14 m/Ma), whereas smallest edifices (Jirca, Bacta, Borzont, Râchitis, Pilişca) show the lowest values (<11 m/Ma, Table 3), in accordance with these ages, the most elevated (and larger in size) volcanoes are also the older ones.

Relying on inferences of past climatic variability for the broader Carpathian region and experienced by the CGH range throughout its evolution (Traverse, 1978; Suc, 1984; Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006; Erdei et al., 2007), we suggest that the best way to express ER variations is to detail them at the scale of an individual segment. Indeed, work at the scale of the whole CGH would only propose a regional value without consideration of variations through time, whereas work at the scale of a volcanic edifice would introduce local bias due to the own history of construction/dismantling that each volcano experienced (even if the 16 ERs define a general trend).

Globally, few studies have investigated ER over a long-term period, hence the relationship with the geodynamic context or past climate variability is still poorly understood (Karátson and Timár, 2005; Germa et al., 2010; Karátson et al., 2012; Smith et al., 2016). Studies in tropical environments pointed out much higher ER (Louvat and Allègre, 1997; Hildenbrand et al., 2008; Germa et al., 2010; Ricci et al., 2015b). The systematically higher ER values support the dominant role of climate as a main factor during dismantling. Moreover, differences in prevailing lithology can also affect the behaviour of ER. For example, basaltic rocks experience a faster weathering compared to andesitic ones and hence show higher ER (Gislason et al., 1996; Louvat and Allègre, 1997).

The termination of erosional processes on volcanic landforms is the complete destruction of the volcano with a remnant morphology of necks and dykes (i.e. skeleton stage: Cotton, 1952) and a D_{Den} reaching almost 100% (inset of Fig. 12). It defines a very long-term stage (tens to hundreds of Ma) when the volcano is very slowly dismantled as ER tend simultaneously to zero. The equation fitting D_{Den} long-term evolution (Eq. (4)) leads to a duration required to destroy 95% of the entire range of 120–20/+50 Ma. Even if such duration would be significantly modified by changes in the tectonic (e.g. uplift) and/or climatic contexts (Peulvast and Claudino Sales, 2005), its order of magnitude is reliable given some known relict morphologies that testify to Cretaceous or even older Mesozoic volcanism (Klein, 1975; Sturt et al., 1979; Simon-Coinçon, 1989; Slingerland and Furlong, 1989).

7. Conclusions

From the modelled volcanic surfaces performed in this study, the constrained constructed volumes allow classifying the CGH volcanoes in the field of volcanic massif, which is in accordance with their topographic complexities and eruptive lifespan, as pointed out by new ages of the Seaca-Tătarca (~340 ka) and Vârghiş (~900 ka) edifices. The 1/3-exponent in the power-law function relying original heights and volume advocates for CGH volcanoes as being self-similar, i.e. exhibiting homomorphic shapes irrespective of the peculiar complexities of their constructional histories. The overall volume computed for the entire CGH is ~2200 km^3, characterized by decreasing individual volumes from north to south, matches the evolution in terms of influence from different magma sources and plate tectonics. Individual growth rates per volcano distinguish a first moderate regime (137 km^3/Ma) for the majority of volcanoes (11–3.6 Ma), followed by a drastically decreased output rate (28 km^3/Ma) for the mostly Plio-Quaternary volcanoes. Apart from these two trends (representing the average of individual growth rate per volcano), the much higher GR obtained for Seaca-Tătarca (825 km^3/Ma) is the consequence of probably both its shorter activity (inferred from new K-Ar datings) and a stronger magmatic regime. However, this finding also points out the poorly constrained duration of volcanic activity (and related output rates) if computed from poorly constrained ages in the case of CGH volcanoes for which modern standard dating is not yet available. Fluctuations of GR (relatively to the moderate overall averaged value of 200 km^3/Ma)

is interpreted as the manifestation of strong fluctuations of volcanic activity driven by drastic changes in subduction mechanisms with decrease of convergence rate during the Plio-Quaternary causing breakoff beneath South Harghita and subsequent upwelling of asthenospheric mantle.

Beyond the average values of dismantling parameters (total eroded volume of 524 ± 125 km^3, averaged denudation and erosion rate of 22% and 20 m/Ma, respectively), the correlation established between denudation and time defines two contrasting intensities of dismantling processes given their position along the erosional timeline. The first denudation trend shows an intense and rapid denudation (<0.8 Ma) after the cessation of volcanic activity while the second long-term trend slows down over the remaining erosional lifespan. Whereas this behaviour implies an almost constant erosion rate during the lifespan of the CGH erosion, detailed erosion rate values computed for shorter time intervals evidence the variety of intensity of erosion having occurred through time. Since volcanic edifices present relatively uniform slopes and composition, these second order variations suggest that contrasts of ER along CGH range were mostly driven by climate fluctuations through time: highest ER (38 m/Ma) during the transitional moderate subtropical-continental climate period; intermediate ER (14 m/Ma) characterizing a moderate continental climate period when conditions became less humid; extremely low ER (7 m/Ma) coeval with continental, but occasionally semi-arid, climate; and, finally, higher ER (28 m/Ma) when Plio-Quaternary experienced generally wetter conditions with alternating glacial and interglacial stages.

The presented quantitative morphometric approach of paleovolcanic landforms, performed at the detailed scale of individual volcanoes, demonstrates the possibility of a wide range of applications in various geological domains. They allow constraining constructive processes of volcano-tectonic dynamism at the scales of both individual volcanoes and global geodynamic context. Furthermore, by correlating eroded volumes and climatic variations, the intensity of the processes driving the dismantling of the volcanic range can also be well assessed.

Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Acknowledgments

We are particularly grateful to the two anonymous reviewers and Karoly Nemeth as well as Editor Markus Stoffel for their comments and suggestions, which greatly helped us to improve the clarity of this paper. This research has been supported by the Hungarian Scientific Research Fund NKFIH-OTKA No. 765 K 115472 to DK. Financial support for SD and PL was also provided by the SYSTER 2017 program 766 of INSU, CNRS. This is Laboratoire de Géochronologie Multi-Techniques (LGMT) contribution number 155.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2020.107352.

References

Bablon, M., Quidelleur, X., Samaniego, P., Le Pennec, J.-L., Lahitte, P., Liorzou, C., Bustillos, J. E., Hidalgo, S., 2018. Eruptive chronology of Tungurahua volcano (Ecuador) revisited based on new K-Ar ages and geomorphological reconstructions. J. Volcanol. Geotherm. Res. 357, 378–398. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2018.05.007.

Blaikie, T.N., van Otterloo, J., Ailleres, L., Betts, P.G., Cas, R.A.F., 2015. The erupted volumes of tephra from maar volcanoes and estimates of their VEI magnitude: examples from the late Cenozoic Newer Volcanics Province, south-eastern Australia. J. Volcanol. Geotherm. Res. 301, 81–89.

Borgia, A., 1994. Dynamic basis of volcanic spreading. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 99, 17791–17804. https://doi.org/10.1029/94JB00578.

Borgia, A., Tizzani, P., Solaro, G., Manzo, M., Casu, F., Luongo, G., Pepe, A., Berardino, P., Fornaro, G., Sansosti, E., 2005. Volcanic spreading of Vesuvius, a new paradigm for interpreting its volcanic activity. Geophys. Res. Lett. 32.

Champagnac, J.-D., Valla, P.G., Herman, F., 2014. Late-Cenozoic relief evolution under evolving climate: a review. Tectonophysics 614, 44–65. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2013.11.037.

Ciupagea, D., Pauca, M., Ichim, T., 1970. Geology of the Transylvanian Depression. Editura Academiei Republici Socialiste Romania, Bucharest.

Cotton, C.A., 1952. Volcanoes As Landscape Forms Whitcombe and Tombs (New Zealand).

Crisp, J.A., 1984. Rates of magma emplacement and volcanic output. J. Volcanol. Geotherm. Res. 20, 177–211. https://doi.org/10.1016/0377-0273(84)90039-8.

Csontos, L., Nagymarosy, A., Horváth, F., Kovac, M., 1992. Tertiary evolution of the Intra-Carpathian area: a model. Tectonophysics 208, 221–241.

Delaney, P.T., 1992. You can pile it only so high. Nature 357, 194–196. https://doi.org/10.1038/357194a0.

Demetrescu, C., Nielsen, S.B., Ene, M., Şerban, D.Z., Polonic, G., Andreescu, M., Pop, A., Balling, N., 2001. Lithosphere thermal structure and evolution of the Transylvanian Depression—insights from new geothermal measurements and modelling results. Phys. Earth Planet. Inter. 126, 249–267.

Downes, H., Seghedi, I., Szakács, A., Dobosi, G., James, D.E., Vaselli, O., Rigby, I.J., Ingram, G.A., Rex, D., Pécskay, Z., 1995. Petrology and geochemistry of late Tertiary/Quaternary mafic alkaline volcanism in Romania. Lithos 35, 65–81. https://doi.org/10.1016/0024-4937(95)91152-Y.

Erdei, B., Hably, L., Kázmér, M., Utescher, T., Bruch, A.A., 2007. Neogene flora and vegetation development of the Pannonian domain in relation to palaeoclimate and palaeogeography. Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol. 253, 115–140.

Favalli, M., Fornaciai, A., 2017. Visualization and comparison of DEM-derived parameters. Application to volcanic areas. Geomorphology 290, 69–84. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2017.02.029.

Favalli, M., Innocenti, F., Pareschi, M.T., Pasquarè, G., Mazzarini, F., Branca, S., Cavarra, L., Tibaldi, A., 1999. The DEM of Mt. Etna: geomorphological and structural implications. Geodin. Acta 12, 279–290.

Favalli, M., Karátson, D., Mazzarini, F., Pareschi, M.T., Boschi, E., 2009. Morphometry of scoria cones located on a volcano flank: a case study from Mt. Etna (Italy), based on high-resolution LiDAR data. J. Volcanol. Geotherm. Res. 186, 320–330. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2009.07.011.

Favalli, M., Karátson, D., Yepes, J., Nannipieri, L., 2014. Surface fitting in geomorphology—examples for regular-shaped volcanic landforms. Geomorphology 221, 139–149. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2014.06.009.

Fielitz, W., Seghedi, I., 2005. Late Miocene–Quaternary volcanism, tectonics and drainage system evolution in the East Carpathians, Romania. Tectonophysics 410, 111–136. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2004.10.018.

Francis, H., 1983. Magmaandsediment-11 Problems of Interpreting Palaeovolcanics Buried in the Stratigraphiccolumn 19.

Germa, A., Quidelleur, X., Labanieh, S., Lahitte, P., Chauvel, C., 2010. The eruptive history of Morne Jacob volcano (Martinique Island, French West Indies): geochronology, geomorphology and geochemistry of the earliest volcanism in the recent Lesser Antilles arc. J. Volcanol. Geotherm. Res. 198, 297–310.

Germa, A., Quidelleur, X., Labanieh, S., Chauvel, C., Lahitte, P., 2011. The volcanic evolution of Martinique Island: insights from K–Ar dating into the Lesser Antilles arc migration since the Oligocene. J. Volcanol. Geotherm. Res. 208, 122–135. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2011.09.007.

Germa, A., Lahitte, P., Quidelleur, X., 2015. Construction and destruction of Mont Pelée volcano: volumes and rates constrained from a geomorphological model of evolution. Journal of Geophysical Research: Earth Surface 120, 1206–1226. https://doi.org/10.1002/2014JF003355.

Gibbard, P.L., Lewin, J., 2009. River incision and terrace formation in the Late Cenozoic of Europe. Tectonophysics 474, 41–55.

Gislason, S.R., Arnorsson, S., Armannsson, H., 1996. Chemical weathering of basalt in Southwest Iceland; effects of runoff, age of rocks and vegetative/glacial cover. Am. J. Sci. 296, 837–907.

Grosse, P., Kervyn, M., 2018. Morphometry of terrestrial shield volcanoes. Geomorphology 304, 1–14. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2017.12.017.

Grosse, P., van Wyk de Vries, B., Petrinovic, I.A., Euillades, P.A., Alvarado, G.E., 2009. Morphometry and evolution of arc volcanoes. Geology 37, 651–654. https://doi.org/10.1130/G25734A.1.

Grosse, P., van Wyk de Vries, B., Euillades, P.A., Kervyn, M., Petrinovic, I.A., 2012. Systematic morphometric characterization of volcanic edifices using digital elevation models. Geomorphology 136, 114–131. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.06.001.

Grosse, P., Euillades, P.A., Euillades, L.D., van Wyk de Vries, B., 2014. A global database of composite volcano morphometry. Bull. Volcanol. 76, 784.

Grosse, P., Orihashi, Y., Guzman, S.R., Sumino, H., Nagao, K., 2018. Eruptive history of Incahuasi, Falso Azufre and El Condor Quaternary composite volcanoes, southern Central Andes. Bull. Volcanol. 80, 44. https://doi.org/10.1007/s00445-018-1221-5.

Hildenbrand, A., Gillot, P.-Y., Marlin, C., 2008. Geomorphological study of long-term erosion on a tropical volcanic ocean island: Tahiti-Nui (French Polynesia). Geomorphology 93, 460–481. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2007.03.012.

Hora, J.M., Singer, B.S., Wörner, G., 2007. Volcano evolution and eruptive flux on the thick crust of the Andean Central Volcanic Zone: 40Ar/39Ar constraints from Volcán Parinacota, Chile. Geol. Soc. Am. Bull. 119, 343–362.

Karátson, D., 1996. Rates and factors of stratovolcano degradation in a continental climate: a complex morphometric analysis for nineteen Neogene/Quaternary crater

remnants in the Carpathians. J. Volcanol. Geotherm. Res. 73, 65–78. https://doi.org/10.1016/0377-0273(96)00016-9.
Karátson, D., 2007. A Börzsönytől a Hargitáig—vulkanológia, felszínfejlődés, ősföldrajz. Typotex Kiadó, Budapest 463.
Karátson, D., Timár, G., 2005. Comparative volumetric calculations of two segments of the Carpathian Neogene/Quaternary volcanic chain using SRTM elevation data: implications for erosion and magma output rates, in: Thouret, J.C., Chester, D.K. (Eds.). Volcanic Landforms, Processes and Hazards, pp. 19–35.
Karátson, D., Thouret, J.-C., Moriya, I., Lomoschitz, A., 1999. Erosion calderas: origins, processes, structural and climatic control. Bull. Volcanol. 61, 174–193. https://doi.org/10.1007/s004450050270.
Karátson, D., Favalli, M., Tarquini, S., Fornaciai, A., Wörner, G., 2010. The regular shape of stratovolcanoes: a DEM-based morphometrical approach. J. Volcanol. Geotherm. Res. 193, 171–181. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2010.03.012.
Karátson, D., Telbisz, T., Woerner, G., 2012. Erosion rates and erosion patterns of Neogene to Quaternary stratovolcanoes in the Western Cordillera of the Central Andes: an SRTM DEM based analysis. Geomorphology 139, 122–135. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.10.010.
Karátson, D., Telbisz, T., Harangi, S., Magyari, E., Dunkl, I., Kiss, B., Jánosi, C., Veres, D., Braun, M., Fodor, E., 2013. Morphometrical and geochronological constraints on the youngest eruptive activity in East-Central Europe at the Ciomadul (Csomád) lava dome complex, East Carpathians. J. Volcanol. Geotherm. Res. 255, 43–56.
Karátson, D., Yepes, J., Favalli, M., Rodriguez-Peces, M.J., Fomaciai, A., 2016. Reconstructing eroded paleovolcanoes on Gran Canaria, Canary Islands, using advanced geomorphometry. Geomorphology 253, 123–134. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2015.10.004.
Karátson, D., Telbisz, T., Dibacto, S., Lahitte, P., Szakács, A., Veres, D., Gertisser, R., Jánosi, Cs, Timár, G., 2019. Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part II: magma output rates. Bull. Volcanol. 81. https://doi.org/10.1007/s00445-019-1287-8.
Kereszturi, G., Németh, K., Cronin, S.J., Agustín-Flores, J., Smith, I.E., Lindsay, J., 2013. A model for calculating eruptive volumes for monogenetic volcanoes—implication for the Quaternary Auckland Volcanic Field, New Zealand. J. Volcanol. Geotherm. Res. 266, 16–33.
Kervyn, M., Ernst, G.G.J., Carracedo, J.-C., Jacobs, P., 2012. Geomorphometric variability of "monogenetic" volcanic cones: evidence from Mauna Kea, Lanzarote and experimental cones. Geomorphology 136, 59–75.
Klein, C., 1975. Massif armoricain et bassin parisien: contribution à l'étude géologique et géomorphologique d'un massif ancien et de ses enveloppes sédimentaires: Normandie, Maine, Anjou, Touraine. Poitou septentrional et contrées adjacentes, Fondation Baulig.
Krige, D.G., 1951. A statistical approach to some basic mine valuation problems on the Witwatersrand. J. South. Afr. Inst. Min. Metall. 52, 119–139.
Lagabrielle, Y., Guivel, C., Maury, R.C., Bourgois, J., Fourcade, S., Martin, H., 2000. Magmatic–tectonic effects of high thermal regime at the site of active ridge subduction: the Chile Triple Junction model. Tectonophysics 326, 255–268.
Lahitte, P., Samper, A., Quidelleur, X., 2012. DEM-based reconstruction of southern Basse-Terre volcanoes (Guadeloupe archipelago, FWI): contribution to the Lesser Antilles Arc construction rates and magma production. Geomorphology 136, 148–164. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.04.008.
Lahitte, P., Dibacto, S., Karátson, D., Gertisser, R., Veres, D., 2019. Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part I: timing of lava dome activity. Bull. Volcanol. 81. https://doi.org/10.1007/s00445-019-1286-9.
Lavigne, F., Degeai, J.-P., Komorowski, J.-C., Guillet, S., Robert, V., Lahitte, P., Oppenheimer, C., Stoffel, M., Vidal, C.M., Surono, Pratomo, I., Wassmer, P., Hajdas, I., Hadmoko, D.S., de Belizal, E., 2013. Source of the great A.D. 1257 mystery eruption unveiled, Samalas volcano, Rinjani Volcanic Complex, Indonesia. Proc Natl Acad Sci USA 110, 16742. https://doi.org/10.1073/pnas.1307520110.
Le Friant, A., Harford, C.L., Deplus, C., Boudon, G., Sparks, R.S.J., Herd, R.A., Komorowski, J.C., 2004. Geomorphological evolution of Montserrat (West Indies): importance of flank collapse and erosional processes. J. Geol. Soc. 161, 147–160. https://doi.org/10.1144/0016-764903-017.
Leverington, D.W., Teller, J.T., Mann, J.D., 2002. A GIS method for reconstruction of late Quaternary landscapes from isobase data and modern topography. Comput. Geosci. 28, 631–639.
Lexa, J., Seghedi, I., Nemeth, K., Szakács, A., Konecny, V., Pécskay, Z., Fueloep, A., Kovacs, M., 2010. Neogene-Quaternary Volcanic forms in the Carpathian-Pannonian Region: a review. Central European Journal of Geosciences 2, 207–U75. https://doi.org/10.2478/v10085-010-0024-5.
Lisiecki, L.E., Raymo, M.E., 2005. A Pliocene-Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic δ18O records. Paleoceanography 20.
Louvat, P., Allègre, C.J., 1997. Present denudation rates on the island of Réunion determined by river geochemistry: basalt weathering and mass budget between chemical and mechanical erosions. Geochim. Cosmochim. Acta 61, 3645–3669. https://doi.org/10.1016/S0016-7037(97)00180-4.
Magyari, E.K., Veres, D., Wennrich, V., Wagner, B., Braun, M., Jakab, G., Karatson, D., Pal, Z., Ferenczy, G., St-Onge, G., Rethemeyer, J., Francois, J.-P., von Reumont, F., Schaebitz, F., 2014. Vegetation and environmental responses to climate forcing during the Last Glacial Maximum and deglaciation in the East Carpathians: attenuated response to maximum cooling and increased biomass burning. Quat. Sci. Rev. 106, 278–298. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2014.09.015.
Mason, P.R.D., Downes, H., Thirlwall, M.F., Seghedi, I., Szakács, A., Lowry, D., Mattey, D., 1996. Crustal assimilation as a major petrogenetic process in the East Carpathian Neogene and Quaternary continental margin arc, Romania. J. Petrol. 37, 927–959. https://doi.org/10.1093/petrology/37.4.927.
Mason, P.R.D., Seghedi, I., Szákacs, A., Downes, H., 1998. Magmatic constraints on geodynamic models of subduction in the East Carpathians, Romania. Tectonophysics 297, 157–176. https://doi.org/10.1016/S0040-1951(98)00167-X.
Matenco, L., Bertotti, G., 2000. Tertiary tectonic evolution of the external East Carpathians (Romania). Tectonophysics 316, 255–286.
Matenco, L., Krézsek, C., Merten, S., Schmid, S., Cloetingh, S., Andriessen, P., 2010. Characteristics of collisional orogens with low topographic build-up: an example from the Carpathians. Terra Nova 22, 155–165. https://doi.org/10.1111/j.1365-3121.2010.00931.x.
Merle, O., Borgia, A., 1996. Scaled experiments of volcanic spreading. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 101, 13805–13817. https://doi.org/10.1029/95JB03736.
Molnár, K., Harangi, S., Lukács, R., Dunkl, I., Schmitt, A.K., Kiss, B., Garamhegyi, T., Seghedi, I., 2018. The onset of the volcanism in the Ciomadul Volcanic Dome complex (Eastern Carpathians): eruption chronology and magma type variation. J. Volcanol. Geotherm. Res. 354, 39–56. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2018.01.025.
Németh, K., Palmer, J., 2019. Geological mapping of volcanic terrains: discussion on concepts, facies models, scales, and resolutions from New Zealand perspective. J. Volcanol. Geotherm. Res. 385, 27–45.
Ollier, C.D., Brown, M.J.F., 1971. Erosion of a young volcano in New Guiana. Z. Geomorphol. 15, 12–28.
Panaiotu, C.G., Pécskay, Z., Hambach, U., Seghedi, I., Panaiotu, C.E., Tetsumaru, I., Orleanu, M., Szakács, A., 2004. Short-lived quaternary volcanism in the Persani Mountains (Romania) revealed by combined K-Ar and paleomagnetic data. Geol. Carpath. 55, 333–339.
Pécskay, Z., Edelstein, O., Seghedi, I., Szakács, A., Marinel, K., Crihan, M., Bernad, A., 1995. K-Ar datings of Neogene-Quaternary calc-alkaline volcanic rocks in Romania. Acta Vulcanol. 7, 53–62.
Pécskay, Z., Lexa, J., Szakács, A., Seghedi, I., Balogh, K., Konecny, V., Zelenka, T., Kovacs, M., Poka, T., Fulop, A., Marton, E., Panaiotu, C., Cvetkovic, V., 2006. Geochronology of Neogene magmatism in the Carpathian arc and intra-Carpathian area. Geol. Carpath. 57, 511–530.
Peltz, S., Vajdea, E., Balogh, K., Pécskay, Z., 1987. Contributions to the chronological study of the volcanic processes in the Călimani and Harghita Mountains (East Carpathians, Romania). Compte Rendu de Institute de Geologie e Geofisique 72, 1.
Peresson, H., Decker, K., 1997. Far-field effects of Late Miocene subduction in the Eastern Carpathians: E-W compression and inversion of structures in the Alpine-Carpathian-Pannonian region. Tectonics 16, 38–56. https://doi.org/10.1029/96TC02730.
Persson, K.S., Garcia-Castellanos, D., Sokoutis, D., 2004. River transport effects on compressional belts: first results from an integrated analogue-numerical model. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 109.
Peulvast, J.-P., Claudino Sales, V., 2005. Surfaces d'aplanissement et géodynamique. Géomorphologie: Relief, Processus, Environnement 11, 249–274. https://doi.org/10.4000/geomorphologie.605.
Popescu, S.-M., 2002. Repetitive changes in Early Pliocene vegetation revealed by high-resolution pollen analysis: revised cyclostratigraphy of southwestern Romania. Rev. Palaeobot. Palynol. 120, 181–202.
Popescu, S.-M., 2006. Late Miocene and early Pliocene environments in the southwestern Black Sea region from high-resolution palynology of DSDP Site 380A (Leg 42B). Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol. 238, 64–77.
Rădulescu, D.P., Săndulescu, M., 1973. The plate-tectonics concept and the geological structure of the Carpathians. Tectonophysics 16, 155–161. https://doi.org/10.1016/0040-1951(73)90010-3.
Reiners, P.W., Ehlers, T.A., Mitchell, S.G., Montgomery, D.R., 2003. Coupled spatial variations in precipitation and long-term erosion rates across the Washington Cascades. Nature 426, 645–647. https://doi.org/10.1038/nature02111.
Ricci, J., Lahitte, P., Quidelleur, X., 2015a. Construction and destruction rates of volcanoes within tropical environment: examples from the Basse-Terre Island (Guadeloupe, Lesser Antilles). Geomorphology 228, 597–607. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2014.10.002.
Ricci, J., Quidelleur, X., Lahitte, P., 2015b. Volcanic evolution of central Basse-Terre Island revisited on the basis of new geochronology and geomorphology data. Bull. Volcanol. 77, 84.
Ruxton, B.P., McDougall, I., 1967. Denudation rates in northeast Papua from potassium-argon dating of lavas. Am. J. Sci. 265, 545–561.
Salvany, T., Lahitte, P., Nativel, P., Gillot, P.-Y., 2012. Geomorphic evolution of the Piton des Neiges volcano (Réunion Island, Indian Ocean): competition between volcanic construction and erosion since 1.4Ma. Geomorphology 136, 132–147. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.06.009.
Samper, A., Quidelleur, X., Lahitte, P., Mollex, D., 2007. Timing of effusive volcanism and collapse events within an oceanic arc island: Basse-Terre, Guadeloupe archipelago (Lesser Antilles Arc). Earth Planet. Sci. Lett. 258, 175–191. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.03.030.
Sandulescu, M., 1988. Cenozoic Tectonic History of the Carpathians (Chapter 2).
Schreiber, W., Unger, E., 2006. Some specific aspects of postvolcanic relief evolution in the Harghita Mountains. (in Hungarian with English abstract). Földtani Közlöny 136 (1), 285–298.
Seghedi, I., Balintoni, I., Szakács, A., 1998. Interplay of tectonics and neogene post-collisional magmatism in the intracarpathian region. Lithos 45, 483–497. https://doi.org/10.1016/S0024-4937(98)00046-2.
Seghedi, I., Downes, H., Vaselli, O., Szakács, A., Balogh, K., Pécskay, Z., 2004a. Post-collisional Tertiary–Quaternary mafic alkalic magmatism in the Carpathian–Pannonian region: a review. Tectonophysics 393, 43–62. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2004.07.051.
Seghedi, I., Szakács, A., Snelling, N.J., Pécskay, Z., 2004b. Evolution of the Neogene Gurghiu Mountains volcanic range (Eastern Carpathians, Romania), based on K-Ar geochronology. Geol. Carpath. 55, 325–332.

Seghedi, Downes, H., Harangi, S., Mason, P.R.D., Pécskay, Z., 2005a. Geochemical response of magmas to Neogene-Quaternary continental collision in the Carpathian-Pannonian region: a review. Tectonophysics 410, 485–499. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2004.09.015.

Seghedi, Szakács, A., Pécskay, Z., Mason, P.R.D., 2005b. Eruptive history and age of magmatic processes in the Călimani volcanic structure (Romania) 10.

Seghedi, I., Mațenco, L., Downes, H., Mason, P.R.D., Szakács, A., Pécskay, Z., 2011. Tectonic significance of changes in post-subduction Pliocene–Quaternary magmatism in the south east part of the Carpathian–Pannonian Region. Tectonophysics 502, 146–157. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2009.12.003.

Seghedi, I., Mirea, V., Popa, R.-G., Szakács, A., 2019. Tectono-magmatic characteristics of post-collisional magmatism: case study East Carpathians, Călimani-Gurghiu-Harghita volcanic range. Phys. Earth Planet. Inter. 293, 106270. https://doi.org/10.1016/j.pepi.2019.106270.

Simon-Coinçon, R., 1989. Le rôle des paléoaltérations et des paléoformes dans les socles: l'exemple du Rouergue (Massif Central français) (Centre de géologie générale et minière).

Slingerland, R., Furlong, K.P., 1989. Geodynamic and geomorphic evolution of the Permo-Triassic Appalachian Mountains. Geomorphology 2, 23–37.

Smith, S.G., Wegmann, K.W., Ancuta, L.D., Gosse, J.C., Hopkins, C.E., 2016. Paleotopography and erosion rates in the central Hangay Dome, Mongolia: landscape evolution since the mid-Miocene. J. Asian Earth Sci. 125, 37–57. https://doi.org/10.1016/j.jseaes.2016.05.013.

Sturt, B.A., Dalland, A., Mitchell, J.L., 1979. The age of the sub Mid-Jurassic tropical weathering profile of Andoya, northern Norway, and the implications for the late Palaeozoic palaeography in the North Atlantic region. Geol. Rundsch. 68, 523–542.

Suc, J.-P., 1984. Origin and evolution of the Mediterranean vegetation and climate in Europe. Nature 307, 429.

Szabó, C., Harangi, S., Csontos, L., 1992. Review of Neogene and Quaternary volcanism of the Carpathian-Pannonian region 14.

Szakács, A., Krézsek, C., 2006. Volcano–basement interaction in the Eastern Carpathians: explaining unusual tectonic features in the Eastern Transylvanian Basin, Romania. J. Volcanol. Geotherm. Res. 158, 6–20. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2006.04.012.

Szakács, A., Seghedi, I., 1995. The Călimani -Gurghiu-Harghita volcanic chain, East Carpathians, Romania: Volcanological features. Acta Vulcanol 7, 145–153.

Szakács, A., Seghedi, I., 1996. Volcaniclastic sequences around andesitic stratovolcanoes, East Carpathians, Romania. Romanian Journal of Petrology 77, 1–55.

Szakács, A., Seghedi, I., 2000. Large volume volcanic debris avalanche in the East Carpathians, Romania. Volcaniclastic rocks, from magmas to sediments, Gordon Breach Science Publishers, Amsterdam, The Netherlands 131–151.

Szakács, A., Seghedi, I., Pécskay, Z., 1993. Peculiarities of South Harghita Mts as a Terminal Segment of the Carpathian Neogene to Quaternary Volcanic Chain (Editura Academiei Române).

Szakács, A., Ioane, D., Seghedi, I., Rogobete, M., Pécskay, Z., 1997. Rates of migration of volcanic activity and magma output along the Calimani-Gurghiu-Harghita volcanic range, East Carpathians, Romania. Prz. Geol. 45, 1106.

Szakács, A., Pécskay, Z., Gál, Á., 2018. Patterns and trends of time–space evolution of Neogene volcanism in the Carpathian–Pannonian region: a review. Acta Geodaet. Geophys. 53, 347–367.

Székely, B., Karátson, D., 2004. DEM-based morphometry as a tool for reconstructing primary volcanic landforms: examples from the Börzsöny Mountains, Hungary. Geomorphology 63, 25–37. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2004.03.008.

Tari, G., Dövényi, P., Dunkl, I., Horváth, F., Lenkey, L., Stefanescu, M., Szafián, P., Tóth, T., 1999. Lithospheric structure of the Pannonian basin derived from seismic, gravity and geothermal data. Geol. Soc. Lond., Spec. Publ. 156, 215–250.

Thouret, J.-C., 1999. Volcanic geomorphology—an overview. Earth Sci. Rev. 47, 95–131. https://doi.org/10.1016/S0012-8252(99)00014-8.

Thouret, J.-C., Oehler, J.-F., Gupta, A., Solikhin, A., Procter, J.N., 2014. Erosion and aggradation on persistently active volcanoes—a case study from Semeru Volcano, Indonesia. Bull. Volcanol. 76, 857.

Traverse, A., 1978. Palynological analysis of DSDP Leg 42B (1975) cores from the Black Sea. Initial Report DSDP 42, 993–1016.

Tucker, G.E., Hancock, G.R., 2010. Modelling landscape evolution. Earth Surf. Process. Landf. 35, 28–50.

Vidal, V., Bonneville, A., 2004. Variations of the Hawaiian Hot Spot Activity Revealed by Variations in the Magma Production Rate. https://doi.org/10.1029/2003JB002559.

Wadge, G., 1982. Steady state volcanism: evidence from eruption histories of polygenetic volcanoes. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 87, 4035–4049. https://doi.org/10.1029/JB087iB05p04035.

Wadge, G., 1984. Comparison of volcanic production rates and subduction rates in the Lesser Antilles and Central America. Geology 12, 555–558.

Weiss, A., 2001. Topographic position and landforms analysis. Poster Presentation, ESRI User Conference, San Diego, CA.

White, S.M., Crisp, J.A., Spera, F.J., 2006. Long-term volumetric eruption rates and magma budgets. Geochem. Geophys. Geosyst. 7. https://doi.org/10.1029/2005GC001002.

Wooller, L., van Wyk de Vries, B., Murray, J.B., Rymer, H., Meyer, S., 2004. Volcano spreading controlled by dipping substrata. Geology 32, 573. https://doi.org/10.1130/G20472.1.

Wright, R., Garbeil, H., Baloga, S.M., Mouginis-Mark, P.J., 2006. An assessment of shuttle radar topography mission digital elevation data for studies of volcano morphology. Remote Sens. Environ. 105, 41–53.

Yokoyama, R., Shirasawa, M., Pike, R.J., 2002. Visualizing Topography by Openness: A New Application of Image Processing to Digital Elevation Models.

Zernack, A.V., Cronin, S.J., Neall, V.E., Procter, J.N., 2011. A medial to distal volcaniclastic record of an andesite stratovolcano: detailed stratigraphy of the ring-plain succession of south-west Taranaki, New Zealand. Int. J. Earth Sci. 100, 1937–1966.

Supplementary material

A: Method

A1. K-Ar ages by unspiked Cassignol–Gillot technique

A1.1. Sample Preparation

Hand-size fresh blocks were sampled from the inner part of lava rocks and, as much as possible, from the core of jointed parts to minimize the risk of alteration. After a careful petrographic examination of thin sections, the groundmass was separated for K-Ar analyses. Depending of the groundmass and crystal respective grain-size, lavas were crushed and sieved either at 62.5–125μm or at 125–250 μm. Based on densitometric separation with heavy liquids (bromoform), grains constituted of pure mineral phase (pyroxene, amphibole, biotite, oxides or plagioclase) were removed from the groundmass as these phases may have crystallized earlier and deeper in the magma chamber (Dalrymple and Moore, 1968). Generally, in such cases, they are not representative of the age of eruption and may carry significant inherited excess argon (Dalrymple and Moore, 1968; Ozawa et al., 2006; Lahitte et al., 2019). Narrow density spans (typically 0.05 of range of density) have been achieved to select the freshest part of the groundmass and eliminate the fraction with a lower density which potentially results from alteration and contains hydrothermal products (clay, sulphur, carbonate, zeolitization, salt containing chlorine, an isobar of argon). The separation was refined with a magnetic separator to remove the few grains of nonmagnetic minerals (such as plagioclases) potentially remaining within the magnetic groundmass, as their respective ranges of density overlap. The homogeneity of groundmass fraction was checked under a binocular and independent potassium and argon measurements were then performed at the Laboratoire GEOPS (Université de Paris-Sud, Orsay, France).

A1.2. K-content measurement

Following dissolution by a mixture of hydrofluoric, nitric and perchloric acids to break or destabilise the silicate network, potassium (K) was measured by an Agilent 240 Series AA flame absorption spectrometer. Signal intensity was converted into K content using a well-defined calibration curve obtained from solutions with K concentrations of 1.0, 1.2, 1.4, 1.6, 1.8 and 2.0 ppm made from a commercial K standard solution with a concentration of 1mg/ml. For each series of analyses, standards MDO-G (K=3.510%; Gillot et al., 1992) and BCR-2 (K=1.481%; (Downes et al., 1995) were considered to correct this calibration. Potassium measurements were duplicated to check the analyses' reproducibility. When the relative standard deviation for a given sample was higher than 1%, another replicate was performed to diminish the data dispersion.

A1.3. Argon measurements

Any K-Ar dating technique relies on the assumption that all the measured $^{40}Ar^*$ (radiogenic argon) comes from the in-situ radioactive decay of ^{40}K. Our field sampling and sample separation must be very rigorous in order to eliminate any potential risk of contamination by other source of contamination argon.

Argon was measured using a multi-collector 180° sector mass spectrometer as described in Gillot and Cornette, 1986. The measurement of the argon trapped in the grains needs 1) releasing of the gases contained in, typically, 80 mg of the molten sample and 2) isolating the argon from the other active gases by titanium-sponge cleaning. This technique has a detection limit of the radiogenic Ar content ($^{40}Ar^*$) of only 0.1% of the total extracted argon (Quidelleur et al., 2001). Details of the Ar isotopic analysis are given elsewhere (Cassignol and Gillot, 1982; Gillot and Cornette, 1986; Gillot et al., 2006). The amount of radiogenic argon (%$^{40}Ar^*$) is calculated from a direct comparison between the instrumental $^{40}Ar/^{36}Ar$ sample ratio and the instrumental $^{40}Ar/^{36}Ar$ atmospheric ratio at identical pressure to minimize the effect of mass-discrimination. This direct quantification (without using the ^{38}Ar spike contrarily to the

"conventional" K-Ar technique) is made possible due to the very stable analytical conditions. Since only two argon isotopes (^{40}Ar and ^{36}Ar) are measured for the sample (1st step), the atmospheric correction (2nd step) and the electric signals calibration (3rd), no mass discrimination correction is required with this technique. Ar-contents were also analysed at least twice to obtain a reproducible value within the range of uncertainties. The decay constants used are from Steiger and Jäger (1977) .

The more abundant the radiogenic $\%^{40}Ar^*$, the lower the uncertainty on the age; therefore, the average age and its 1σ uncertainty have been calculated by weighting each independent age measurement with its amount of $\%^{40}Ar^*$.

A2. DEM-based volumetry calculations

A2.1. Modelling the pre-volcanic basal surface

Estimating volcano volume requires to get the surface of its basement prior to the beginning of its construction (the so-called pre-volcanic basal surface, PVBS). Consequently, the (slightly overlapping) volcanoes were reconstructed in chronological order to consider, when necessary, the volcano grew on the flank of an older one. However, the definition of the PVBS is mostly based on the interpolation of the elevation of the basement surface observed at the boundaries of the volcano. Such boundaries can be delimited from field observations, accurate geological maps or by using automatic method such as MORVOLC (Grosse et al., 2009, 2012). In the study area, most volcanic edifices, especially those in Gurghiu and Harghita Mts, are surrounded to the W by volcaniclastic aprons (Szakács and Seghedi, 1990) characterized by their convex form and their resistance to erosion and to the E by uplifted Cretaceous flysch. In contrast, in the Călimani Mts very few aprons were identified (mostly in the western part of Moldovanul edifice, **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**B) and most of the boundary elevations represent the elevated Crystalline-Mesozoic belt of the East Carpathians (Szakács and Seghedi, 1995). Elevation of DEM cells belonging to those selected features interpreted as representative of the paleo-altitude of the pre-volcanic basement were

extracted and interpolated by ordinary kriging to generate the PVBS and the associated map of uncertainty.

A2.2. Volume, area, growth and erosion rates calculations

The volume of construction (V_C) and volume of erosion (V_E), are calculated by integrating the difference between the upper and lower surface over the area covered by the given edifice. For the constructional volume, the difference considered (ΔZ_C) is between the modelled surface (Z_{SV}) and the pre-volcanic basal surface (Z_{PVBS}):

$$\Delta Z_C = Z_{SV} - Z_{PVBS}$$

In the same way, eroded volume integrates the difference (ΔZ_E) between the pre-erosional volcanic surface (Z_{SV}) and the current topography (Z_{DEM}):

$$\Delta Z_E = Z_{SV} - Z_{DEM}$$

In the same way, uncertainties of construction and erosion (σV_C and σV_E, respectively) are calculated as the integration over the whole volcano surface from the uncertainties of the considered differences ($\sigma \Delta Z_C$ and $\sigma \Delta Z_E$, respectively), each uncertainty being defined as follows:

$$\sigma \Delta Z_X = \text{sqrt} (\sigma Z_{SV_i}^2 + \sigma Z_{Surf_inf}^2)$$

where σZ_{SV_i} is the uncertainty of the pre-erosional volcanic surface of the i^{th} volcano and σZ_{Surf_inf} is the uncertainty of the considered inferior surface. In the case of eroded volume ($\sigma \Delta Z_E$ calculation), σZ_{Surf_inf} is simply the uncertainty of the current topography (Z_{DEM}). In the case of constructed volumes ($\sigma \Delta Z_C$ calculation), σZ_{Surf_inf} values are the uncertainties of the surface above which each cell of the i^{th} modelled volcano is located: either σZ_{PVBS} or σZ_{SV_j}, depending on whether the volcano was constructed above the pre-volcanic basal surface or above an older volcano.

From these volume quantifications, we next compute the degree of denudation (D_{Den} in %), a parameter that estimates the proportion of volcano lost by dismantling process:

$$D_{Den} = V_E / V_C$$

with (V_E) the eroded volume and (V_C) the constructed one. This parameter provides a morphometric tool to constrain the behaviour of dismantling (erosive) processes through time. Indeed, at t=0, the D_{Den} (0) =0, whereas at t =infinite the D_{Den} has to tend asymptotically toward 100%. Moreover, considering that, variation of volume V'(t) is related to the volume of the volcano by

$$V'(t) = -a \times V(t)$$

with "a" being a constant defining the efficiency of the erosion (a=0.024 Ma^{-1}), we obtain a volume at time (t) by resolving the first order differential equation as:

$$V(t) = V_C \times \exp^{(-a \times t)}$$

Based on $D_{Den} = V_E / V_C$, the D_{Den} at time (t) is then defined as: $D_{Den}(t) = V_E / V_C = (V_C - V(t))/V_C$

$$D_{Den}(t) = 1 - \exp^{(-a \times t)}$$

Growth rates (GR) is computed as the ratio between the volume of construction (V_C) and the lifespan ($\Delta t = Age_{Beginning} - Age_{Ending}$) of the given volcano:

$$GR = V_C / \Delta t$$

Its associated uncertainty σ_{GR} (in m/Ma) is computed as:

$$\sigma_{GR} = GR \times sqrt\left((\sigma V_C / V_C)^2 + (\sigma \Delta t / \Delta t)^2 \right)$$

where $\sigma\Delta T$ is the uncertainty of the lifespan of activity defined by:

$$\sigma\Delta t = sqrt\left(\sigma Age_{Beginning}^2 + \sigma Age_{Ending}^2\right)$$

In the same way, since erosion occurs since the end of the activity, i.e. in a time interval corresponding to the age of the volcano, erosion rate (ER) is computed as the ratio between the average loss of altitude of the volcano ($\Delta Z_{E_mean} = V_E$ / Area) and the termination of the volcanic activity (Age_{Ending} ; defined by the youngest K/Ar age obtained):

$$ER = \Delta Z_{E_mean} / Age_{Ending}$$

Similarly to GR uncertainty, the associated uncertainty σ_{ER} (in m / Ma) is:

$$\sigma_{ER} = ER \times sqrt\left((\sigma V_E / V_E)^2 + (\sigma Age_{Ending} / Age_{Ending})^2 \right)$$

B1. Result of pre-volcanic basement surface estimation

Pre-volcanic basal surface (PVBS) of Călimani and Gurghiu-Harghita has been obtained through interpolation by kriging (Figure. 1A). Uncertainties of this elevation estimation range between 5 to ~ 80 m and increase with respect to the distance to Cps (Figure. 1B). Elevations of PVBS increase eastward from 650 to 900 m in Călimani area (A-B cross section in Figure. 1A and 1C) and from 550 to 800 m in Gurghiu-Harghita segments (C-D cross section in Figure. 1A and 1D), confirming the westward dip of the basement topography as previously suggested (Szakács and Seghedi, 1995; Karátson and Timár, 2005).

B2. Impact of ellipticity on the fitting of volcano surface

To highlight the importance of considering volcano eccentricity in our reconstruction, Figure. 2 compares different models obtained with and without eccentricity parameters (Seaca-Tătarca volcano). Figure. 2A displays the CPs projection after having found the best parameters but without considering the eccentricity parameters (contour lines would be circular), equivalent to performing a simple elevation versus distance to the centre graph. Figure. 2C displays the same CPs but with additional adjustment of eccentricity parameters (contours lines would be elliptical). Comparison of the two models illustrates that the model generated only considering circular shape shows a larger scatter than the one obtained considering eccentricity (purple dots in Figure. 2A and 2B), i.e. the range of CPs elevation at a given distance, displayed by the gap between grey (minimal CP elevation) and yellow (maximal CP elevation) dots in Figure. 2C and 2D, is significantly reduced when eccentricity is adjusted. Numerically, the average dispersion of CPs elevation (relative to those of the best profile) decreased from 37 m to 28 m when considering eccentricity.

Figures captions

Figure. 1: Pre-volcanic basement surface elevation (**A**) and uncertainty (**B**) of the CGH area. **C**) Cross-section along the Călimani (AB) and sector Gurghiu (CD) sectors showing the irregularity of the PVBS.

Figure. 2: Modelling of the best fitting surface with all relevant parameters, example of Seaca-Tătarca volcano: **A**) CPs projection from the best eruptive centre position without consideration of the eccentricity parameters. **B**) Projection of CPs elevation only in case of no computation of eccentricity parameters: yellow, orange and grey are the max, mean and min elevation, red dots show the range of CPs elevation. **C**) Same as **A**) in case of additional adjustment of eccentricity parameters. **D**) Same as **B**) in case of computation of eccentricity parameters.

Table A1: New K-Ar dating results. For each sample, the mean age (in bold) is obtained by weighing by the amount of radiogenic argon (40Ar* (%)). NH =North Harghita; SH =South Harghita; G =Gurghiu; C=Călimani. Sample coordinates are projected using the Universal Transverse Mercator (UTM) projection (zone 35th N).

Sample code Dome Name	Rock type & location	Longitude (m)	Latitude (m)	Fraction Size (µm)	K%	40Ar* (in % of total 40Ar)	40Ar* $\times 10^{12}$ at/g	Age ± 1σ (Ma)		Mean age ± 1σ (Ma)	
17EC14	Dacite (Tuşnad Gorge)	411248.34	5111301.069	63-125	2.730	4,07	5.61	1.97	0.06		**Pilişca (SH)**
						4.10	5.75	2.02	0.06	**1.98±0.06**	
						4.18	5.55	1.95	0.05		
17EC15	Dacite (Tuşnad Gorge)	411371.626	5111815.125	125-250	2.841	11.39	6.18	2.08	0.04		
						9.87	6.36	2.14	0.04	**2.11±0.04**	
17EC11	Pyroxene andesite	388477.329	5132719.105	63-125	1.503	61.74	7.24	4.61	0.07		**Vârghiş edifice (NH)**
						62.04	7.25	4.61	0.07	**4.61±0.07**	
17EC09	Pyroxene andesite	390423.552	5143433.744	125-250	1.551	42.80	7.54	4.65	0.07		
						40.63	7.55	4.66	0.07	**4.65±0.07**	
17EC06	Pyroxene andesite	389497.309	5137475.602	125-250	1.932	77.38	9.67	4.79	0.07		
						79.13	9.68	4.79	0.07	**4.79±0.07**	
17EC10	Pyroxene andesite (Mădăraş summit)	391049.977	5144915.892	63-125	1.995	41.35	1.02	4.88	0.07		
						40.30	1.02	4.91	0.07	**4.89±0.07**	
17EC07	Pyroxene andesite	390205.909	5139881.503	125-250	1.326	39.82	7.07	5.10	0.07		
						43.53	6.98	5.04	0.07	**5.06±0.07**	
17EC08	Amphibole andesite	390874.966	5143062.219	63-125	2.373	22.09	13.56	5.46	0.08		
						18.11	13.63	5.49	0.08	**5.47±0.08**	
17EC02	Pyroxene andesite	368367.366	5170198.74	63-125	1.219	35.78	8.29	6.50	0.09		**Seaca-Tătarca (G)**
						32.34	8.22	6.45	0.09	**6.47±0.09**	
17EC01	Pyroxene andesite	360819.941	5169711.87	63-125	1.328	56.06	9.05	6.51	0.09		
						53.47	9.07	6.52	0.09	**6.52±0.09**	
17EC05	Pyroxene andesite	371299.847	5169112.925	125-250	1.517	77.14	10.48	6.60	0.09		
						67.20	10.50	6.61	0.09	**6.61±0.09**	
17EC04	Pyroxene andesite	365662.61	5175973.982	63-125	1.461	70.99	10.18	6.66	0.09		
						76.12	10.15	6.64	0.09	**6.65±0.09**	
17EC03	Pyroxene andesite	366918.949	5172977.744	125-250	1.193	41.79	8.47	6.78	0.10		
						32.82	8.50	6.81	0.10	**6.79±0.10**	
17KEL6	Px-Amph Andesite (Gura Haiti)	367485.616	5225415.255	125-250	1.680	57.99	14.71	8.36	0.12		**Călimani (C)**
						61.04	14.61	8.31	0.12	**8.33±0.12**	
17P-KEL6	Px-Amph Andesite (Gura Haiti)	367485.616	5225415.255	125-250	1.648	59.13	14.31	8.30	0.12		
						56.91	14.29	8.29	0.12	**8.30±0.12**	
17KEL5	Monzodiorite (Monzo Kofejto)	367358.616	5220187.078	125-250	2.755	51.30	23.78	8.27	0.12		
						44.59	23.66	8.23	0.12	**8.26±0.12**	
17KEL1	Dacite (Pietricelul)	365940.446	5217795.240	63-125	2.291	75.95	16.09	6.71	0.10		
						81.63	16.00	6.68	0.10	**6.69±0.10**	

Table A2: Model parameters of constructed volume of the CGH range. Each volcano can be seen in current shape on **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** and modelled one in **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**. All except Pilişca volcano modelled using ShapeVolc interpolation. Model type: function best defining the first order shape; Contour shape: location of the summit relatively to elliptical shape of the contour (focal or ellipse depending on whether the summit is located at the vertical of the focus or the centre of the elliptical contours); eccentricity of the elliptical contours; model uncertainty: average uncertainty of the elevation of the model; maximal (a.base.l) and average elevation (relatively to the pre-volcanic basal surface); extension (area) of volcano)

	Morphometric parameters							
Label and Volcanoes	Number of CP	Model type (surface fitting)	Contour shape	Eccentricity	Height (m) a.base.l	Model uncertainty (σZ_{SV}) (m)	Average elevation (ΔH_{Mean}) (m)	Area (km^2)
01 : Central Călimani (Kelemen)	2144	Exponential	Focal	0.23	2072	82	549	1078
02 : Moldoveanul (Moldovánka)	2727	Gaussian	Ellipse	0.37	1053	78	392	816
03 : Jirca (Nagy-Erdős)	523	Polynomial	Ellipse	0.68	1028	45	260	431
04 : Fâncel-Lăpuşna (Fancsal)	13360	Polynomial	Ellipse	0.62	1499	58	329	1078
05 : Bacta (Bakta)	494	Polynomial	Ellipse	0.61	490	41	142	79
06 : Seaca-Tătarca (Mezőhavas)	1875	Polynomial	Focal	0.37	1650	63	395	626
07 : Ciumani (Csomafalvi Délhegy)	1016	Polynomial	Focal	0..16	1284	60	352	191
08 : Borzont	382	Polynomial	Ellipse	0.8	493	45	222	97
09 : Şumuleu (Somlyó)	1447	Exponential	Focal	0.37	1073	80	285	243
10 : Ostoroş (Osztoróc)	807	Polynomial	Ellipse	0.59	1008	37	244	201
11 : Ivo-Cocoizaş (Fertő-tető)	1135	Polynomial	Ellipse	0.33	1104	57	280	197
12 : Râchitis (Csíkmagosa)	199	Gaussian	Ellipse	0.8	269	24	45	67
13 : Vârghiş (Madarasi-Hargita)	1621	Polynomial	Ellipse	0.63	1611	39	389	441
14 : Luci-Lazu (Nagykőbükk- Tetőfenyő)	864	Polynomial	Ellipse	0.2	843	74	284	381
15 : Cucu (Kakukkhegy)	640	Polynomial	Ellipse	0.49	586	64	253	115
16 : Pilişca (Piliske)	**Kriging interpolation**				709	51	210	95
17 : Ciomadul (Csomád)	__	__	__	__	__	__	__	__

Table A3: Volume of each lava domes of Ciomadul volcanic complex. All constructed volume (V_C, in km^3) and eroded volume (V_E, in km^3) are from study of Karátson et al. (2019). Erosion rate (ER; in m/Ma): defined by V_E divided by the area and the erosion duration (or volcano age) and degree of denudation (D_{Den}): proportion of volcano lost by dismantling processes (in %) have been deduced from previous volumes of Karátson et al., 2019).

Ciomadul lavas dome and peripherical domes	Age (Ma)	Constructed volume (km^3)	Eroded Volume (km^3)	Erosion rate (ER) (m /Ma)	Degree of Denudation (D_{Den})
Dealul Mare	0.8	0.30± 0.03	0.04	31±3	13%
Puturosu	0.7	0.07±0.01	0.01	30±3	14%
Haramul Mic	0.2	0.19±0.03	0.01	39±4	5%
Vf. Cetăţii	0.2	0.29±0.02	0.01	24±2	2%
Vf. Surduc	0.2	0.39±0.02	0.00	33±3	2%
Vf. Comloş	0.1	0.43±0.03	0.0	35±4	1%
Ciomadul Mare	0.1	2.90±0.15	0.03	31±3	1%
Haramul Mare	0.1	1.20±0.08	0.01	32±3	1%
Vf. Mohoş	0.1	0.10±0.02	0.00	31±3	2%
Piscul Pietros	0.1	0.34±0.03	0.00	29±3	1%

References

Cassignol, C., Gillot, P.-Y., 1982. Range and effectiveness of unspiked potassium-argon dating: experimental groundwork and applications, in: Numerical Dating in Stratigraphy. Odin G.S., pp. 159–179.

Dalrymple, G.B., Moore, J.G., 1968. Argon-40: Excess in Submarine Pillow Basalts from Kilauea Volcano, Hawaii. Science 161, 1132. https://doi.org/10.1126/science.161.3846.1132

Downes, H., Seghedi, I., Szakacs, A., Dobosi, G., James, D.E., Vaselli, O., Rigby, I.J., Ingram, G.A., Rex, D., Pecskay, Z., 1995. Petrology and geochemistry of late Tertiary/Quaternary mafic alkaline volcanism in Romania. Lithos 35, 65–81. https://doi.org/10.1016/0024-4937(95)91152-Y

Gillot, P.-Y., Cornette, Y., 1986. The Cassignol technique for potassium - argon dating, precision and accuracy - examples from the late Pleistocene to recent volcanics from southern Italy. Chemical Geology 59, 205–222.

Gillot, P.-Y., Cornette, Y., Max, N., Floris, B., 1992. Two Reference Materials, Trachytes Mdo-G and Ish-G, for Argon Dating (k-Ar and $^{40}Ar/^{39}Ar$) of Pleistocene and Holocene Rocks. Geostandards Newsletter 16, 55–60. https://doi.org/10.1111/j.1751-908X.1992.tb00487.x

Gillot, P.-Y., Hildenbrand, A., Lefevre, J.C., Albore-Livadie, C., 2006. The K/Ar dating method: principle, analytical techniques, and application to Holocene volcanic eruptions in southern Italy. Acta Vulcanol. 18, 55–66.

Grosse, P., van Wyk de Vries, B., Euillades, P.A., Kervyn, M., Petrinovic, I.A., 2012. Systematic morphometric characterization of volcanic edifices using digital elevation models. Geomorphology 136, 114–131. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.06.001

Grosse, P., van Wyk de Vries, B., Petrinovic, I.A., Euillades, P.A., Alvarado, G.E., 2009. Morphometry and evolution of arc volcanoes. Geology 37, 651–654. https://doi.org/10.1130/G25734A.1

Karátson, D., Timár, G., 2005. Comparative volumetric calculations of two segments of the Carpathian Neogene/Quaternary volcanic chain using SRTM elevation data: implications for erosion and magma output rates, in: Thouret, J.C., Chester, D.K. (Eds.), Volcanic Landforms, Processes and Hazards. pp. 19–35.

Lahitte, P., Dibacto, S., Karátson, D., Gertisser, R., Veres, D., 2019. Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part I: timing of lava dome activity. Bulletin of Volcanology 81. https://doi.org/10.1007/s00445-019-1286-9

Ozawa, A., Tagami, T., Kamata, H., 2006. Argon isotopic composition of some Hawaiian historical lavas. Chemical Geology 226, 66–72. https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2005.10.001

Quidelleur, X., Gillot, P.Y., Soler, V., Lefevre, J.C., 2001. K/Ar dating extended into the last millennium: application to the youngest effusive episode of the Teide volcano (Spain). Geophysical Research Letters 28, 3067–3070. https://doi.org/10.1029/2000GL012821

Steiger, R.H., Jäger, E., 1977. Subcommission on geochronology: Convention on the use of decay constants in geo- and cosmochronology. Earth and Planetary Science Letters 36, 359–362. https://doi.org/10.1016/0012-821X(77)90060-7

Szakács, A., Seghedi, I., 1995. The Călimani-Gurghiu-Harghita volcanic chain. East Carpathians.

Szakács, A., Seghedi, I., 1990. Quaternary dacitic volcanism in the Ciomadul massif (South Harghita Mts, East Carpathians, Romania), in: IAVCEI International Volcanological Congress. pp. 3–8.

Figure. 1

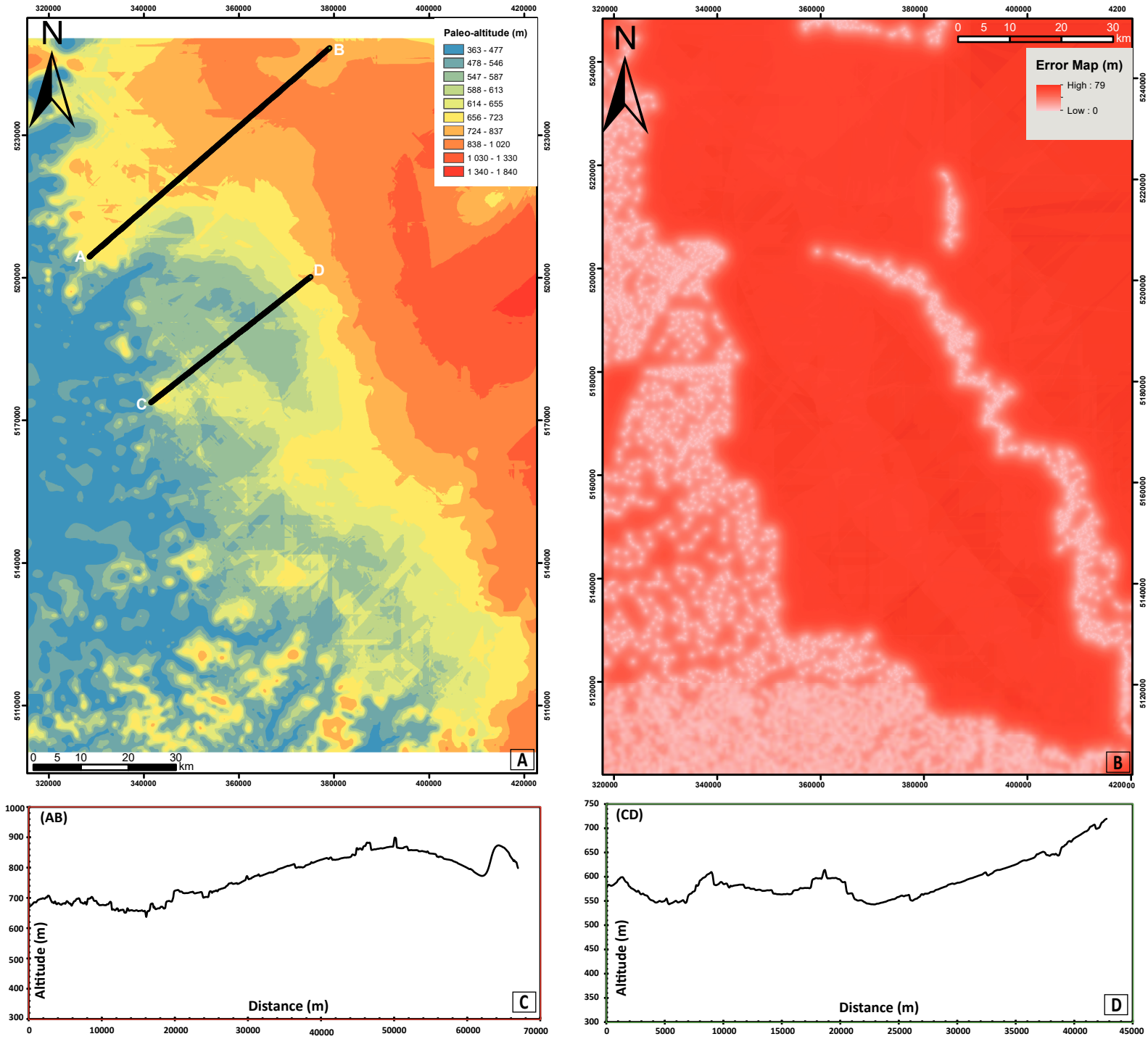
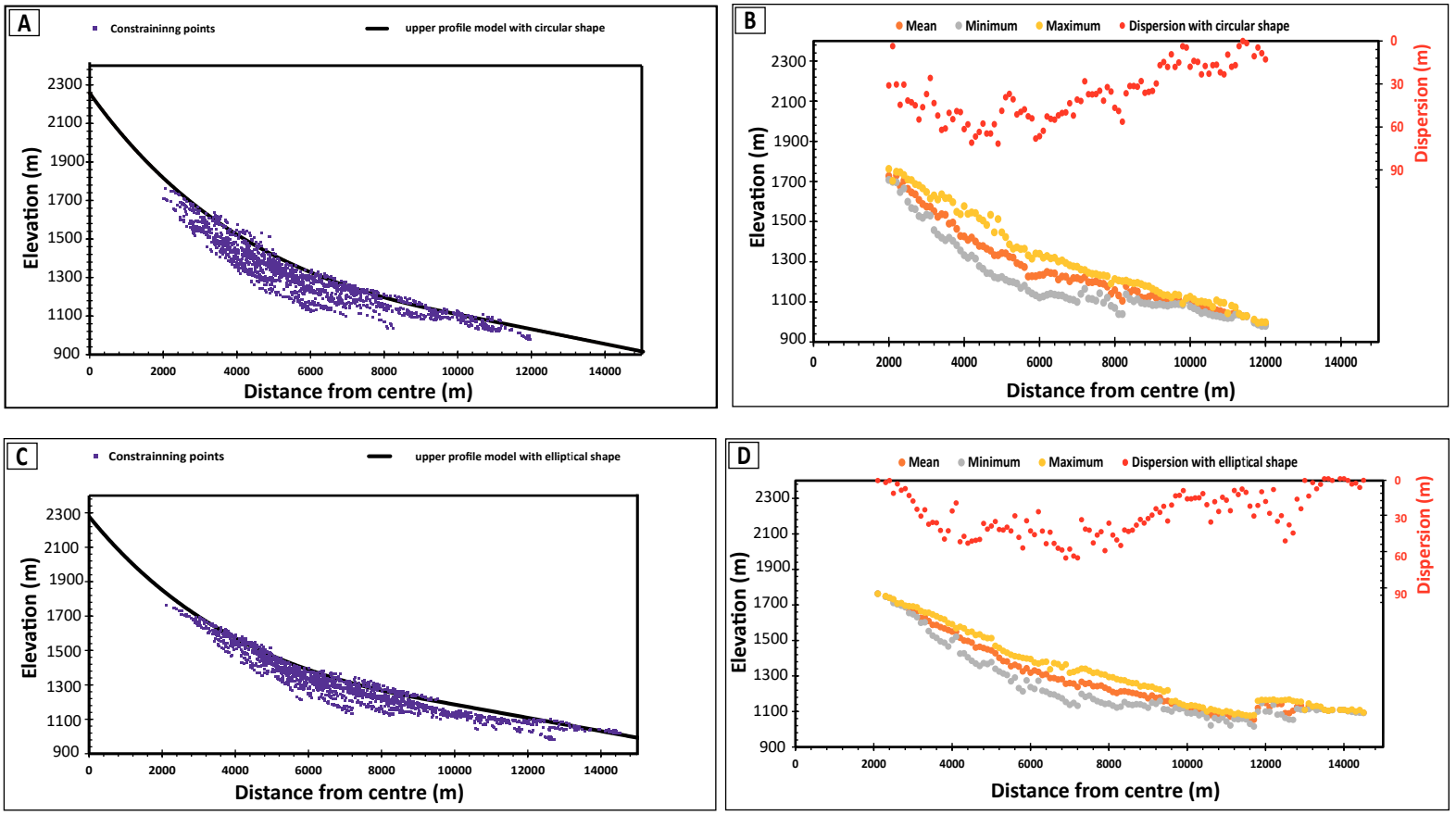

N
Paleo-altitude (m)
363 - 477
478 - 546
547 - 587
588 - 613
614 - 655
656 - 723
724 - 837
838 - 1 020
1 030 - 1 330
1 340 - 1 840
A
B
C
D
0 5 10 20 30
km
320000
340000
360000
380000
400000
420000
5230000
5200000
5170000
5140000
5110000
N
Error Map (m)
High : 79
Low : 0
0 5 10 20 30
km
5240000
5220000
5200000
5180000
5160000
5140000
5120000
B
(AB)
Altitude (m)
Distance (m)
C
(CD)
Altitude (m)
Distance (m)
D

Figure. 2


A
Constrainingg points
upper profile model with circular shape
Elevation (m)
Distance from centre (m)
B
Mean
Minimum
Maximum
Dispersion with circular shape
Dispersion (m)
Elevation (m)
Distance from centre (m)
C
Constrainning points
upper profile model with elliptical shape
Elevation (m)
Distance from centre (m)
D
Mean
Minimum
Maximum
Dispersion with elliptical shape
Dispersion (m)
Elevation (m)
Distance from centre (m)

Chapitre VI : Contraintes chronostratigraphiques des dépôts ignimbritiques et dômes de laves Miocène nord hongrois : Cas du champ volcanique de Bükkalja & du complexe volcanique de Börzsöny (Carpates Occidentale)

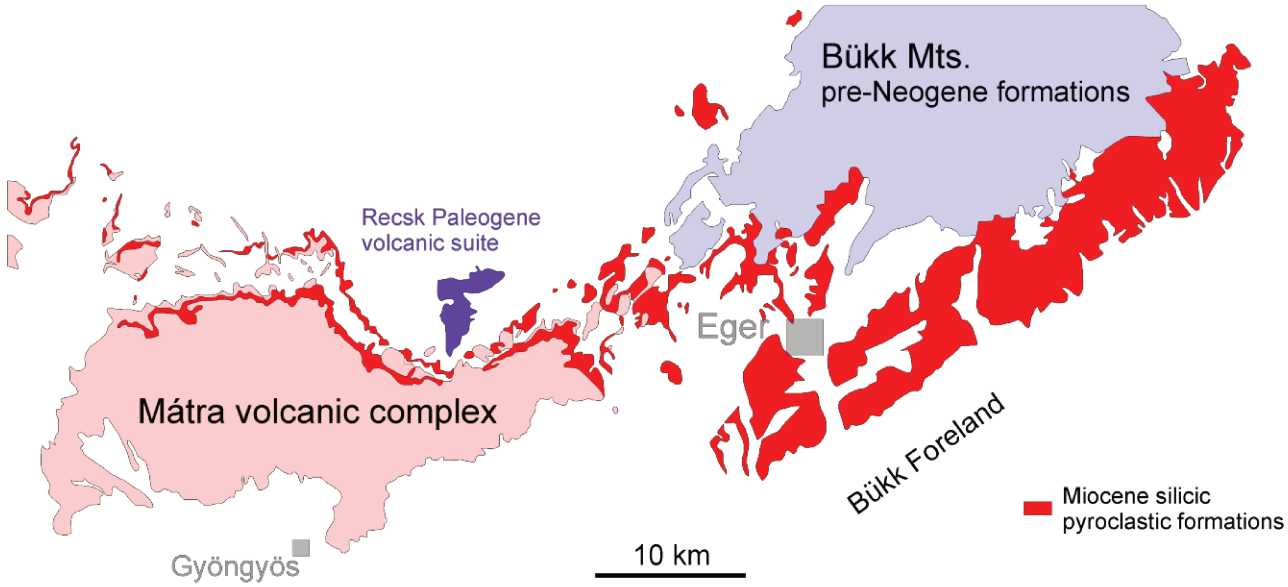


Fig. VI-1: Carte géologique à l'échelle 1/100 000 des dépôts pyroclastiques siliciques du Miocène des secteurs de Bükkalja et Mátra du nord de la Hongrie simplifié ; carte de base : maps.mbfsz.gov.hu. (D'après Márton et al.,2018)

SOMMAIRE

VI. 1 LES CHAMPS VOLCANIQUES DE BÜKK ET MATRA 263
VI. 1.1 Objectifs de cette étude *263*
VI. 1.2 Méthodes *263*
VI. 1.2.1 Datation K-Ar sur phase séparé : les biotites 263
VI. 1.3 Résultats *265*
VI. 1.3.1 Secteur de Bükkalja 265
VI. 1.3.2 A proximité du secteur de Mátra 266
VI. 1.4 Discussion *268*
VI. 1.4.1 Comparaisons des âges K-Ar et corrélations avec les mesures paléomagnétiques 268
VI. 1.4.1.1 Secteur avec des Polarités inverses du champ magnétique 268
VI. 1.4.1.2 Secteur avec des Polarités normales du champ magnétique 270
VI. 2 LE COMPLEXE DE BÖRZSÖNY 276
VI. 2.1 Méthodologie *276*
VI. 2.2 Résultats *277*
VI. 2.3 Discussion *280*
VI. 2.3.1 Comparaison 280

Cette partie de la chaîne des Carpates Pannoniennes (segment occidental) notamment le nord de la Hongrie (Fig. VI-2) a été marquée par un important volcanisme silicique. Ici, les premiers produits volcaniques étaient principalement représentés par de vastes dépôts de téphra siliciques au Miocène (Szabó et al., 1992; I. Seghedi et al., 2004a) et un peu plus tard, des dépôts de retombées pyroclastiques et de dépôts subordonnés ont été identifiés dans les monts Börzsöny, Mátra (Karátson et al., 2000, 2001) et dans la région volcanique de Bükk, (Márton et al., 2007; Seghedi et al., 1998). Ce volcanisme Miocène fut contemporain de la formation du bassin Pannonien pendant la phase d'extension maximale enregistrée (Horváth et Royden 1981; Harangi et al., 2005; Lukács et al., 2005; Harangi and Lenkey, 2007; Czuppon et al., 2012), représentant l'une des plus grandes périodes de recrudescence de dépôts d'ignimbrites au cénozoïque en Europe. Cependant, malgré l'importance de ce volcanisme pour l'histoire géotectonique régionale, les âges disponibles sont beaucoup trop mal contraints. En effet, les données K-Ar disponibles (Pantó, 1970; Balla and Korpás, 1980; Karátson, 1995; Márton and Pécskay, 1998; Karátson et al., 2000) suggèrent que le volcanisme s'est produit entre 21 et 13 Ma. Cependant, ces âges sont associés de grandes incertitudes ; Ce qui rend difficile de mieux contraindre leur stratigraphie.

Ainsi, l'accent mis dans les sections suivantes porte principalement sur la chronostratigraphie volcanique de ces ensembles via de nouvelles datations utilisant le chronomètre K-Ar tel que décrit au chapitre III.

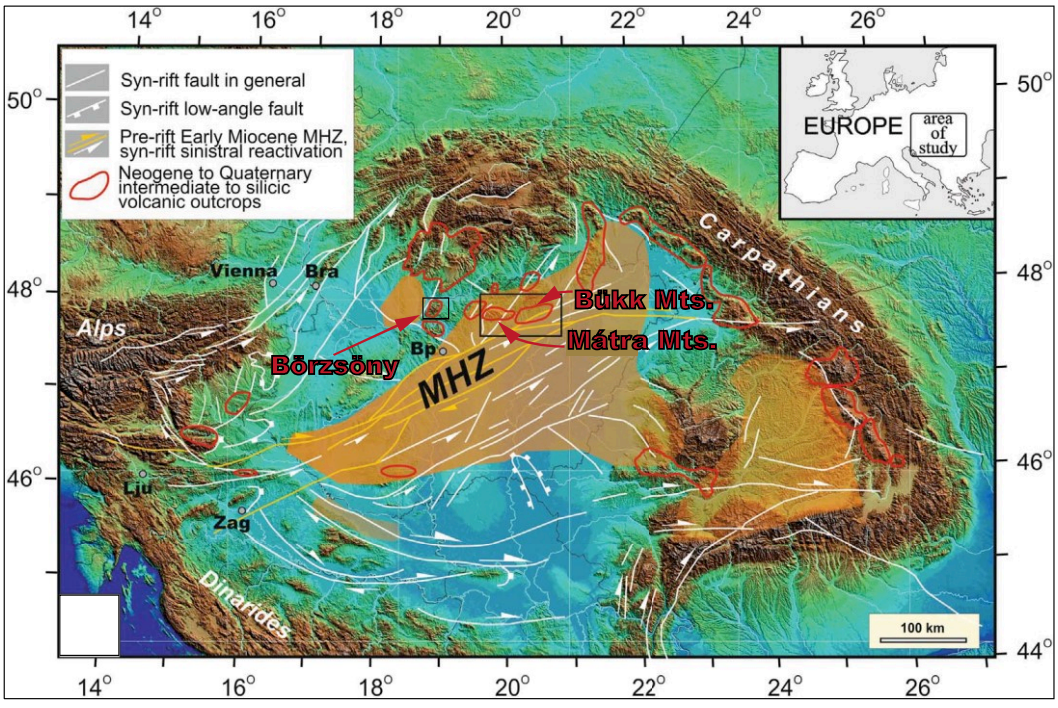


Fig. VI-2 : Simplified tectonic map of the Carpathian-Pannonian region and location of the study area (topographic map is modified after Horváth et al., 2006).

VI. 1 Les Champs volcaniques de Bükk et Mátra

VI. 1.1 Objectifs de cette étude

L'étude géochronologique corrélée aux données paléomagnétiques du champ volcanique de Bükkalja vise principalement à fournir un cadre temporel pour l'évolution volcanique ignimbritique de la région, où les données bio-stratigraphiques adéquates font défaut. Les échantillons pour lesquels les mesures paléomagnétiques sont disponibles ont été principalement prélevés pour les datations K-Ar. Le nombre total de sites échantillonnés est de 10 (Fig. VI-3). Les déterminations d'âge K-Ar ont été principalement effectuées sur des fractions monominérales (biotite) d'ignimbrites et de tuf de ponces. Les précédentes datations K-Ar indiquent que ce volcanisme ignimbritique du champ volcanique de Bükk s'est produit entre 21 et 13,5 Ma (±0.6 à 1.01) Ma respectivement. Cependant, compte tenu des incertitudes trop grandes associées à ces âges (±0.6 à 1.01 Ma), il n'est pas toujours facile de les situer précisément dans le temps et d'établir des corrélations avec les données paléomagnétiques. Cette étude vise donc à affiner ces âges dans un premier temps et, par la suite d'établir des corrélations avec les solides données du paléomagnétisme pour affiner la stratigraphie de ces éruptions.

VI. 1.2 Méthodes

VI. 1.2.1 Datation K-Ar sur phase séparé : les biotites

Des échantillons provenant des dépôts d'ignimbrite et des tufs de ponce ont été collectés pour des analyses géochronologiques :

- A l'est, au niveau du champ volcanique de de Bükk (Fig. VI-3), des dépôts ignimbritiques que l'on retrouve dans les localités d'Harsány, Tibolddaróc et Bogács ainsi que l'ignimbrite de Demjén ont été échantillonnés.
- A l'ouest, ce sont les secteurs de Sirok, Mátrabérc, Tar et Galaguta qui ont été échantillonnés (Fig. VI-3).

Lors de l'échantillonnage, nous avons pris le plus grand soin possible pour ne sélectionner que des échantillons frais non altérés et de récupérer des échantillons de différentes tailles. Une fois les échantillons validés sur le terrain, les déterminations K-Ar ont été effectuées sur des fractions de biotites séparées des ponces non altérées. Pour cela, des clastes (fragments) de ponce simple provenant de la même localité et du même horizon ont été utilisés.

Les échantillons collectés ont été broyés manuellement dans un mortier en agate en morceaux de tailles centimétriques ; puis, tamisés à intervalles réguliers pour éliminer la fraction très fine

(< 125 µm) et ne retenir que la fraction comprise entre 250-1000 µm. Par la suite, cette fraction a été lavée et séchée suivant le même protocole que décrit au chapitre III.

La séparation des biotites des autres minéraux présent dans les ponces a été réalisée en utilisant une combinaison de :

— (1) séparation aux liqueurs denses (diodométhane et ou du bromoforme ; voir chapitre III).

— (2) séparation manuelle à l'aide d'une feuille de papier inclinée car, vue la structure de phyllosilicate des biotites, elles ont tendance à rester accrochées alors que les autres minéraux mafiques potentiellement présents du fait d'un chevauchement de densité lors du tri aux liqueurs denses (pyroxènes et amphiboles), roulent beaucoup plus facilement.

— Enfin (3) Une sélection manuelle à l'aide d'une pince sous une loupe binoculaire est effectuée. Les biotites sélectionnées ont à nouveau été nettoyées à l'eau distillée pendant une quinzaine de minute pour éliminer les éventuels rebords et traces d'altération, puis séchés et datés selon le même protocole décrit au chapitre III.

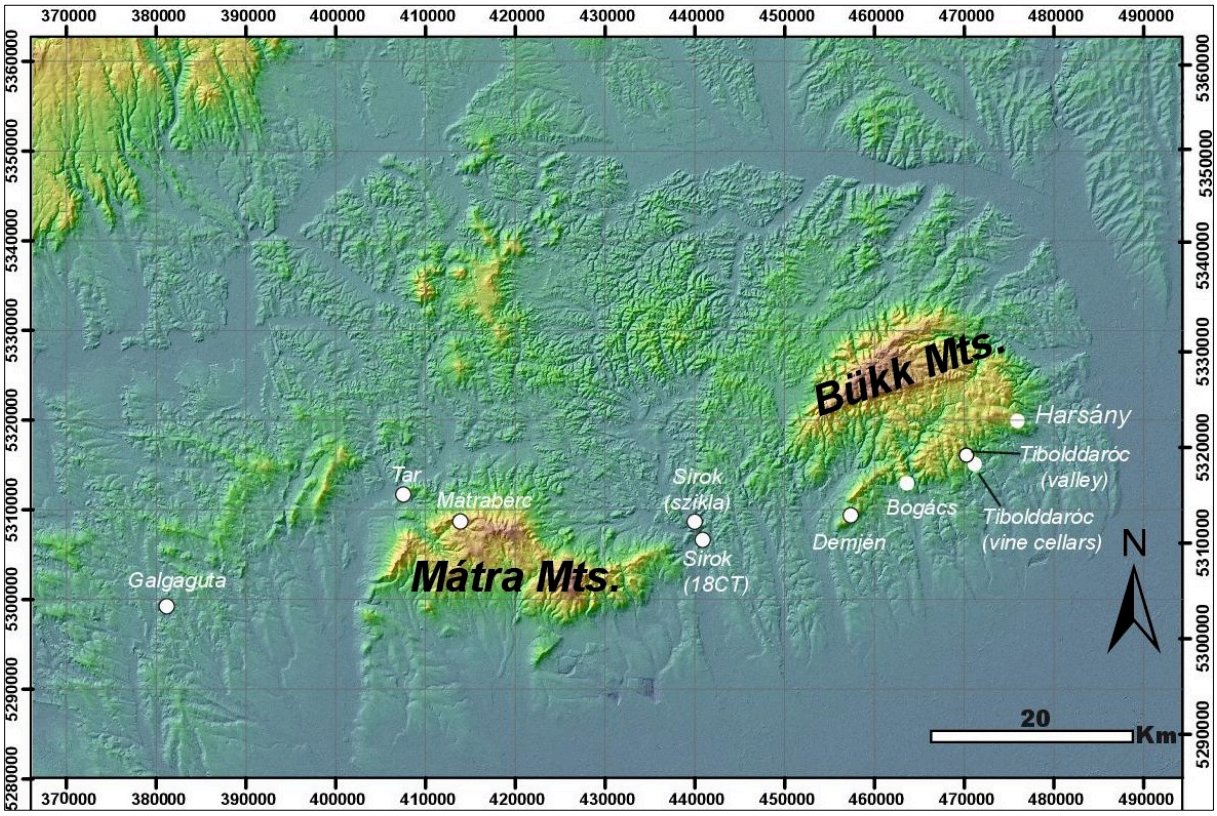


Fig. VI-3 : Les différentes localités où des échantilllons ont été prélévés au niveau des champs volcanique de Mátra et Bükk des Carpates occidentales.

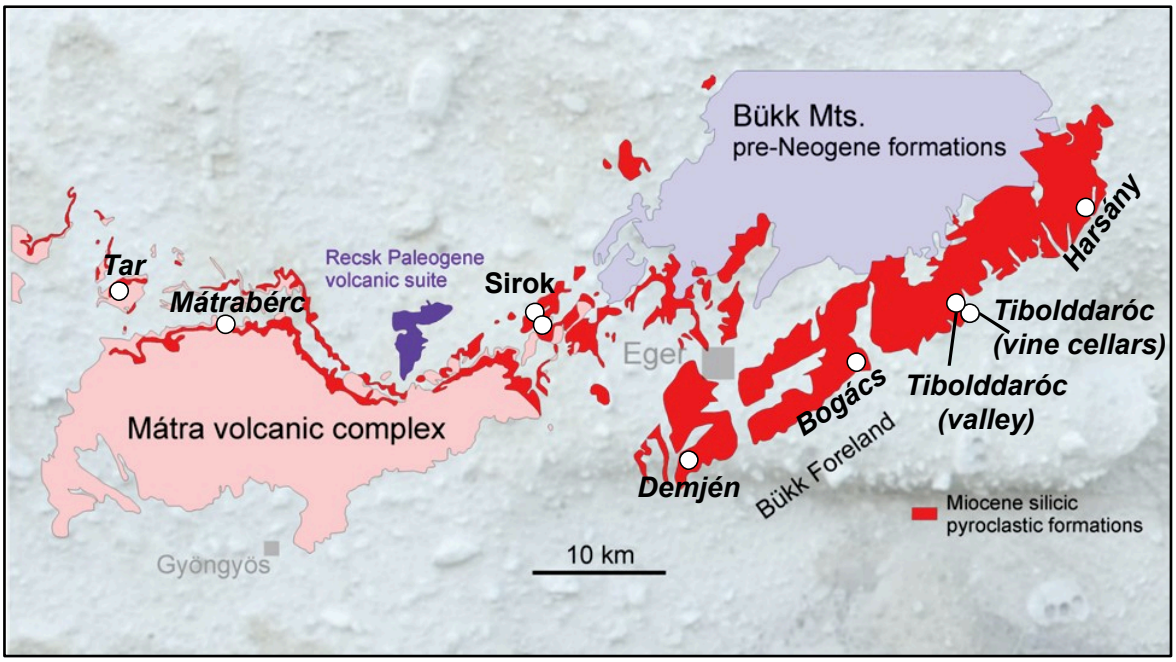


Fig. VI- 4 : Carte des dépôts pyroclastiques Miocène dans les secteurs de Mátra et le Bükk. Basé sur une carte géologique à l'échelle 1/100 000 de la Hongrie ; simplifié ; carte de base : maps.mbfsz.gov.hu. Modifié d'après Marton et al., 2018.

VI. 1.3 Résultats

Les biotites extraites des 10 échantillons et datées au cours de ce travail présentent des teneurs en potassium qui varient entre 5.01 à 6.96% et des teneurs en argon radiogénique de 13.35% à 61.42% (Table VI-1).

VI. 1.3.1 Secteur de Bükkalja

Ici, 7 échantillons ont été datés (Fig. VI-3 ; Table VI-1).

Au Sud-Ouest du champ volcanique de Bükk, au niveau de la carrière de Nagyeresztvény de Demjén caractérisé par des dépôts ignimbritiques rhyodacitique soudée, l'analyse minéralogique de l'échantillon 18DS a montré un assemblage de biotites, pyroxènes, plagioclase et oxydes. Avec des teneurs en K de biotites de 5.811%, un âge K-Ar de 13.13±0.20 Ma a été obtenu (Table VI-1).

Au nord de Demjén, deux échantillons 18CT (au niveau de la localité de SIROK) et 18WC05 (Apáca sziklák à proximité du château de Sirok), ont été prélevé (Fig. VI-3). Les mesures de K effectuées sur ces biotites montrent des teneurs de 6.10 et 5.45 % (voir discussion) (Table VI-1) traduisant une différence compositionnelle significative entre ces 2 échantillons. Les âges obtenus sont de 14.30±0.20 Ma pour le 18WC05 et 14.70±0.21 Ma Pour l'échantillon 18CT. Ces deux résultats autorisent de subdiviser leur mise en place en 2 évènements éruptifs : un premier évènement mis en place entre 14.1-14.5 Ma pour l'échantillon provenant de Apáca sziklák (18WC05) et un second évènement éruptif mis en place entre 14.5-14.9 Ma (18CT).

Ces résultats sont aussi cohérents avec la stratigraphie des dépôts avec le 18CT pour l'unité intermédiaire et le 18WC05 pour son unité supérieure (voir discussion ci-dessous).

L'échantillon 18WC01A prélevé dans les dépôts ignimbritiques dacitique consolidées de la carrière Abraham de Bogács (Table VI-1), montre des teneurs en K de 5.012% dans les biotites et un âge de 16.54±0.24 Ma (Fig. VI-3). Cet âge, le plus ancien dans le secteur, est en parfait accord avec les précédentes études et surtout avec les données paléomagnétiques (voir discussion).

Les échantillons 18WC02, 18WC03, 18WC04 (Table VI-1 et Fig. VI-3) quant à eux sont des dépôts ignimbritiques les plus jeunes de cette étude. Pour l'unité de Tibolddaróc, les âges des échantillons 18WC02 (Tibolddaróc ; Vine Cellars) et 18WC03 (au niveau de la vallée de Tibolddaróc ; Fig. VI-3), sont respectivement de 12,81 ± 0,20 et 13,15 ± 0,20 Ma. Ces deux âges sont compatibles à 1 sigma. Puisqu'ils représentent un même évènement volcanique, nous avons donc déduit un âge moyen de construction de l'unité (Tibolddaróc) de 12.98± 0,14 Ma. Notons aussi que les teneurs en potassium de ces 2 échantillons montrent des valeurs significativement différentes de 6.10 et 5.45 % (Table VI-1). Pour l'échantillon 18WC04 (Harsány ; Vine Cellars ; (Fig. VI-3), Les mesures de potassium sur biotites ont donné des teneurs en K de 6.61%. L'âge obtenu, 12,71 ± 0,18 Ma, est le plus jeune pour tous les dépôts ignimbritiques du champ volcanique de Bükk.

VI. 1.3.2 A proximité du secteur de Mátra

Trois échantillons ont été analysé : deux échantillons situés au Nord-Ouest des monts Matra (18Tar et 18MB) et un (18GAL) à l'Est de Mátra (Fig. VI-3 ;Table VI-1).

Les datations effectuées sur l'échantillon 18Tar provenant de la carrière abandonnée de tuf dacitique de Fehérkő, a montré des teneurs en K de 5.55% et un âge K-Ar de 13.24±0.19 Ma. Par contre, les datations effectuées au niveau des dépôts de tuf andésitiques de Mátrabérc (18MB) ont montré des teneurs en K sur biotite de 6.31% et un âge K-Ar de 14.05±0.20 Ma (Table VI-1). A environ 20 km à l'ouest des monts Mátra, est mis à jour dans la localité de Galgaguta (17GAL) un complexe de Tuf avec des teneurs en biotites de 5.50% et un âge de 14.08 ± 0.21 Ma.

Sample code & sectors	K%	Phases	$^{40}Ar^*$ (in % of total ^{40}Ar)	$^{40}Ar^* \times 10^{13}$ at/g	Age ± 1σ		Weighted mean age (Ma)
Harsány; Vine cellars: 18WC04	6.611	Biotite	30.62	8.81	12.71	0.18	**12.71 ±0.18**
			34.88	8.81	12.71	0.18	
Tibolddaróc ; Vine Cellars : 18WC02	6.096	Biotite	14.65	8.16	12.77	0.20	**12.81 ±0.20**
			13.35	8.21	12.84	0.21	
Tibolddaróc Valley : 18WC03	5.454	Biotite	18.44	7.47	13.06	0.20	**13.15 ±0.20**
			17.05	7.58	13.25	0.20	
SIROK (middle part) 18WC05	5.608	Biotite	48.70	8.40	14.28	0.20	**14.30 ±0.20**
			48.26	8.42	14.31	0.20	
Bogács Abrahamka 18WC01A	5.012	Biotite	59.51	8.81	16.77	0.24	**16.54 ±0.24**
			64.48	8.59	16.34	0.23	
Demjén ;18DS	5.811	Biotite	16.57	8.01	13.15	0.20	**13.13 ± 0.20**
			15.42	7.98	13.10	0.20	
Tar ; 18Tar	5.551	Biotite	25.36	7.68	13.20	0.19	**13.24 ± 0.19**
			25.63	7.72	13.27	0.19	
Mátrabérc ; 18MB	6.312	Biotite	29.13	9.35	14.12	0.21	**14.05± 0.20**
			30.47	9.25	13.98	0.20	
Galgaguta ; 17GAL	5.499	Biotite	18.37	8.12	14.08	0.21	**14.08 ± 0.21**
			17.93	8.12	14.08	0.21	
SIROK ; 18CT	6.962	Biotite	56.61	1.07	14.59	0.21	**14.70 ±0 .21**
			61.42	1.08	14.80	0.21	

Table VI-1 : New K-Ar dating results. For each sample, the mean age (in bold) is obtained by weighing by the amount of radiogenic argon (40Ar (%)).*

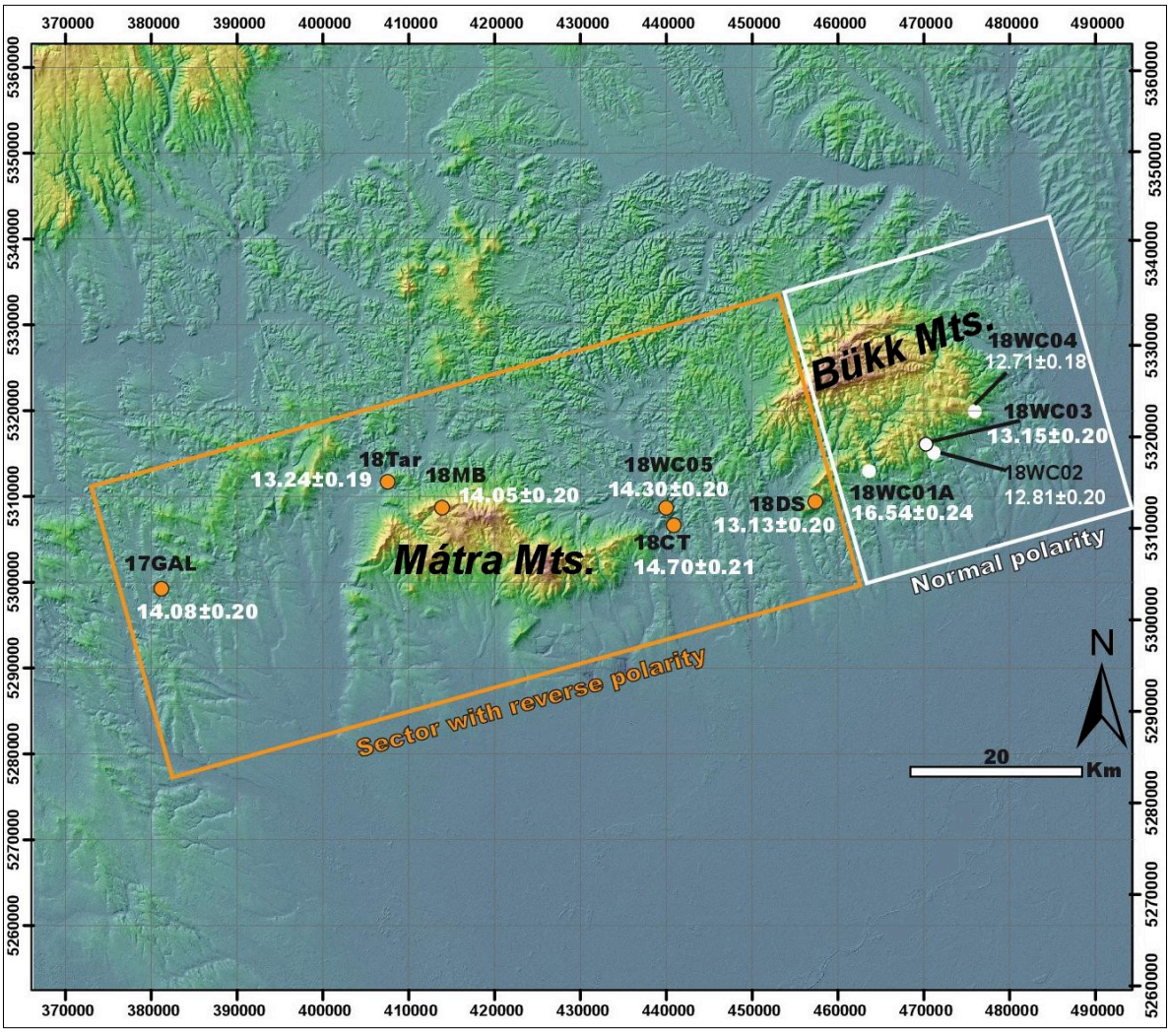


Fig. VI-5 : New unspiked K-Ar ages in (Ma). Orange frame represents sectors with reverse polarity; white frame represents sectors with normal polarity. Sample coordinates are projected using the Universal Transverse Mercator (UTM) projection (zone 35th N).

VI. 1.4 Discussion

VI. 1.4.1 Comparaisons des âges K-Ar et corrélations avec les mesures paléomagnétiques

Nos âges seront ici comparés à ceux de la littérature quand ils sont disponibles et par la suite, des corrélations entre ces nouveaux âges et les données paléomagnétiques disponibles (Table VI-2) seront établis pour discuter la chronostratigraphie de ces dépôts.

Rappelons que les secteurs étudiés ont expérimentés des rotations de blocs. Sur la base de données paléomagnétiques : les secteurs présentant des rotations de plus de 80 ° sont caractéristiques des formations de plus de 16.8 Ma. Tandis que les rotations de 30 à 35 ° sont caractéristiques des périodes comprises entre 14.7 et 16.8 Ma et des secteurs ne présentant pas de rotation significative, correspondent à des formations ayant des âges < 14,7 Ma. En se basant sur ces contraintes paléomagnétiques nous allons établir des corrélations entre nos résultats K-Ar et ces contraintes pour réévaluer la stratigraphie.

Les données paléomagnétiques des dépôts datées dans cette étude sont divisées en deux grands ensembles :

(1) Un ensemble représenté par 3 échantillons à proximité de Matra (17GAL, 18Tar et 18MB), ceux Demjén (18DS) et ceux de Sirok (18CT et 18WC05) caractérisé par des polarités inverses de champ magnétique (zone orange ; Fig.VI-5)

(2) Un second ensemble plus à l'Est (Table VI-2) avec des polarités normales (zone blanche ; Fig.VI-5).

VI. 1.4.1.1 Secteur avec des Polarités inverses du champ magnétique

Au niveau de Demjén, l'âge de 13.13 ± 0.20 Ma est compatible à 1 sigma avec l'âge de 13,84 ±0.94 (Márton and Pécskay, 1998) mais plus jeune que les âges obtenus sur zircons par le chronomètre (U-Th/He) 14.8±0.3 (Lukács et al., 2015). Toutefois, les mesures paléomagnétiques montrent une déclinaison de 174° (D= 174° et rotation < 8°; Table VI-2) dans la polarité inverse (Márton and Márton, 1996) correspondant à un secteur ne présentant aucune rotation significative (i.e. < 8°) traduisant que ce dépôt ignimbritique s'est mis en place après la seconde rotation de 30°. Plus la déclinaison magnétique est importante, plus l'âge de l'éruption l'ai aussi et vice versa. Ainsi, notre âge de 13.13 ± 0.20 Ma est en parfait accord avec les données paléomagnétiques. De plus ce nouvel âge contrairement à l'âge de 13,84 ±0.94 Ma proposé par (Márton and Pécskay, 1998) est 5 fois mieux contraints ; ce qui permet de mieux situer cette éruption dans le temps.

En couplant à nos âges K-Ar les mesures paléomagnétiques disponibles (Márton and Márton, 1996; Márton and Pécskay, 1998; Márton et al., 2007; Márton et al., in prep.), les âges d'éruptions ont été déduites avec les époques de polarité magnétique de (Gee and Kent, 2007).

Sur cette base, corrélant cet âge avec les données paléomagnétiques (Table VI-2) nous proposons un âge d'éruption correspondant à l'époque C5AAr (entre 13.14 et 13.30 Ma). En effet, cette époque est précédée et suivie pas des périodes où le champ présentait des polarités normales. Donc l'ignimbrite de Demjén ne peut être plus jeune que 13.13 Ma ni plus vielle que 13.30 Ma (Fig. VI-7).

Les 2 échantillons collectés dans la localité de Sirok (18CT et 18WC05) et datés respectivement à 14.70 ± 0,20 Ma et 14.3 ± 0,20 Ma sont différents aux marges d'erreur ce que les données de terrains confirment, permettant de distinguer deux éruptions distinctes dans cette localité. En effet, l'échantillon 18WC05 représente stratigraphiquement l'unité intermédiaire alors que le 18CT représente l'unité inférieure. Les mesures paléomagnétiques mesurées dans cette unité de Sirok présentent des valeurs de déclinaison de 174° dans la polarité inverse (Table VI-2) ; ce qui correspond à un secteur n'ayant pas connu de rotation significative (< ~10 °). Nous déduisons donc de ces données paléomagnétiques que ces 2 éruptions se sont mises en place après l'enregistrement des rotations.
L'unité supérieure (18WC05) de cette ignimbrite s'est formée sur la base des résultats K-Ar entre 14.1 et 14.5 Ma et, corrélée aux données paléomagnétiques, (Márton and Márton, 1996) nous déduisons un âge d'éruption autour de l'époque C5ACr (14.07-14.18 Ma ; Fig. VI-6). Elle correspond à l'unique période où l'on a enregistré un champ magnétique à polarité inverse dans la période.

L'échantillon 18CT quant à lui sur la seule base des résultats K-Ar s'est mis en place entre 14.50 et 14.90 Ma. Cependant, avec les données paléomagnétiques (rotation de ~10°), on peut alors restreindre sa période de mise en place à l'époque C5ADr (14.61-14.8 Ma) correspondant au champ magnétique de polarité inverse. Ainsi, avec les valeurs de déclinaison et rotation faibles, nous proposons donc que cette éruption a eu lieu sur une période relativement courte entre 14.61 et 14.80 Ma (Fig. VI-6).

Tout à l'ouest du champ volcanique de Bükk au niveau de Mátra (Fig. VI-5), le tuf andésitique 18MB a donné un âge de 14.05±0.20 Ma correspondant à une éruption de mise en place comprise entre 13.85 et 14.25 Ma. Un tel âge inférieur à 14.7 Ma correspondrait au secteur n'ayant pas subi de rotation significative. Les mesures de polarité de champs magnétique dans le secteur ont révélé une déclinaison de 192 dans une polarité inverse (Márton and Márton,

1996). Cette déclinaison correspond à une rotation inférieure à ~12 ° ; (Table VI-2) donc, correspond bel et bien à l'unité supérieure. Sur cette base, en couplant le résultat K-Ar de cette étude aux mesures paléomagnétiques on déduit que l'éruption correspond à l'époque C5ACr (14.07-14.18 Ma) intercalé entre 2 grandes périodes où l'on a enregistré des polarités normales du champs magnétiques. Ainsi, l'éruption de tufs andésitiques de Mátrabérc s'est mise en place sur une période relativement courte entre 14.07 et 14.18 Ma (Fig. VI-6).

Au niveau de la carrière abandonnée de tuf dacitique de Fehérkő 18Tar, décrite sur la base de sa composition lithologique comme similaire aux ignimbrites plus jeunes de l'unité supérieure par Harangi et al. 2005), l'âge de 13.24±0.20 Ma est en accord aux données paléomagnétiques qui situent l'unité supérieure autour des âges < 14.7 Ma (Márton and Pécskay, 1998). En effet, les mesures du paléomagnétisme montrent une déclinaison de 195 dans la polarité inverse correspondant à une rotation < 15 ° (Table VI-2 ; Márton et al., 2007). En couplant cet âge aux données paléomagnétiques, cette formation se serait mise en place au cours de l'époque C5AAr (13.14-13.30 Ma ; Fig. VI-6) ce qui réduit la période d'éruption à 13.14-13.30 Ma (Fig. VI-6).

Enfin, l'échantillon 17GAL à environ 20 km à l'ouest des monts Mátra, avec un âge de 14.08 ± 0.21 Ma est également compatible avec les données du champ magnétique appartenant à un secteur dont la rotation < 30 ° (Márton and Márton, 1996) dans la polarité inverse. En couplant notre âge K-Ar aux données paléomagnétiques, nous concluons que cette éruption a eu lieu au cours de l'époque C5ACr (14.07-14.18 Ma) intercalé entre 2 grandes périodes où l'on a enregistré des polarités normales du champ magnétique (Fig. VI-6).

VI. 1.4.1.2 Secteur avec des Polarités normales du champ magnétique

L'âge de 16.54±0.24 Ma (18WC01A) obtenu dans cette étude est compatible avec l'intervalle de temps de 16.0-17.5 Ma proposé par (Márton and Pécskay, 1998) pour la mise en place de toute l'unité de Bogács. Ces âges sont en parfait accord avec les mesures paléomagnétiques. En effet, les mesures de déclinaison magnétique effectué sur ces dépôts donnent une valeur de 156° dans la polarité normale correspondant à une rotation de ~28°. L'âge K-Ar situe l'éruption dans l'intervalle 16.31-16.78 Ma qui se réduit considérablement en y couplant les données paléomagnétiques. Les 2 seules périodes compatibles où l'on enregistre une polarité normale correspondent aux époques C5Cn.2r (16.33-16.49 Ma) et C5Cn.3n (16.56-16.73 Ma) (Fig. VI-6). Ainsi, cette éruption a eu lieu soit entre 16.33-16.49 Ma représentant une très courte période de temps ou alors entre 16.56-16.73 Ma (Fig. VI-6).

Au niveau de Harsány et Tibolddaróc, nos résultats K-Ar et les données paléomagnétiques (Márton et al., in prep.), semblent ne pas être en accord. Pour l'ignimbrite d'Harsány, l'âge de 12.71± 0.18 Ma (18WC04) obtenu dans cette étude représenterai l'activité volcanique la plus récente de tout le champ volcanique de Bükk. Il est compatible à 1 sigma avec l'âge de 13,65 ± 0.70 (Lukács et al., 2007) et à l'âge 13,84 ±0.94 Ma (Márton and Pécskay, 1998). Mais, il n'est pas compatible à 1 et même à 2 sigmas avec les âges U-Th/He sur Zircon de 14.1 ± 0.3 Ma de Lukács et al. (2015). Cependant, tous ces âges ont ceci de commun qu'ils caractérisent une formation jeune mis en place avant 14.7 Ma ce qui devrait logiquement correspondre à un secteur sans rotation significative. Cependant, les données paléomagnétiques (Márton et al., in prep.) ont enregistré une polarité du champ magnétique normal dans cette unité et une déclinaison de 309° correspondant à une rotation moyenne de ~50°. Ce résultat contredire les données de datations obtenues dans ce secteur, quelle que soit la méthode considérée. En effet pour une formation ayant enregistré une rotation importante de 50°, on s'attendrait logiquement à obtenir des âges significativement élevés (i.e., > 16.8 Ma). Ainsi, établir une corrélation sur la base des données paléomagnétiques n'est pas efficiente car les deux outils produisent deux résultats qui méritent des études complémentaires. Le même problème s'est observé au niveau de l'unité de Tibolddaróc. Nos deux âges de 12,81 ± 0,20 et 13,15 ± 0,20 Ma correspondant au même évènement éruptif nous ont permis de déterminer un âge moyen de 12.98± 0,14 Ma. Ces 2 nouveaux âges ou l'âge moyen déduit sont compatibles à 1 sigma avec le précédent âge de 13.35±1.01 Ma (Lukács et al., 2007) mais diffèrent significativement de celui de 14.7±0.2 Ma obtenu sur zircon par (Lukács et al., 2018). Notre âge n'est pas compatible avec les mesures paléomagnétiques (déclinaison de 308°, Márton et al., in prep.) décrivant une rotation moyenne de ~50° alors que, un tel âge correspond à un secteur n'ayant pas connu de rotation significative. En revanche, l'âge de 14.7±0.2 Ma obtenu sur le zircon par Lukács et al. (2018) est beaucoup plus proche des données paléomagnétiques. Avec un tel âge, on se retrouverai dans des formations présentant des rotations situées autour de 30° ce qui est encore loin des 50° que suggère les données paléomagnétiques. Une telle déclinaison magnétique si elle s'avère correcte, serait caractéristique des évènements avec des âges > 16 Ma. A la vue des données paléomagnétiques, on pourrait naïvement suspecter nos âges d'être très jeunes et les remettre en cause ; cependant, il n'en est rien.

Validité de nos âges :

Les échantillons des secteurs de Harsány (18WC04) et Tibolddaróc (18WC02) montrent un même âge de 12,8 Ma et des teneurs en K des biotites proches et relativement élevées (> 6%), ce qui nous permet d'exclure des mécanismes de perte significatives de K ; une perte en

K qui résulte le plus souvent des processus d'altération (puisque le K sort du système cristallin du minéral).

Par contre, l'échantillon 18WC03 montre un âge légèrement plus vieux (13.1 Ma) avec des teneurs en K de biotites significativement plus basses (5.45%) que les 2 précédents échantillons. Nous avons interprété cela comme étant la résultante d'une perte de K liée à la possible altération de ces biotites ; ce qui a eu pour conséquence de vieillir un tout petit peu l'âge obtenu bien que restant compatible à 1 sigma aux 2 autres. De plus, au cours de la préparation de l'échantillon 18WC03, nous avons identifié des feldspaths jaunâtres et des biotites parfois brunâtres caractéristiques des phases minéralogiques ayant été affectées par une circulation de fluide (altération hydrothermale). Même si au cours de la phase de préparation, nous avons écarté de telles phases minéralogiques altérées, il est possible que cette altération ait affecté l'ensemble du dépôt et par ricochet toute les phases minéralogiques s'y trouvant à des degrés différents. Ainsi, une biotite qui pouvait paraître non altérée à l'œil nu aurait pu tout simplement représenter une biotite altérée à un degré moins que celles ayant virées au brun et ainsi de suite. Aussi, la localisation de l'échantillon 18WC03 pourrait être une des causes ayant facilitée cette altération hydrothermale. En effet, cet échantillon ayant été collecté à proximité d'une ancienne carrière abandonné et non loin de multiples ravins, principale voie d'écoulements torrentiels, une telle proximité avec le lieu d'échantillonnage à certainement pu les affecter (circulation d'eau) d'où sa teneur en K significativement plus faible (Table VI-1).

À la vue de la bonne qualité des biotites des échantillons 18WC04 et 18WC02, nous validons les âges des secteurs Est du champ volcanique de Bükk comme réalistes ce qui situe le secteur Est de Bükk comme le plus jeune de tout ce champ volcanique. Aussi, malgré la possible altération des biotites du 18WC03, nous voyons qu'ils restent tous compatibles à 1 sigma. Etrangement aussi, pour ces deux localités (représentées par 3 échantillons) les mesures de déclinaisons paléomagnétiques montrent également des valeurs identiques de 308 et 309 ° respectivement pour les localités de Tibolddaróc et Harsány. Ce qui atteste que les âges identiques obtenus dans ces 2 localités ne sont pas aberrants même si on s'attendrai à avoir des âges beaucoup plus vieux. Ceci traduit certainement une histoire volcano-tectonique beaucoup plus complexe que celle proposée jusqu'ici pour l'évolution de ce champ volcanique.

D'ailleurs, une des hypothèses préliminaires que nous proposons pour expliquer l'apparente contradiction entre nos nouvelles datations et les mesures paléomagnétiques pour ce secteur est que les âges de mise en place de 12.8 Ma sont correctes tandis que, s'agissant des valeurs importantes de déclinaisons (correspondant à une rotation de ~50°), cela pourrait tout simplement s'expliquer par des variations séculaires c'est-à-dire que, l'unité échantillonnée a

été mise en place dans une période de déclinaison extrême (avec des dispersions pouvant être de 40 à 50°) ; ce qui a contribué à l'obtention des déclinaisons anormales. En d'autres termes, les âges de 12.8 Ma de Harsány et Tibolddaróc sont réalistes, et cette ignimbrite n'aurait pas en effet rotée si la valeur paléomagnétique est due à une variation séculaire dans une période de déclinaison extrême. Cela peut également être envisagé pour d'autres échantillons. Néanmoins, avant de valider définitivement cette hypothèse, il serait donc judicieux de revoir et réinterpréter les mesures paléomagnétiques pour mieux évaluer le rôle des variations séculaires qui pourrait aider à mieux cerner son évolution volcano-tectonique.

Location des sites	(18DS) Demjén	18WC05 SIROK	18CT SIROK	18MB Mátrabérc	18Tar	17GAL Galgaguta	18WC01A Bogács	18WC03 Tibolddaróc	18WC02 Tibolddaróc	18WC04 Harsány
Déclinaison magnétique	188	174	174	192	195	?	156	309	309	308
Rotation	~8 °	~10 °	~10 °	~12 °	<15 °	~12 °	28 °	~50 °	~50 °	~50 °
Polarité	Inverse	Inverse	Inverse	Inverse	Inverse	Inverse	Normale	Normale	Normale	Normale
Source	1	1	1	1	1	1	1	2	2	2

Table VI-2: New paleomagnetic declinations of ignimbrites and other pyroclastic from the Mátra Mts. and the Bükk foreland. 1: data from (Márton and Márton, 1996; Márton and Pécskay, 1998; Márton et al., 2007). 2: from Márton et al. (in prep.).

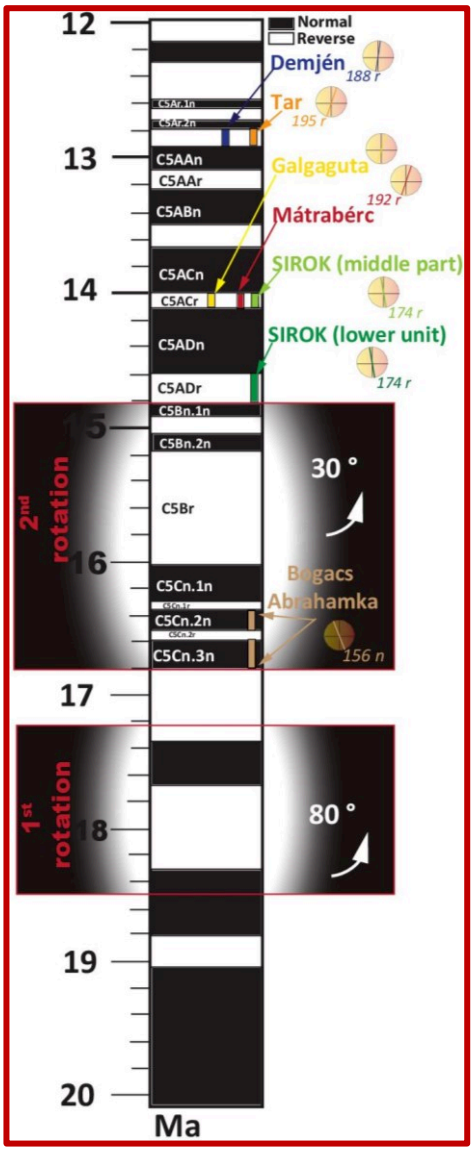


Fig. VI-6 : Comparison of the interpreted eruption ages with the magnetic polarity epochs (Gee and Kent, 2007) and the available magnetic polarity data (Márton and Pécskay 1998; Márton et al. 2007). The narrow magnetic polarity subchrons help to bracket the eruption ages and refine the age of rotation event defined by Márton et al. (2007) and the change in the regional stress field (Márton and Fodor 2005; Petrik et al. 2014, 2015)

En conclusion, la polarité inverse caractéristiques des trois affleurements à proximité de Mátra (18Tar, 18MB, 17GAL) et ceux de l'ouest de Bükk (18DS, 18CT, 18WC05) et leur très bon groupement laissent supposer un épanchement lors d'éruptions (distinctes d'après les différences pétrologiques) assez rapprochées dans le temps (13.13-14.3) correspondant aux secteurs sans rotations significatives (~10°) et représentant les unités supérieures. Tous ces nouveaux âges sont en accord avec les données du paléomagnétisme (unité supérieure) ; ce qui valide les outils pour ces 2 secteurs.

Sur la base de l'absence de rotation et de polarité inverse, les ignimbrites des carrières de TAR, et ceux de Mátrabérc peuvent être regroupées jusqu'à la partie ouest de Sirok et Demjén (secteur gris Fig. VI-7).

Un second ensemble sur une base purement paléomagnétique avec les secteurs de Bogács, Harsány et Tibolddaróc peut être établi comme le secteur présentant des déclinaisons magnétiques élevés (rotation > 30°) et présentant une polarité normale (Fig. VI-7).

Les échantillons de Harsány et Tibolddaróc présentant des déclinaisons élevées correspondant aux rotations de ~50° appartiendraient donc à cette famille ; cependant nos âges K-Ar obtenus montrent plutôt des valeurs plus jeunes.

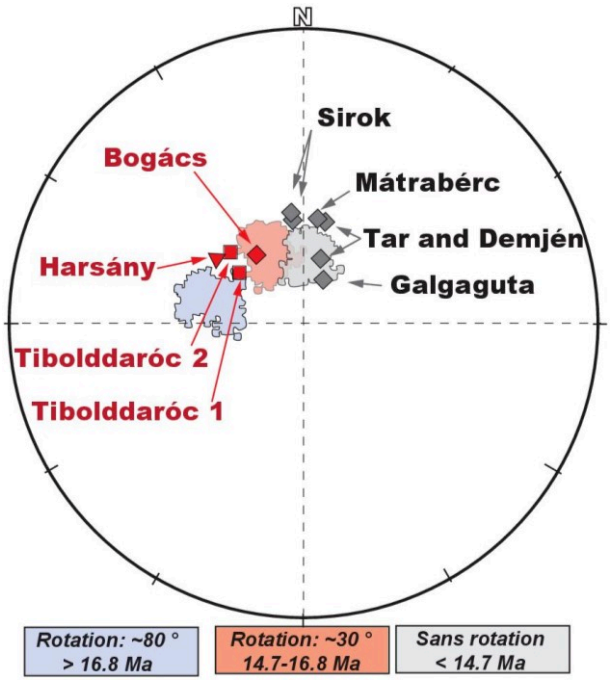


Fig. VI-7: New paleomagnetic declinations of ignimbrites and other pyroclastic from the Mátra Mts. and the BFVA (Márton et al. in prep.). Coloured zones represent the areas occupied by magnetic directions representing objects which cooled very fast while the direction of the geomagnetic field changed. Grey zone is the present situation, pink and blue zones are those affected by about 30° and 30°+50° CCW rotations, respectively. Modified from Márton et al. in prep.).

En corrélant les événements éruptifs avec les périodes de polarité magnétique régionale et les données de déclinaison paléomagnétique, nous contraignons la limite temporelle supérieure (14.8 Ma) de la plus jeune rotation dans la partie nord du bassin Pannonien et en même temps, le début d'une nouvelle phase de déformation.

Nos résultats montrent aussi que, même si la méthode K-Ar permet d'obtenir des âges de bonne précision, la valeur de l'âge peut, dans certains cas, être remise en question, via la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ qui a la capacité de mettre en évidence, par le biais des spectres d'âge et des isochrones les pertes ou excès de ^{40}Ar. Par exemple, à la vue des mesures de paléomagnétisme qui présentent des valeurs de déclinaisons élevées, on aurait pu suspecter les âges jeunes de Harsány et Tibolddaróc comme la conséquence d'une altération hydrothermale qu'a subi ces unités, entrainant par conséquent une perte partielle de leur argon d'où le rajeunissement observé des âges. Mais vue la bonne qualité des biotites des échantillons 18WC02 et 18WC04, cette hypothèse peut être à ce stade légitimement écartée.

Ce travail a le mérite de montrer l'importance de coupler différents outils pour dater un évènement car, sur la seule base des âges K-Ar ou des données paléomagnétiques, on aurait pu faire des déductions totalement simplistes (erronées). Or, mis ensemble, ces données montrent une évolution du secteur Est du champ volcanique de Bükk beaucoup plus complexe faisant certainement intervenir des variations séculaires. Des travaux en cours sur ces localités (Harsány et Tibolddaróc) visent à comprendre ce décalage significatif entre les résultats K-Ar et les données paléomagnétiques. Par exemple, une piste serait de rediscuter les données paléomagnétiques (regarder avec attention la notion de variation séculaire) et aussi, de dater une autre phase que la biotite présente dans ces dépôts, or la difficulté ici est que ces échantillons sont pauvres en minéraux. Néanmoins, Lukács et al. (2007) a décrit la présence de sanidine en proportion faibles dans ces dépôts. Extraire et dater une telle phase (sanidine) riche en potassium pourrait nous permettre de confirmer également les âges précédemment obtenus sur biotites. Mieux encore, une autre méthode comme par exemple effectuer des datations via la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ est recommandée car permettra de mettre en exergue ou non la présence d'excès ou perte d'argon.

VI. 2 Le complexe de Börzsöny

Les monts Börzsöny comme ceux du champ volcanique de Bükkalja (Mátra et Bükk) appartiennent à la chaîne Nord-hongroise et sont un segment de l'arc volcanique des Carpates intérieures (Carpates occidentales). L'accent mis dans les sections suivantes porte principalement sur la chronostratigraphie volcanique de ce complexe via de nouvelle méthode de datation utilisant, le chronomètre K-Ar non pas sur roche totale comme la quasi-totalité des âges disponibles (voir chapitre I) mais utilisant la technique unspiked Cassignol-Gillot sur mésostase telle que décrite au chapitre III.

Au cours des dernières années, un regain d'intérêt scientifique a débouché sur un certain nombre de publications sur l'histoire géologique du volcanisme dacitique-andésitique Miocène du complexe de Börzsöny. De nombreux travaux ont montré des relations entre l'activité volcanique et la minéralisation (Korpás & Lang 1995), les aspects volcanologiques liés à la structure (Karátson, 1995, 1997), les problèmes stratigraphiques (Korpás et al., 1998) et la division des formations volcaniques sur les cartes (Korpás and Teplánszky, 1999). L'activité volcanique a été contrainte par de nombreuses études depuis les années 1970 (Pantó, 1970; Balla and Korpás, 1980; Karátson, 1995; Karátson et al., 2000) mais malheureusement, ces âges sont trop mal contraints pour définir correctement la période et surtout la durée d'activité volcanique de ce complexe. Aussi, en s'appuyant sur les travaux de volcanologie de terrain (missions de terrain de 2015, 2016, 2017 et 2019), des mesures paléomagnétiques disponibles (Pantó, 1970; Balla and Korpás, 1980; Karátson, 1995; Karátson et al., 2000) et la pétrologie, nous avons cherché à affiner la chronostratigraphie volcanique du plus grand édifice de ce secteur connu sous le nom de « High Börzsöny ». Ces résultats de datation par la suite nous permettrons de proposer une durée d'activité et d'établir des corrélations avec les mesures paléomagnétiques disponibles.

VI. 2.1 Méthodologie

Nous avons échantillonné principalement des coulées de lave mises à l'affleurement (parfois au niveau des carrières). A ces coulées de laves, s'ajoute un échantillonnage de dépôt ignimbritique au SE du « High Börzsöny » au niveau du village Királyrét (15BORK1). La plupart des roches échantillonnées (Fig. VI-8) étaient parfaitement saines et répondaient à tous les critères exigés pour la datation K-Ar (voir chapitre III). L'examen des lames minces nous a permis de sélectionner pour les 6 coulées de laves andésitiques (Table VI-3) la mésostase comme phase à dater et, pour l'ignimbrite de Királyrét, la biotite. Notre choix s'est porté sur la qualité des roches mais aussi sur leur distribution spatiale, afin de pouvoir contraindre la durée

de construction de ce complexe (High Börzsöny). Les résultats sont présentés dans la (Table VI-3) et sur la (Fig. VI-9), et sont détaillés dans le texte (section ci-dessous).

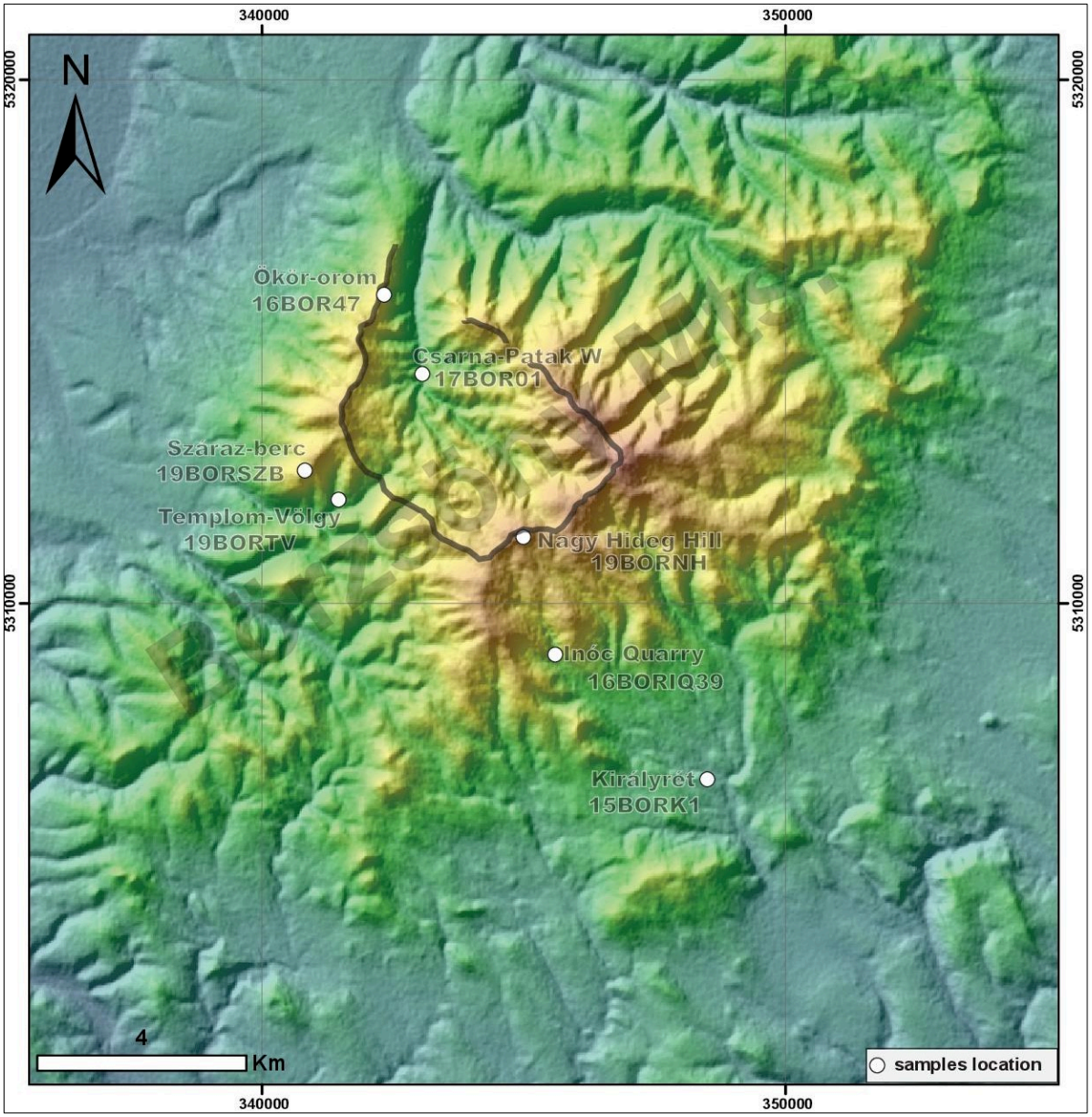


Fig. VI-8 : Samples locations on the Mid-Miocene High Börzsöny volcano in the Börzsöny Mts.

VI. 2.2 Résultats

Les résultats de datation sont compilés dans la Table VI-3. Il en ressort que sur les 7 échantillons qui ont été datés, l'échantillon 15BORK1 au SE et correspondant aux dépôts ignimbritiques de Királyrét et 6 autres correspondant aux coulées de lave du High Börzsöny (16BOR47, 17BOR01, 19BORSZB, 19BORNH, 16BORIQ39 et 19BORTV). Toutes les datations du High Börzsöny sur mésostase présentent des teneurs en K de 0.986 à 2.696 % et des teneurs en argon radiogénique de 51.32 à 74.34%. Celle obtenue sur biotite (15BORK1) présente une teneur de 5.780% et de 63.32-63.45% en potassium et en argon radiogénique

respectivement. Mise en place à la suite d'éruptions ignimbritiques à petite échelle et de dômes de lave, dans un environnement marin peu profond, l'ignimbrite dacitique au SE de l'édifice principal (Királyrét ; 15BORK1) a été redatée dans cette étude. Un âge sur biotite de15,68 ± 0,22 Ma (1σ) a été obtenu.

L'échantillon le plus au nord dans la localité Ökör-Orom (16BOR47) qui se situe au niveau des crêtes de la caldera donne un âge de 14.27±0.20 Ma, (Table VI-3 et Fig. VI-9). A l'intérieur de la caldera l'échantillon 17BOR01 au niveau de Csarna-patak W est daté à 15.11±0.22 Ma et représente l'âge le plus ancien pour cet édifice.
Dans sa partie SE, le sommet du dôme de lave Nagy Hideg Hill (19BORNH) est daté à 14.78±0.21 Ma, et la datation de la coulée andésitique échantillonné au niveau de la carrière Inóc à environ 3.5 Km du village de Királyrét (16BORIQ39) donne un âge de 14.79±0.21 Ma. Dans sa partie ouest, le sommet du dôme de lave Szaráz-berc (19BORSZ) est daté à 14.67±0.21 Ma, et, au niveau de Templon Vögly (19BORTV), l'âge de 14.98±0.21 Ma a été identifié en cohérence avec sa stratigraphie.

Sample code Dome Name	Rock type & (location)	Size (µm)	Phase	K%	40Ar* (in % of total 40Ar)	40Ar* $\times 10^{13}$ at/g	Age ± 1σ (Ma)		Mean age ± 1σ (Ma)
16BOR47	Andesite lava (Ökör-orom)	80-160	G.M.	0.986	69.91	1.48	14.36	0.20	**14.27±0.20**
					67.78	1.47	14.18	0.20	
19BORSZB	Andesite lava (Szaráz-berc)	63-125	G.M.	2.563	54.62	3.92	14.59	0.21	**14.67±0.21**
					54.33	3.96	14.75	0.21	
19BORNH	Andesite lava flow (Nagy Hideg Hill)	63-125	G.M.	1.903	74.34	2.97	14.90	0.21	**14.78±0.21**
					72.59	2.92	14.65	0.21	
16BORIQ39	Andesite lava (Inóc Quarry)	80-160	G.M.	2.696	72.88	4.18	14.79	0.21	**14.79±0.21**
					62.75	4.18	14.79	0.21	
19BORTV	Andesite lava (Templon Vögly)	63-125	G.M.	2.477	60.68	3.43	15.02	0.21	**14.98±0.21**
					6014	3.41	14.95	0.21	
17BOR01	Andesite lava (Csarna-patak W)	80-160	G.M.	2.512	66.45	3.98	15.12	0.21	**15.11±0.22**
					51.32	3.98	15.01	0.21	
15BORK1	Ignimbrite dacite lithoclast, biotite (Királyrét)	125-250	Biotite	5.780	63.45	9.56	15.76	0.22	**15.68±0.22**
					69.32	9.46	15.61	0.22	

Table VI-3 : New K-Ar dating results. For each sample, the mean age (in bold) is obtained by weighing by the amount of radiogenic argon (40Ar (%)).*

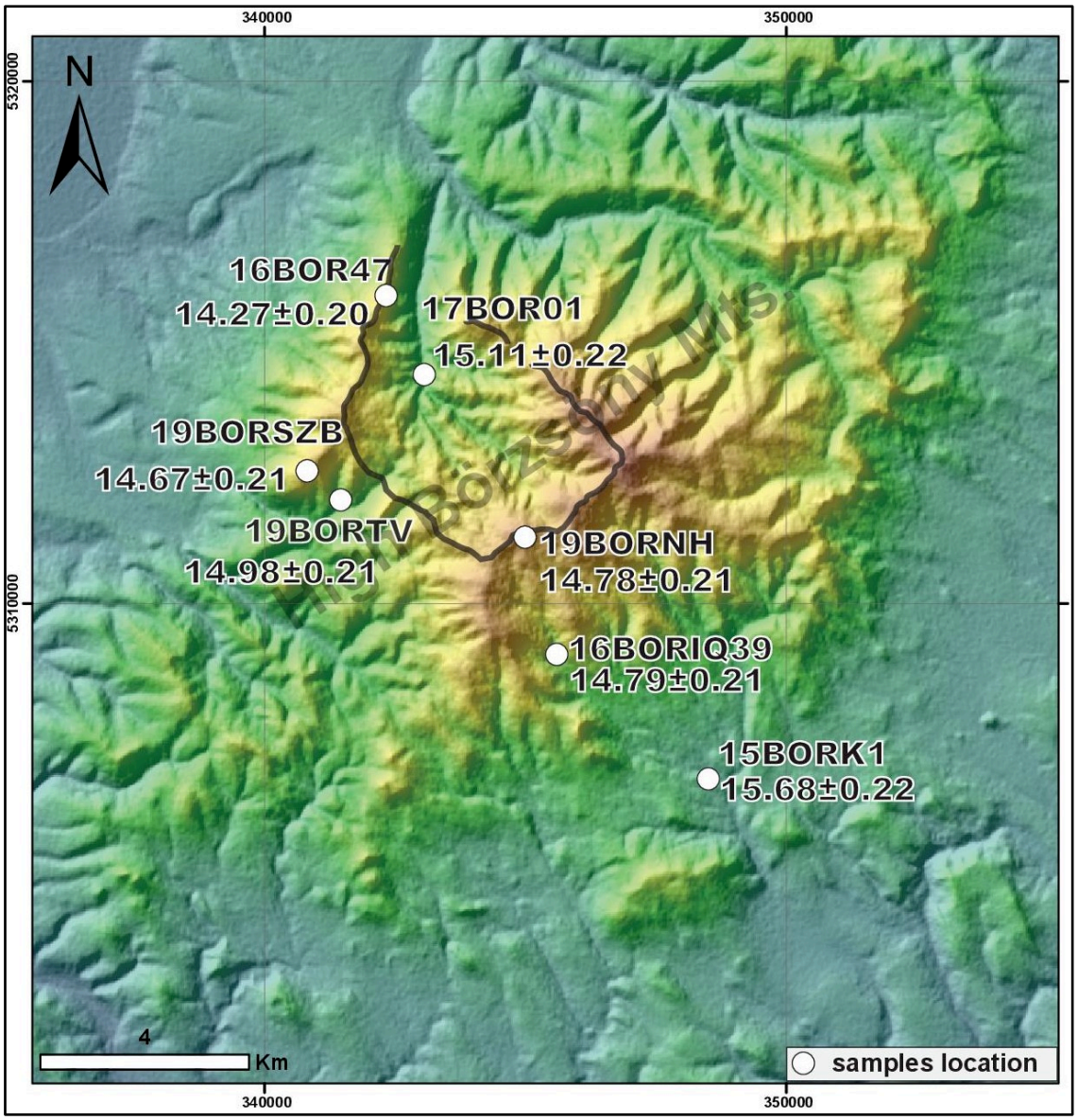


Fig. VI-9: New unspiked K-Ar ages in (Ma) of the Börzsöny Mts. Note that the ages were obtained on groundmass for the High Börzsöny andesite lava rocks, whereas the age of the Királyrét ignimbrite (representing the first volcanic stage) on biotite separate. Sample coordinates are projected using the Universal Transverse Mercator (UTM) projection (zone 35th N).

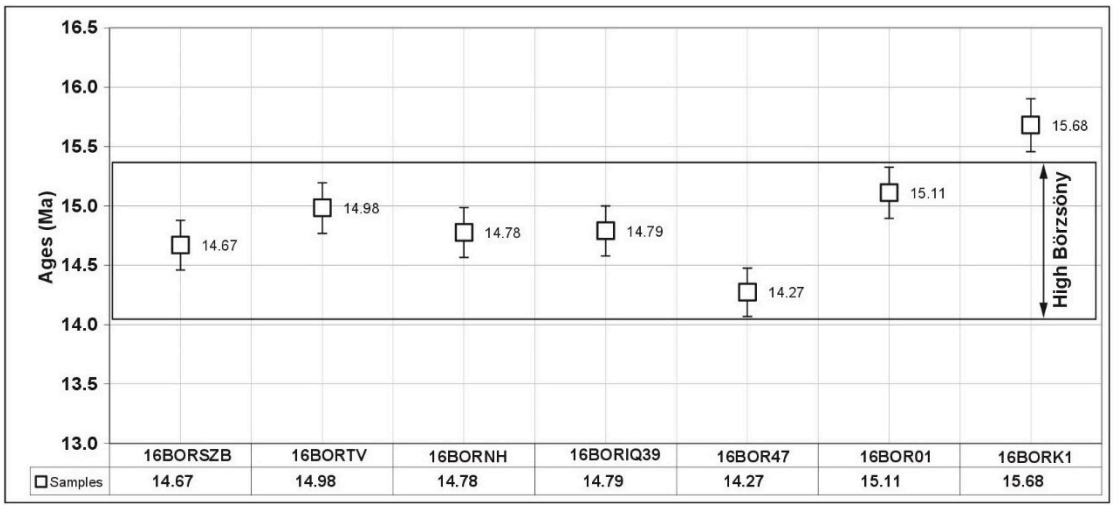


Fig. VI-10 : Graph of K-Ar ages (Ma) versus samples (code) associated to their respective uncertainty. This graph also displays the narrow range of activity period of High Borzony.

VI. 2.3 Discussion

VI. 2.3.1 Comparaison

Nous avons volontairement échantillonné des formations qui avaient déjà été datées par les précédents auteurs (Pantó, 1970; Balla and Korpás, 1980; Karátson, 1995; Karátson et al., 2000) afin de pouvoir comparer les deux techniques et résoudre les problèmes qu'ils avaient rencontrés à cause des mauvaises précisions analytiques de l'époque. Par exemple, nos âges K-Ar obtenus par la technique Cassignol-Gillot sur phases minérales séparées nous permettent de nous affranchir des problèmes d'héritage posés par la présence de xénocristaux en roche totale (voir chapitre III). De plus, il apparaît que nos âges, bien que compatibles avec la grande majorité des âges précédents, sont 3 à 5 fois mieux contraints que les précédents (<0.2 Ma contre 0.6 à 1.0 Ma, (Table VI-3 et Table VI-4).

L'activité volcanique de la première étape (premier stade) de ce complexe (Karátson et al., 2000) qui s'est produite dans un environnement marin peu profond avec un âge de 15,68 ± 0,22 Ma (15BORK1), est en accord avec l'estimation d'un âge autour de 16 Ma proposé par les mesures paléomagnétiques (Karátson et al., 2000). Ce dépôt ignimbritique s'est mis en place au cours d'une période contrôlée par un champ paléomagnétique normale avec une rotation d'environ 30°.

Au niveau de l'édifice principal (High Börzsöny), les âges obtenus, sont compris entre 15,11 ± 0,21 et 14,27 ± 0,20 Ma (Table VI-3 ; Fig. VI-9), et sont en accord avec leur position stratigraphique (i.e., les âges plus vieux dans la partie interne de la caldera d'érosion et dans la vallée, et les âges plus jeunes au niveau des sommets [coulées de lave de flanc]).

L'âge de 14.67±0.21 Ma obtenu au niveau des flancs du sommet du dôme de lave de Szaráz-berc (19BORSZ) est compatible avec l'âge de 15.0±0.7 Ma (Fig. VI-11; Table VI-4) obtenu par (Karátson, 1995). Cependant, le nouvel âge est trois fois mieux contraint que le précédent ce qui autorise à mieux le situer dans le temps (Fig. VI-11). Grâce aux données paléomagnétiques, notamment la connaissance des polarités du champ magnétique ayant régné lors de la mise en place du High Börzsöny, il est donc possible en couplant les données du paléomagnétisme et notre âge K-Ar d'établir les corrélations dans le but de situer chaque éruption dans un contexte temporel bien précis. L'édification du High Börzsöny s'est faite lors d'une période ou a régné un champ magnétique présentant une polarité normale (Karátson et al., 2000) avec néanmoins quelques dômes (non étudiés dans ce travail) qui ont montré des polarités inverses. Les âges d'éruptions ont été déduites pour l'ensemble de nos échantillons avec les époques de polarité magnétique selon (Gee and Kent, 2007) avec les données de

polarité magnétiques telles que décrites par Karátson et al. (2000). Sur cette base, notre âge K-Ar est compatible avec l'époque C5ADn (14.18–14.61 Ma) et l'époque C5Bn.1n (14.80–14.89 Ma) (Fig. VI-12). En combinant donc ces époques à la durée proposée par notre âge K-Ar (14.46-14.89 Ma) nous déduisons donc que cette coulée de lave (19BORSZ) ne peut être plus jeune que 14.46 Ma ni plus vielle que 14.89. Elle s'est donc mise en place soit entre 14.46-14.61 Ma ou entre 14.80-14.89 Ma correspondant aux deux périodes où l'on a enregistré un champ magnétique à polarité normale (Fig. VI-12).

Au niveau de Nagy Hideg Hill notre âge de 14.78±0.21 Ma est compatible avec les précédents âges de 14.7±0.6 et 14.1±0.6 Ma (Korpás and Lang, 1993; (Fig. VI-11; Table VI-4) mais significativement mieux contraint. Grâce aux données paléomagnétiques de polarité normale, cet âge correspond à l'époque C5Bn.1n (14.80–14.89 Ma), unique époque où l'on a enregistré un champ magnétique de polarité normale compatible avec notre âge (14.57-14.99 Ma). Ainsi, nous déduisons que la coulée de lave (19BORNH) a été mise en place entre 14.80-14.89 Ma correspondant à une période où l'on a enregistré un champ magnétique à polarité normale (Fig. VI-12).

L'âge de 14.98±0.21 Ma obtenu pour Templon Vögly (19BORTV) est compatible avec l'âge de 14.0 ± 1.0 Ma précédemment proposé par (Balla et al., 1981) (Fig. VI-11; Table VI-4). Ici, l'âge précédent est très mal contraint avec une incertitude de l'ordre du million d'année. Avec un champ magnétique à polarité normale, notre âge K-Ar qui couvre la période (14.77-15.19 Ma) couvre deux époques de polarité magnétique selon (Gee and Kent, 2007) à savoir l'époque C5Bn.1n (14.80–14.89 Ma) et l'époque C5Bn.2n (15.03–15.16 Ma). Ces données montrent clairement que la coulée de lave au niveau des flancs de Templon Vögly (19BORTV) ne peut être plus jeune que 14.80 Ma ni plus vielle que 15.16 Ma. Ainsi donc, cette éruption a été mis en place soit entre 14.80-14.89 Ma ou entre 15.03-15.16 Ma (Fig. VI-12).

A l'intérieur de la caldera (Szecskö-patak) l'âge de 15.2±0.8 Ma (Table VI-4) qui avait été précédemment proposé par (Korpás and Lang, 1993) est compatible à l'âge de 15.11±0.22 Ma (17BOR01) nouvellement obtenu au niveau de Csarna-patak (Fig. VI-11). Avec un champ magnétique normale, une seule époque est compatible avec notre âge K-Ar (14.89-15.33 Ma) C5Bn.2n (15.03–15.16 Ma). En combinant cela aux âges K-Ar, nous déduisons donc que cette coulée de lave a été mis en place entre 15.03-15.16 Ma (Fig. VI-12).

Au niveau de la carrière Inóc notre âge de 14.79±0.21 Ma (17BORIQ39) n'est pas compatible (plus vieux) avec celui de 13.7±0.6 Ma proposé par (Karátson, 1995) (Fig. VI-11; Table VI-4). Cette différence se justifie par la moindre qualité de l'échantillon initialement daté

et sans doute pas exempt de traces d'altération (circulation de fluide). C'est d'ailleurs ce qui avait justifié notre nouvelle datation.

Ce nouvel âge corrélé aux données du champ magnétique normale montre que la seule époque de polarité magnétique qui couvre la gamme de temps compatible à notre âge K-Ar (14.6-15.0 Ma) est l'époque C5Bn.1n (14.80–14.89 MA). Ainsi, en corrélant c'est deux résultats, nous déduisons un âge d'éruption entre 14.80–14.89 MA (Fig. VI-12).

L'âge de 14.27±0.20 Ma obtenu sur la coulée de lave basaltique-andésitique de Ökör-orom (16BOR47) est tout nouveau et est cohérent d'un point de vue stratigraphie de terrain. Avec un tel âge, l'époque ayant expérimenté un champ magnétique à polarité normales est C5ACn (13.70–14.08) or, selon notre âge K-Ar, la coulée s'est mise en place entre 14.07-14.47 Ma. En combinant donc ces deux résultats il ressort que la coulée de lave la plus récente s'est mis en place au cours d'une faible période où le champ magnétique était normal entre 14.07-14.08 Ma (Fig. VI-12).

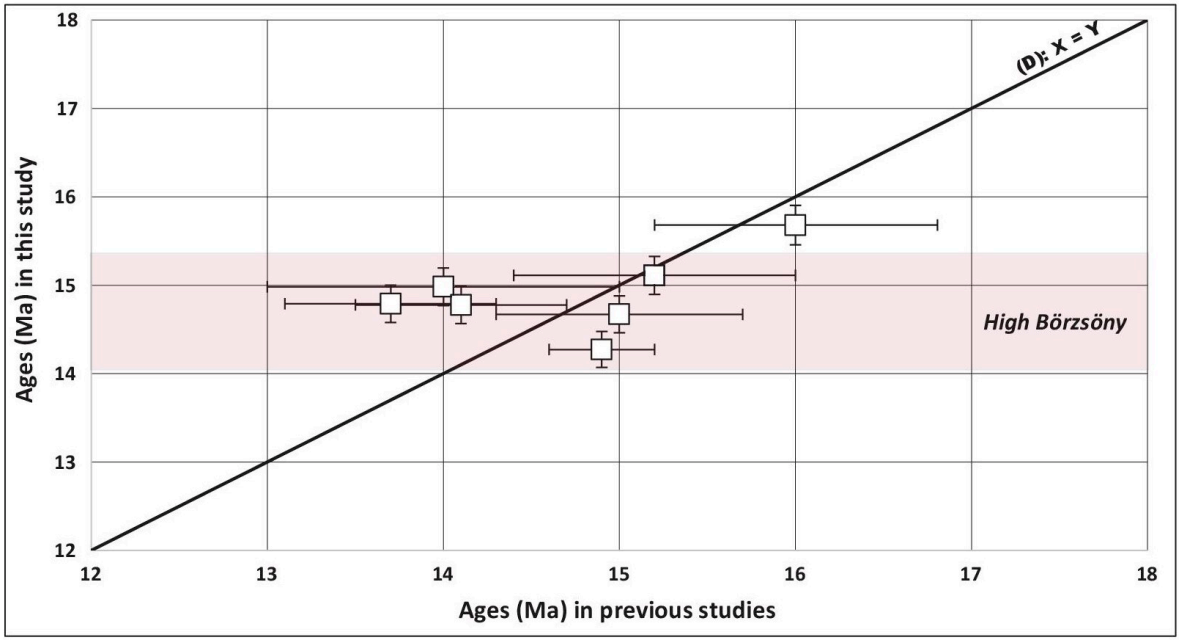


Fig. VI-11: Cassignol-Gillot K/Ar ages versus previous ages of the Börzsöny Mts (ages are presented in Table VI-4). Uncertainties of previous studies are 2 to 5 times are less constraining compare to the new Cassignol-Gillot ages

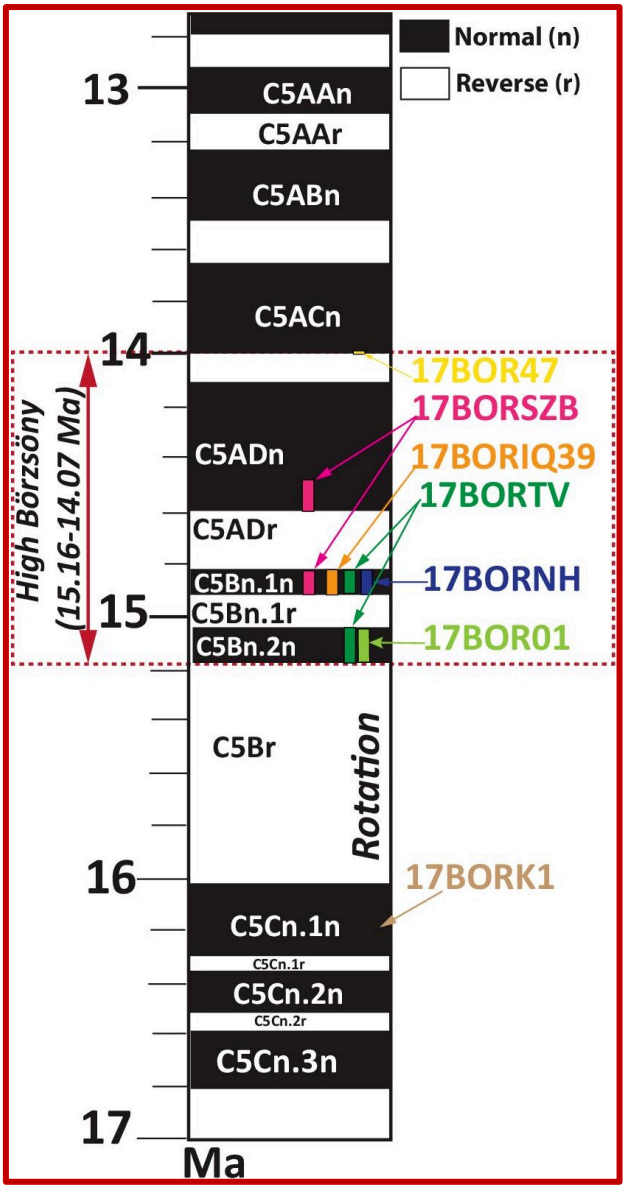


Fig. VI-12 : Comparison of the interpreted eruption ages with the magnetic polarity epochs (Gee and Kent, 2007) and the magnetic polarity inferred from (Karátson et al., 2000).

Locality	Dated fraction	K (%)	Age (Ma)	Reference
Templon Vögly	biotite	1.94	14.0±1	Karátson 1995
Szecskö-patak	w. r.	2.39	15.2±0.8	Karátson 1995
Száraz-fa-bérc	w. r.	2.01	15.0±0.7	Karátson 1995
Nagyhideg-hegy	w. r.	1.49	14.1±0.6	(Korpás and Lang, 1993)
Inóc quarry	w. r.	2.06	13.7±0.6	Karátson 1995
Királyrét			> 16	Karátson 1995

Table VI-4 : Previous K-Ar ages of the Borzony lavas flow analysed in this this study

Sur la base de ces nouveaux résultats de datation, l'intervalle de temps de construction de 0,84 ± 0,30 Ma est déduite pour l'activité du High Börzsöny. Par contre, la combinaison des âges nouvellement obtenus avec les mesures paléomagnétiques permet de contraindre plus précisément la période d'activité volcanique du High Börzsöny autour de 15.16-14.07 Ma (1.09 ± 0,13 Ma) (Fig. VI-12) contrairement à la précédente conclusion de (Karátson et al., 2000) d'une activité volcanique entre 14.6-13.7 Ma.

Tabes des figures chapitre VI :

FIG. VI-1: CARTE GEOLOGIQUE A L'ECHELLE 1/100 000 DES DEPOTS PYROCLASTIQUES SILICIQUES DU MIOCENE DES SECTEURS DE BÜKKALJA ET MATRA DU NORD DE LA HONGRIE SIMPLIFIE ; CARTE DE BASE : MAPS.MBFSZ.GOV.HU. (D'APRES MARTON ET AL.,2018) 260

FIG. VI-2 : SIMPLIFIED TECTONIC MAP OF THE CARPATHIAN-PANNONIAN REGION AND LOCATION OF THE STUDY AREA (TOPOGRAPHIC MAP IS MODIFIED AFTER HORVÁTH ET AL., 2006). 262

FIG. VI-3 : LES DIFFERENTES LOCALITES OU DES ECHANTILLLONS ONT ETE PRELEVES AU NIVEAU DES CHAMPS VOLCANIQUE DE MATRA ET BÜKK DES CARPATES OCCIDENTALES. 264

FIG. VI- 4 : CARTE DES DEPOTS PYROCLASTIQUES MIOCENE DANS LES SECTEURS DE MATRA ET LE BÜKK. BASE SUR UNE CARTE GEOLOGIQUE A L'ECHELLE 1/100 000 DE LA HONGRIE ; SIMPLIFIE ; CARTE DE BASE : MAPS.MBFSZ.GOV.HU. MODIFIE D'APRES MARTON ET AL., 2018. 265

FIG. VI-5 : NEW UNSPIKED K-AR AGES IN (MA). ORANGE FRAME REPRESENTS SECTORS WITH REVERSE POLARITY; WHITE FRAME REPRESENTS SECTORS WITH NORMAL POLARITY. SAMPLE COORDINATES ARE PROJECTED USING THE UNIVERSAL TRANSVERSE MERCATOR (UTM) PROJECTION (ZONE 35TH N). 267

FIG. VI-6 : COMPARISON OF THE INTERPRETED ERUPTION AGES WITH THE MAGNETIC POLARITY EPOCHS (GEE AND KENT, 2007) AND THE AVAILABLE MAGNETIC POLARITY DATA (MÁRTON AND PÉCSKAY 1998; MÁRTON ET AL. 2007). THE NARROW MAGNETIC POLARITY SUBCHRONS HELP TO BRACKET THE ERUPTION AGES AND REFINE THE AGE OF ROTATION EVENT DEFINED BY MÁRTON ET AL. (2007) AND THE CHANGE IN THE REGIONAL STRESS FIELD (MÁRTON AND FODOR 2005; PETRIK ET AL. 2014, 2015) 274

FIG. VI-7: NEW PALEOMAGNETIC DECLINATIONS OF IGNIMBRITES AND OTHER PYROCLASTIC FROM THE MÁTRA MTS. AND THE BFVA (MÁRTON ET AL. IN PREP.). COLOURED ZONES REPRESENT THE AREAS OCCUPIED BY MAGNETIC DIRECTIONS REPRESENTING OBJECTS WHICH COOLED VERY FAST WHILE THE DIRECTION OF THE GEOMAGNETIC FIELD CHANGED. GREY ZONE IS THE PRESENT SITUATION, PINK AND BLUE ZONES ARE THOSE AFFECTED BY ABOUT 30° AND 30°+50° CCW ROTATIONS, RESPECTIVELY. MODIFIED FROM MARTON ET AL. IN PREP.). 274

FIG. VI-8 : SAMPLES LOCATIONS ON THE MID-MIOCENE HIGH BÖRZSÖNY VOLCANO IN THE BÖRZSÖNY MTS 277

FIG. VI-9: NEW UNSPIKED K-AR AGES IN (MA) OF THE BÖRZSÖNY MTS. NOTE THAT THE AGES WERE OBTAINED ON GROUNDMASS FOR THE HIGH BÖRZSÖNY ANDESITE LAVA ROCKS, WHEREAS THE AGE OF THE KIRÁLYRÉT IGNIMBRITE (REPRESENTING THE FIRST VOLCANIC STAGE) ON BIOTITE SEPARATE. SAMPLE COORDINATES ARE PROJECTED USING THE UNIVERSAL TRANSVERSE MERCATOR (UTM) PROJECTION (ZONE 35TH N). 279

FIG. VI-10 : GRAPH OF K-AR AGES (MA) VERSUS SAMPLES (CODE) ASSOCIATED TO THEIR RESPECTIVE UNCERTAINTY. THIS GRAPH ALSO DISPLAYS THE NARROW RANGE OF ACTIVITY PERIOD OF HIGH BORZONY 279

FIG. VI-11: CASSIGNOL-GILLOT K/AR AGES VERSUS PREVIOUS AGES OF THE BÖRZSÖNY MTS (AGES ARE PRESENTED IN TABLE VI-4). UNCERTAINTIES OF PREVIOUS STUDIES ARE 2 TO 5 TIMES ARE LESS CONSTRAINING COMPARE TO THE NEW CASSIGNOL-GILLOT AGES 282
FIG. VI-12 : COMPARISON OF THE INTERPRETED ERUPTION AGES WITH THE MAGNETIC POLARITY EPOCHS (GEE AND KENT, 2007) AND THE MAGNETIC POLARITY INFERRED FROM (KARÁTSON ET AL., 2000). 283

Chapitre VII :

Discussion Générale

SOMMAIRE

VII.1 EVOLUTION SPATIO-TEMPORELLE DES CARPATES ORIENTALES : SEGMENT VOLCANIQUE DE CGH 291
VII.1.1 Complexe volcanique de Ciomadul *291*
VII.1.1.1 Utilisation du chronomètre K-Ar pour un volcanisme récent 291
VII.1.1.2 Comparaison de nos résultats avec les âges K-Ar sur roche totale 292
VII.1.1.3 Influence de la taille de la fraction datée 295
VII.1.1.4 Comparaison de nos résultats avec les âges (U-Th) /He 296
VII.1.2 Evolution temporelle des volcans Pilişca, Varghis, Seaca-Tătarca et Călimani du segment CGH ... 297
VII.1.3 Synthèse *298*
VII.2 EVOLUTION SPATIO-TEMPORELLE DES CARPATES OCCIDENTALES : COMPLEXE DE BÖRZSÖNY ET LES CHAMPS VOLCANIQUES DE BÜKK ET MATRA 300
VII.3 RECONSTRUCTIONS NUMERIQUES 300
VII.3.1 Modélisation de la surface de base anté-volcanique *301*
VII.3.2 Modélisation numérique des paléo surfaces des volcans *302*
VII.3.2.1 Pertinence du choix de ShapeVolc au détriment du Krigeage 302
VII.4 VOLUMES POST-ERUPTIFS (VOLUMES DE CONSTRUCTION) 306
VII.4.1 Corrélation entre volume construit, hauteur et surface *307*
VII.4.2 Comparaison des volumes construits avec les précédents résultats *308*
VII.4.3 Synthèse *310*
VII.5 TAUX DE CONSTRUCTION 311
VII.6 VOLUMES ERODES 313
VII.7 TAUX D'EROSION 314
VII.7.1 Comparaison de nos taux d'érosion avec les valeurs mondiales *320*

Depuis plusieurs décennies, de nombreux travaux ont porté sur l'étude de la chaîne des Carpates Pannoniennes dans sa partie occidentale et orientale. Ces études sur le plan géochronologique ont visé soit à poser les jalons de la datation de ces édifices soit à contraindre au mieux le volcanisme observé dans la région (Rădulescu et al., 1972; Peltz et al., 1987; Pécskay et al., 1992, 1995, 2006; Szakács et al., 1993; Karátson, 1995, 1996; Márton and Márton, 1996; Karátson et al., 2000, 2013, 2016, 2019; Márton et al., 2000, 2016; Seghedi et al., 2004, 2005; Lukács et al., 2015, 2018; Molnar et al., 2018, 2019; Lahitte et al., 2019). Par la suite, la quantification de volume de matériel émis et érodé ont été proposé notamment au niveau du complexe de Börzsöny (Székely and Karátson, 2004) et au niveau de la chaîne orientales (CGH et sa partie nord Oas-Gutâi ;Karátson, 1996; Szakács et al., 1997; Karátson and Timár, 2005). Le volcanisme récent, i.e. inférieur à 1 Ma se concentre dans la partie SE du segment CGH au niveau du complexe volcanique de Ciomadul.

Au cours de ces travaux, nous avons associé des données géochronologiques aux investigations géomorphologiques afin de mieux comprendre l'histoire volcanique du plus jeune segment volcanique des Carpates Pannoniennes (segment CGH) durant ces derniers 11 Ma. Par la suite, au niveau du secteur occidental de la chaîne (les massifs de Börzsöny, Mátra et Bükk), nous avons associés les données géochronologiques aux données paléomagnétiques existantes afin d'apporter de nouvelles contraintes temporelles à ce volcanisme effusif (Börzsöny) et des secteurs des monts Bükk et Mátra où un intense volcanisme explosif a valeur de marqueurs stratigraphiques et tectoniques compte-tenu des contraintes paléomagnétiques dont l'on dispose. Ainsi, une cinquantaine de nouveaux âges ont été obtenus, permettant d'apporter de nouvelles interprétations quant à l'histoire volcanique des Carpates Pannoniennes. Parallèlement, les analyses morphologiques ainsi que les reconstructions numériques ont par la suite permis de contraindre les volumes post-éruptifs, les taux de construction associés, mais aussi les volumes démantelés et les taux d'érosion. Les résultats obtenus ont été largement discutés dans les chapitre IV, V, et VI et seront résumés tout en mettant l'accent sur des aspects non abordés dans les articles (chapitres précédents) dans cette partie.

VII.1 Evolution spatio-temporelle des Carpates orientales : Segment volcanique de CGH

VII.1.1 Complexe volcanique de Ciomadul

VII.1.1.1 Utilisation du chronomètre K-Ar pour un volcanisme récent

Au cours de cette étude, une attention particulière a été consacrée à l'étude du complexe volcanique de Ciomadul, le plus jeune édifice de toute la région des Carpates Pannonienne (< 1Ma). Dans notre approche, nous nous sommes concentrés sur l'évolution temporelle de ce complexe de dômes et, sur la quantification des taux de sortie de magma comme présenté dans le chapitre IV sous forme d'articles. Etant donné que les résultats obtenus ont été largement discutés dans leur intégralité, nous ne donnerons ici qu'un aperçu général des principaux éléments de discussion.

De nouveaux âges ont été déterminés après une séparation stricte de la mésostase (phase dont le refroidissement est contemporain de l'éruption) de roches de lave non altérées. Ici, une approche novatrice consistant en une double séparation, préparation à double échelle d'abord sur des grains de 250-500 µm puis de 63-125 µm, permet de ne sélectionner pour des datations qu'une mésostase affranchi de toute présence de phénocristaux qui dans le cas d'un volcanisme récent, pourrait significativement biaiser les résultats, en vieillissant les âges (présence des excès d'argon) isolant ainsi la mésostase, a fourni une procédure appropriée pour séparer de la mésostase les phénocristaux responsables du vieillissement des âges. De plus, la plupart des roches de ce complexe étant caractérisée par des textures glomérophyriques, une telle démarche a permis de s'affranchir de leur présence dans notre mésostase. Ainsi, une fois cette démarche validée, tous les 11 âges de ce complexe ont bénéficié de ce protocole de la double séparation ce qui a permis d'obtenir des âges significativement mieux contraints que les précédent âges K-Ar sur roche totale.

Les âges obtenus pour ce complexe volcanique qui sont discutés ci-dessous ont montré des valeurs d'une activité allant de 27.7± 1.4 ka (16CIO11) pour l'activité volcanique la plus récente (localisée dans la partie centrale du complexe) à 704 ± 18 (16CIO08) pour les dômes périphériques de Bálványos au SE du complexe interrompue par des périodes de quiescences (Fig. VII-1). Ainsi, nos résultats montrent que cette activité volcanique a débuté par la mise en place d'une activité essentiellement effusive des dômes de laves périphériques du Sud-Est à partir de 850 ka à 440 ka (I). Après une importante période de quiescence d'une durée d'environ 250 ka, l'activité a repris dans la partie Nord à environ 200 ka, avec des dômes subséquents mis en place entre 200 et 130 ka, alignés à peu près Nord-Sud dans la partie centre-ouest du

complexe (II). Après une seconde période de repos de 30 ka, la construction des dômes de la partie centrale du complexe a été initiée entre ~ 100 à <30 ka (III) ; c'est d'ailleurs au cours de cette dernière phase de construction que l'on enregistre les éruptions fortement explosives, responsables de la formation des cratères de Mohos et St. Ana entre ~ 60 à <30 ka (Fig. VII-1).

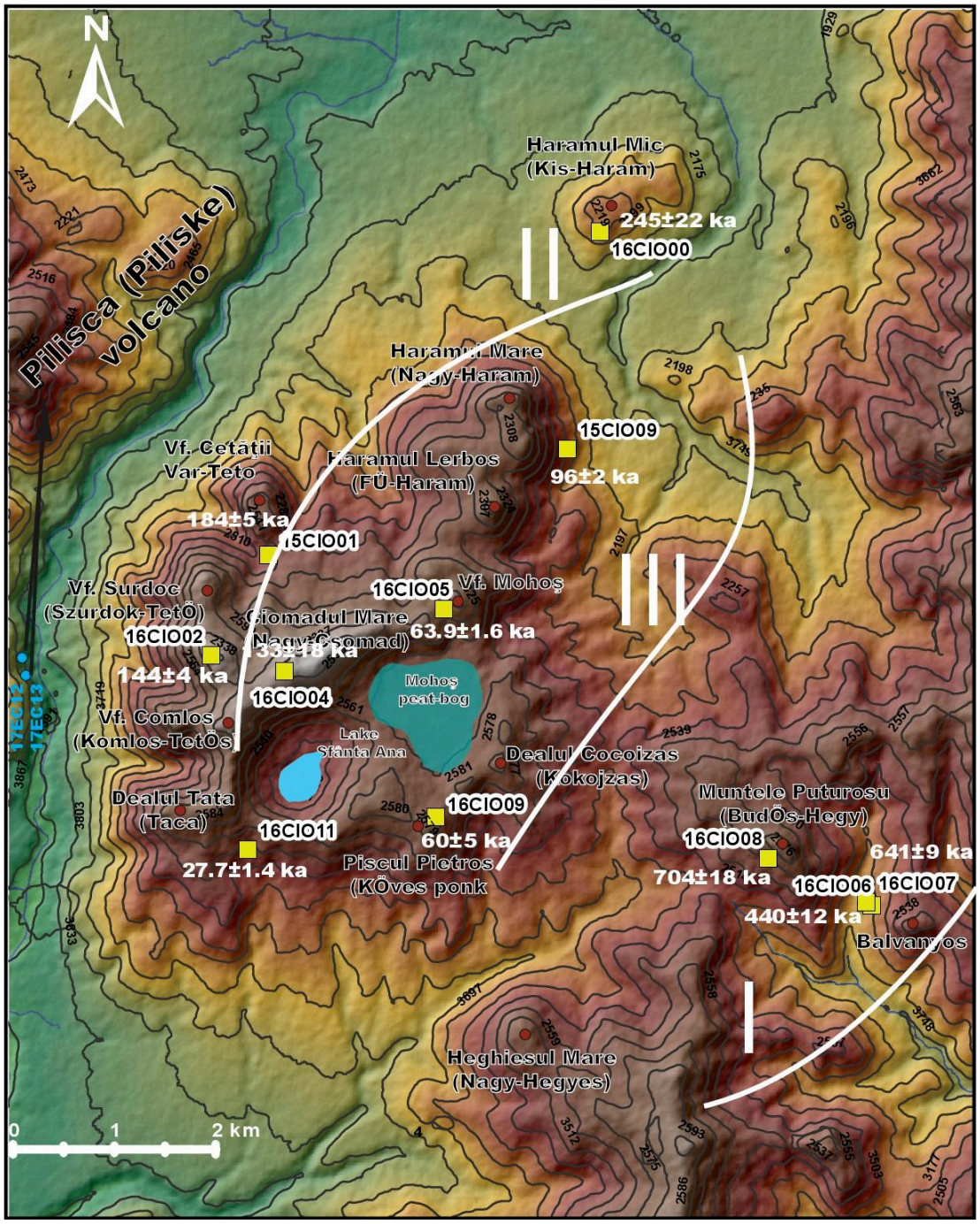


Fig. VII-1 : DEM in shaded relief of Ciomadul dome complex. Sample locations (yellow squares) with available ages and uncertainties. St. Ana and Mohoș: uneroded twin craters

VII.1.1.2 Comparaison de nos résultats avec les âges K-Ar sur roche totale

Parmi tous les échantillons datés pour ce complexe volcanique, seul l'échantillon 16CIO08 du dôme de Muntele Puturosu avec un âge de 704 ± 18 ka est compatible à 1σ avec

celui obtenu sur roche totale K-Ar de 710 ± 40 ka (Szakács et al., 2015). Au niveau du dôme Piscul Pietros, en plus de la mésostase, nous avons aussi daté la biotite et, il ressort que notre âge biotite de 196 ± 4 ka est compatible avec l'âge roche totale de 290 ± 110 ka proposé par (Szakács et al., 2015). En revanche, aucun de ces deux âges n'est compatible avec l'âge de 560 ± 110 ka initialement proposé par (Pécskay et al., 1992). Pour ce dôme, l'âge de l'éruption i.e., celui obtenu sur mésostase dans ce travail est drastiquement plus jeune (60 ± 5 ka) que les précédents. Pour le dôme de Bálványos au sud-est du complexe, 2 échantillons ont été datés avec des âges de de 641 ± 9 ka (16CIO07) et 440 ± 12 ka (16CIO06), contrairement aux âges de 920 ± 180 ka et 1020 ± 150 ka obtenus sur roche totale (Pécskay et al.,1995). Ici, également, le fait qu'ils soient compatibles à 2σ avec nos âges n'est dû qu'à la très grande erreur associée à ces âges. De telles valeurs assez élevées au niveau des incertitudes des âges roches totales implique donc un décalage vers des âges plus vieux principalement induit par l'argon hérité (cf. chapitre III et IV). Dans la partie septentrionale du complexe, au niveau de Haramul Mic (Kis-Haram) nous avons daté ce dôme à 245 ± 24 ka en utilisant cette fois-ci non pas la mésostase (du fait de sa mauvaise qualité) mais, des micro-phénocristaux de plagioclase, ce qui représente donc pour ce dôme un âge maximum (i.e., l'âge de cette éruption ne peut être plus vieux que cet âge) ; ainsi donc tout résultat plus vieux que cet âge serait à prendre avec des pincettes). Notre âge est drastiquement différent de l'âge de 0,85 Ma (Casta, 1980), valeur délivrée sans incertitude ce qui le rend difficilement interprétable. De plus, compte tenu de la morphologie encore fraiche de ce dôme de lave, un âge aussi vieux est peu plausible. Par ailleurs, (Szakács et al., 2015) ont signalé un âge K-Ar sur roche totale de 210 ± 50 ka obtenu sur un bloc situé à seulement 2 km à l'ouest de ce dôme ; ce qui est en accord avec notre âge. Au niveau du dôme de Dealul Cetăţii (15CIO01) nous avons obtenu un âge de 184 ± 5 ka plus jeune que l'âge de 400 ± 160 ka obtenu sur roche totale (Szakács et al., 2015). Au niveau du dôme de Haramul mare (15CIO09), notre âge sur mésostase de 96 ± 2 ka est drastiquement supérieur à celui de 590 ± 160 ka obtenu sur roche totale par (Pécskay et al., 1995).

Le constat le plus marquant de cette étude est que, tous les âges obtenus sur roche totale par la méthode K-Ar conventionnelle sont systématiquement plus vieux que nos âges.

Une grande partie de ce travail a donc consisté à expliquer les raisons d'un tel shift systématique entre les âges sur mésostase et ceux obtenus sur roche totale par le même chronomètre. L'une des causes de ce shift peut être lié à une présence d'argon étranger/hérité au niveau des datations effectuées sur roche totale, argon qui proviendrait de l'inclusion de xénolites et glomérocristaux caractéristiques des roches dacitiques de ce complexe. Nous avons donc évalué le rôle que pourrait avoir ces phases (glomérocristaux, minéraux premiers à

cristalliser dans la chambre magmatique etc.) sur une datation effectuée sur roche totale. Je renvoie le lecteur dans le chapitre III et IV pour éviter des répétitions ; cependant, je rappellerai de façon sommaire la pertinence de notre démarche pour mettre en exergue le décalage existant entre nos âges et les âges roches totales.

L'échantillon 15CIO01 (Dealul Cetăţii) utilisé comme proxy a permis en effectuant des mesures d'âges sur toutes les phases minéralogiques majeures (plagioclase, biotite, amphibole et mésostase) présent au sein de la roche de montrer des différences significatives d'âges qui peuvent exister au sein d'une même roche. Par exemple, l'âge obtenu sur les phénocristaux de plagioclase est de 1132±22 ka (Fig. VII-2A). S'agissant des biotites et amphiboles des âges de 569±9 ka et 1386±37 ka (Fig. VII-2A) ont été obtenus respectivement. Alors qu'un âge de 184±5 ka a été obtenu sur la mésostase. Une démarche similaire a aussi été appliquée sur les échantillons 16CIO02 du dôme de Vârful Comlos et 16CIO09 du dôme de Piscul Pietros (Fig. VII-2B et C). Alors, il ressort clairement que dater un échantillon en roche totale reviendrait à faire une moyenne pondérée des différents âges de minéraux présents dans la roche ce qui a pour conséquence de biaiser les résultats et, l'âge résultant ne représente aucunement un âge d'éruption. De plus ce mécanisme à une forte incidence dans le cas du volcanisme récent où la moindre incorporation d'argon hérité aura pour conséquence de modifier drastiquement les âges.

D'ailleurs, en faisant un calcul théorique avec l'échantillon 15CIO01 (Fig. VII-2A) sur la base des concentrations de chaque minéral daté de la roche la moyenne pondérée donne un âge de datation sur roche totale théorique de 320 ± 8 ka qui est 74% plus âgé que l'âge de 184 ± 5 ka obtenu sur mésostase. Cet âge théorique est d'ailleurs en accord avec l'âge réel de 400 ± 160 ka obtenu sur roche totale (Szakács et al., 2015).

$$\mathbf{Age}_{\text{théorique}} = \sum (\mathbf{A_i}*\mathbf{P_i}*\mathbf{K_i}) / \sum (\mathbf{P_i}*\mathbf{K_i})$$

Où A_i, P_i et K_i sont respectivement l'âge, la proportion et la teneur en K de chaque phase présente dans chaque grain i utilisé pour le calcul de l'âge.

Dater donc ces échantillons sur roche totale reviendrait à faire une moyenne pondérée des âges des différentes phases minéralogiques présentes ; et par conséquent, l'âge obtenu ne reflètera en aucun cas l'âge de l'éruption.

Indirectement, pour valider cette démarche, nous avons utilisé l'échantillon 16CIO08 du dôme de Muntele Puturusu (Fig. VII-2D), le seul échantillon ne présentant pas des glomérocristaux (<1% ; Cf. chapitre IV) donc pas de présence d'argon hérité qui provient le

plus souvent de ces glomérocristaux. Nous avons donc daté les microcristaux de plagioclases présents dans cet échantillon et un âge de 739 ± 19 ka a été obtenu, et est compatible à 1 sigma avec l'âge obtenu sur la mésostase de 704 ± 18 ka et à l'âge roche totale de 710 ± 50 ka.

Ainsi donc, en l'absence de glomérocristaux et autres phases minéralogiques formés plus tôt dans une roche, un âge roche totale pourrait être compatible avec les âges sur mésostase car, l'âge obtenu sur roche totale qui est en fait une moyenne pondérée des âges des différentes phases en présence serait moins impacté. Il était donc logique que l'âge roche totale soit compatible avec le nôtre pour l'échantillon 16CIO08.

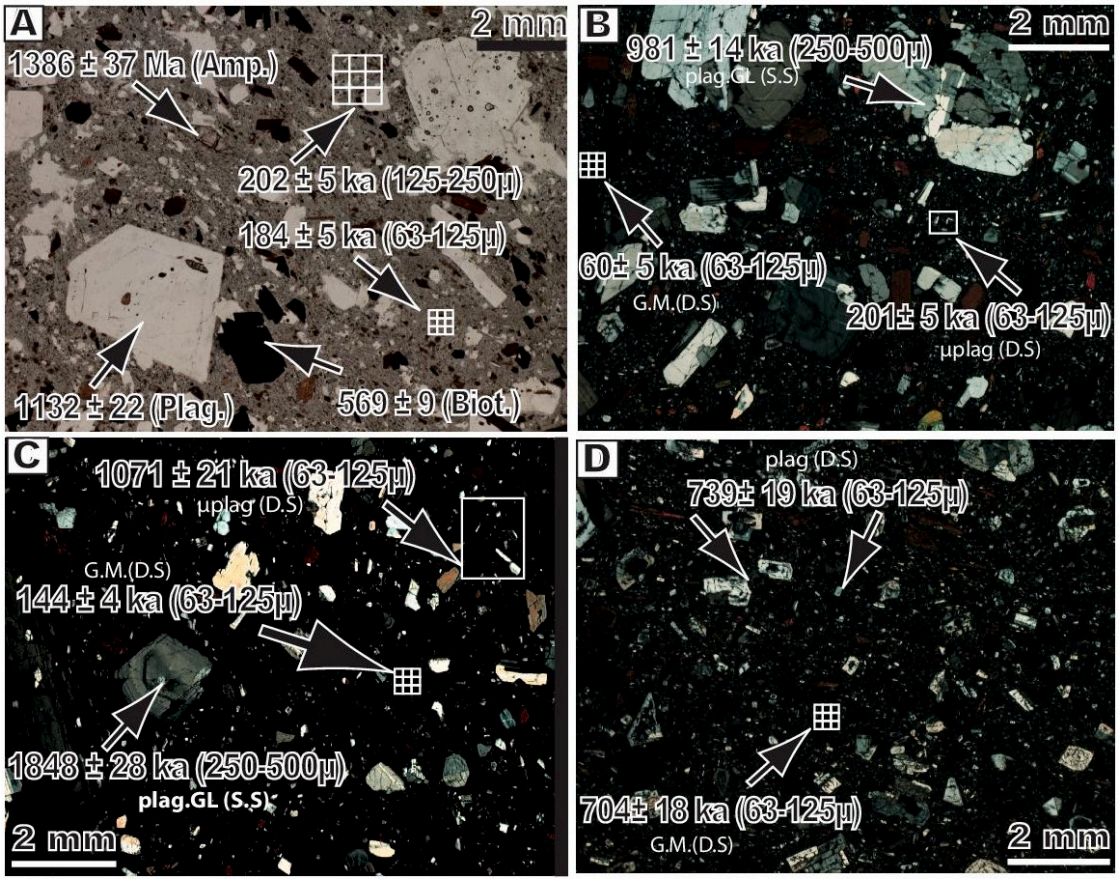


Fig. VII-2 :Analyse of the origin of the biasing of whole-rock age by presence of phenocrysts. Amp=amphibole; Plag. = plagioclase; Biot. = Biotite and the small white grids represent age of groundmass. (A: 15CIO01 (Dealul Cetăţii); B: 16CIO09 (Piscul Pietros); C: 16CIO02 (Vârful Comlos); D: 16CIO08 (Muntele Puturusu).

VII.1.1.3 Influence de la taille de la fraction datée

La taille de la fraction utilisée pour dater a été également testée afin de souligner l'importance de l'extraction de la mésostase par une séparation en deux étapes au lieu d'une seule. À partir de l'échantillon 15CIO01 (Fig. VII-2A), la fraction 125-250 µm a été préparée et la mésostase extraite. Cette fraction a été analysé et a donné un âge de 203 ± 5 ka alors que l'âge sur la mésostase obtenue sur la fraction issue d'une double séparation 63-125 µm a donné un âge de 184± 4 ka (Fig. VII-2A). Ces 2 résultats sont incompatibles à 2σ, la fraction doublement

séparée étant de 10% plus jeune. Nous avons interprété cette faible différence comme résultant des restes dans la préparation en une seule étape de petites parties de glomérocristaux de plagioclase hérité, dont le bord se composerait des grains mélangés d'une proportion importante de pâte et une petite proportion de plagioclase hérité provenant des glomérocristaux typiques de ces roches. Comme ces glomérocristaux de plagioclase sont significativement plus vieux que l'âge d'éruption, ils affectent les résultats obtenus sur une fraction de mésostase incorporée à n'importe quelle partie d'entre eux. La même observation est visible au niveau des échantillons de 16CIO02 et 16CIO09 (Fig. VII-2B et C) où l'âge des petits grains de plagioclase et de la mésostase ayant bénéficié d'une double séparation ont montré des âges significativement plus jeunes que ceux des glomérocristaux de plagioclases issus d'une seule séparation.

Ainsi, cette double séparation et le travail méticuleux dont ont bénéficié les échantillons de ce complexe a permis de montrer que pour un volcanisme récent (< 1 Ma) notamment celui des Carpates (Ciomadul), travailler sur roche totale serait à proscrire car, la présence de xénolites, des glomérocristaux avec leur lot d'argon hérité sont responsables du vieillissement des formations. Aussi, une double séparation serait aussi judicieuse pour s'affranchir au maximum d'une éventuelle présence de glomérocristaux pouvant alors décaler légèrement les résultats d'âges (Cf. Chapitre III et IV).

VII.1.1.4 Comparaison de nos résultats avec les âges (U-Th) /He

Parmi nos 11 échantillons, cinq ont été préalablement datés via le chronomètre (U-Th)/He sur zircon (Karátson et al., 2013; Harangi et al., 2015a; Molnár et al., 2018). Pour le dôme Muntele Puturosu (16CIO08), l'âge (U-Th)/He de 642 ± 44 ka de Molnar et al. (2018) est compatible à 2σ avec notre âge de 704 ± 18 ka. Au niveau du dôme de Bálványos nos âges de 641 ± 9 ka (16CIO07) et 440 ± 12 ka (16CIO06), sont compatibles à l'âge de 583 ± 30 ka (U-Th)/He de Molnar et al. (2018). Au niveau du dôme Haramul Mic un âge (U-Th)/He de 163 ± 11 ka est proposé par Molnár et al. (2018). Cet âge est plus jeune que le nôtre de 245 ± 24 ka obtenu sur des micro phénocristaux de plagioclase. Cette différence est tout à fait plausible car comme nous l'avions déjà mentionné, notre âge étant obtenu sur des plagioclases, il représente un âge maximum de l'éruption. Donc, l'âge (U-Th) /He plus jeune, est tout à fait compatible avec notre interprétation.

Pour le dôme Dealul Cetăţii, notre âge de 184 ± 5 ka n'est pas compatible même à 2σ avec l'âge de 116–142 ka de Karátson et al. (2013). Notre âge de 60 ± 5 ka au niveau du dôme dacitique de Piscul Pietros (Köves Ponk) est plus vieux que l'âge (U-Th)/He sur zircon de 42,9 + 1,4-1,5 ka (Harangi et al., 2015a). Cependant, pour cet échantillon spécifiquement, l'âge (U-Th) /He

pourrait être trop jeune. En effet, dans le protocole analytique de cet échantillon, seuls quatre zircons ont été datés ou conservés et par la suite, parmi ces 4 zircons, seuls les trois zircons les plus vieux sont contemporains ; ainsi, en faisant abstention de l'âge le plus jeune qui ne devrait pas être pris en compte lors du calcul de l'âge moyen, on obtient un âge d'environ 46 ± 4 ka qui est compatible avec notre âge K-Ar à 2σ.

Ici, contrairement aux âges K-Ar sur roche totale, nos résultats sont comparables avec ceux obtenus par le chronomètre (U-Th) /He. Cependant, nos âges K-Ar sur mésostase sont mieux contraints que tous ces précédents âges roche totale et (U-Th) /He.

VII.1.2 Evolution temporelle des volcans Pilişca, Varghis, Seaca-Tătarca et Călimani du segment CGH

Tous les âges obtenus sur la mésostase de coulées de lave de chacun de ces édifices selon la technique Cassignol-Gillot ont tous été compatibles avec les précédents âges K-Ar obtenus par la méthode conventionnelle sur roche totale (Pécskay et al., 1995a; Seghedi et al., 2004b; Seghedi et al., 2005b; Szakács et al., 2015) (cf. Chapitre V). Cependant, nos âges sont systématiquement mieux contraints avec des incertitudes plus faibles (0.1 Ma) comparés aux précédents âges disponibles avec des incertitudes variant entre 0.4 à 0.5 Ma. Avec de telle précision, il a été donc possible de réévaluer les précédentes durées de construction de deux volcans de ce secteur.

Au niveau du volcan Seaca-Tătarca, suite à un échantillonnage représentatif de l'ensemble de l'édifice (Fig. VII-3B) et grâce à sa belle symétrie, nous avons pu démontrer que la précédente période de construction proposée de 1+0.4 Ma était largement surestimée et ceci n'était qu'une des conséquences des incertitudes trop grandes associées aux âges roche totale. Pour ce volcan nous avons donc proposé une période de construction de 340±140 Ka (cf. chapitre V) correspondant à une durée où le volcan était construit à hauteur de 100 %.

Pour le volcan Vârghiş, dans le secteur nord de Harghita, les précédentes datations étaient contraintes entre 5,6 ± 0,3 Ma à 4,9 ± 0,2 Ma (Pécskay et al., 1995) tandis que dans ce travail, l'âge de l'activité volcanique la plus ancienne a été daté à 5,47 ± 0,08 Ma (17EC08) et la plus jeune à 4,61 ± 0,07 Ma (17EC11) (Fig. VII-3C) ce qui étend son activité vers une période plus récente contrairement à la précédente proposée par (Pécskay et al., 1995). Nous avons proposé une durée de construction de 900 ± 110 ka.

Au niveau du volcan Pilişca, nos âges sont tous cohérents avec leurs positions stratigraphiques et Par exemple, l'échantillon 17EC14 (1,98 ± 0,06 Ma) ne se distingue pas de

l'âge K-Ar sur roche totale de 1,93 ± 0,09 Ma (Szakács et al., 2015) obtenu sur un échantillon de la même zone (Fig. VII-3D).

Au niveau du secteur de Călimani, nous avons daté son activité volcanique la plus récente identifiée au niveau de Pietricelul (17KEL1) de 6,69 ± 0,10 Ma et compatible avec l'âge K-Ar roche totale de 6,7 ± 0,5 Ma (Pécskay et al., 1995) (Fig. VII-4). Ces nouveaux âges s'inscrivent tous correctement dans la tendance générale de diminution des âges du nord vers le sud du segment volcanique de CGH (Fig. VII-3A, B, C et Fig. VII-4).

VII.1.3 Synthèse

En conclusion, bien plus que les valeurs absolues des âges qui sont assez similaires, L'apport majeur des nouveaux âges s'évalue en termes de précision, l'incertitude étant réduite d'un facteur 3 à 5 (typiquement autour de 0,4 ma vs 0,1 Ma). Cette amélioration est cruciale afin de définir correctement le dynamisme du volcanisme qui utilise la durée de l'activité volcanique, dont la précision est directement affectée par l'incertitude associée aux âges. Toutefois, l'homogénéité des âges et des incertitudes pour les laves d'un même complexe atteste de la qualité de l'échantillonnage, des bonnes préparations et des mesures. En effet, les âges obtenus sur les laves d'un même édifice volcanique ne présentent pas d'écarts importants et restent, dans la limite des incertitudes cohérentes (Fig. VII-3).

Contrairement au volcanisme récent (celui de Ciomadul), nos âges du secteur nord de CGH sont tous compatibles avec les âges roches totales. Ceci est interprété comme le fait que à ces gammes d'âges les excès d'argon affectant parfois des datations K-Ar sur roche totale sont noyés dans les barres d'erreurs et, comme ils sont vieux, le shift ne se fait pas aussi ressenti comme dans le cas du volcanisme récent.

Pour ces gammes d'âges, la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ nous permettant de déceler des pertes ou d'excès d'argon est parfois utilisée. Cependant, dans le cas du volcanisme calco-alcalin comme celui de CGH, les âges $^{40}Ar/^{39}Ar$ sont peu fiables compte-tenu, entre autres, de l'irradiation des échantillons et la formation des isobares (principalement avec le calcium,) pouvant biaiser le calcul d'âge et des effets de recul d'argon.

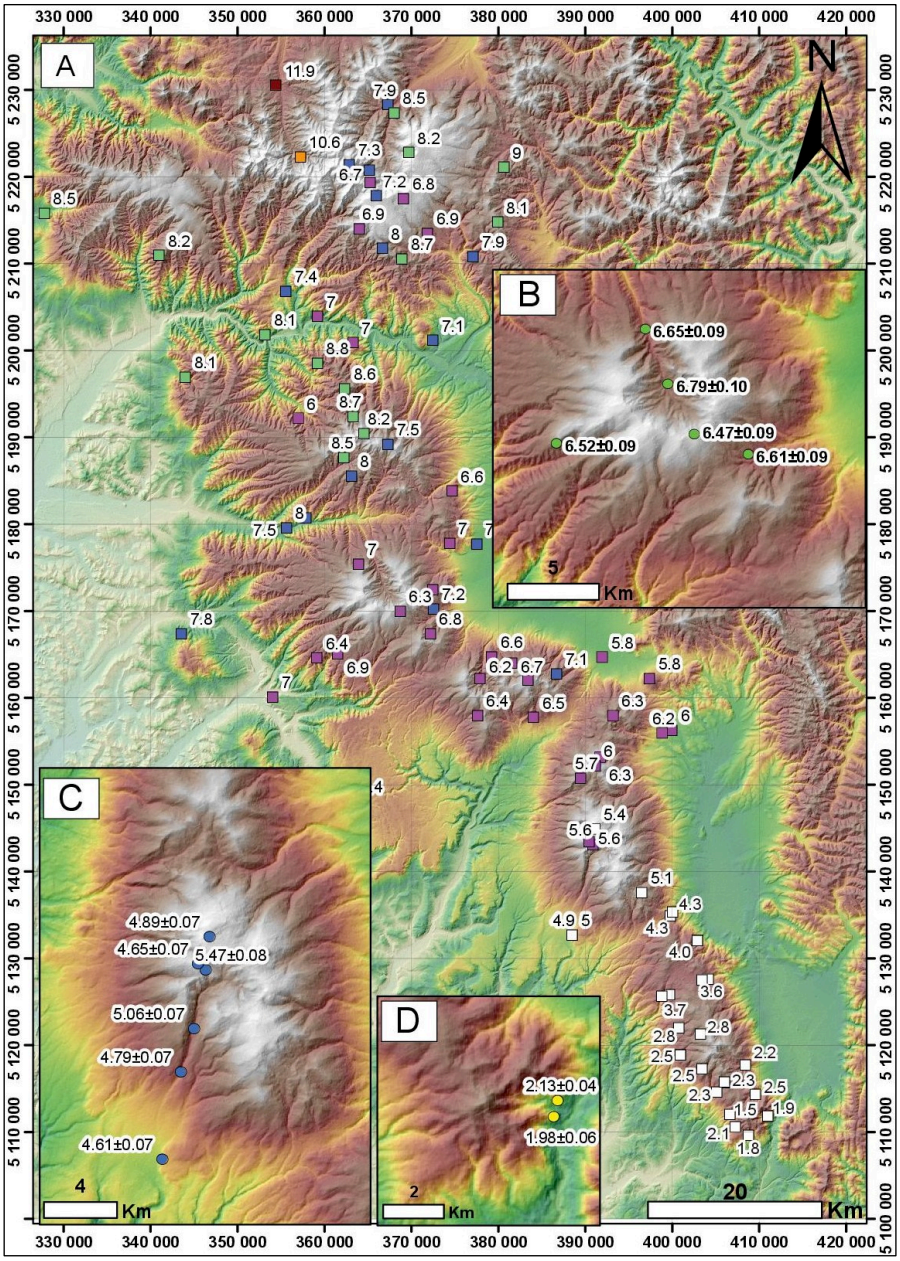


Fig. VII-3 : A) previous ages based mostly on K-Ar dating on whole rock. New unspiked K/Ar ages (in Ma): B) Seaca-Tătarca volcano. C) Vârghiş volcano. D) Pilişca volcano.

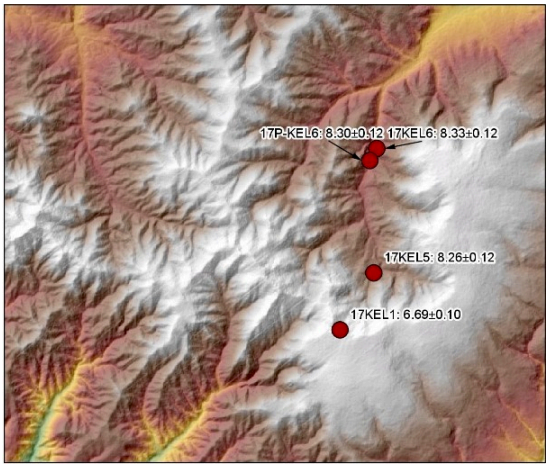


Fig. VII-4 : : New unspiked K/Ar ages (in Ma) for Călimani

VII.2 Evolution spatio-temporelle des Carpates occidentales : complexe de Börzsöny et les champs volcaniques de Bükk et Mátra

(1) Au niveau du secteur de Börzsöny, les âges obtenus sur mésostase de cette étude, compris entre 15,11 ± 0,21 et 14,27 ± 0,20 Ma, sont en accord avec leur position stratigraphique et sont 2 à 5 fois mieux contraints que les précédents âges K-Ar obtenus sur roche totale (Pantó, 1970; Balla and Korpás, 1980; Karátson, 1995; Karátson et al., 2000) (cf. discussion chapitre VI).

(2) Au niveau des monts Bükk et Mátra nous avons distingué 2 groupes caractéristiques : (I) un groupe situé dans la partie Ouest du champ volcanique de Bükk formé des 3 affleurements à proximité de Mátra 18Tar (13.24±0.19 Ma), 18MB (14.05±0.20 Ma), 17GAL (14.08±0.21 Ma) et ceux de l'ouest de Bükk 18DS (13.13±0.20 Ma), 18WC05 (14.3±0.20 Ma) dont la polarité inverse caractéristiques et leur très bon groupement laissent supposer un épanchement lors d'éruptions assez rapprochées dans le temps (13.13-14.3) correspondant aux secteurs sans rotations significatives (~10°). (II) Un second groupe caractérisé sur une base purement paléomagnétique par des déclinaisons magnétiques élevées dans la polarité normale (Bogács, Harsány, Tibolddaróc). Ici, seul l'âge obtenu sur l'échantillon 18WC01A (16.54±0.24 Ma) est en accord avec les données paléomagnétiques qui montrent une déclinaison de 174° dans la polarité nord correspondant à une rotation de ~28°.

Cependant, nos âges K-Ar au niveau de Harsány et Tibolddaróc ne sont pas en accord avec les données du paléomagnétisme. En effet avec des déclinaisons de 309 et 308° dans la polarité normale, on s'attendrait à obtenir des âges beaucoup plus vieux (>16 Ma) car, ils correspondraient à une rotation de ~50°. Les âges obtenus sont donc significativement jeunes et sont même les plus jeunes de tout le champ volcanique de Bükk. Pour l'échantillon 18WC03, nous avons conclure à une altération hydrothermale de nos biotites ce qui a entrainé une perte de potassium et un âge un peu plus vieux de 13.1 Ma (cf. discussion chapitre VI).

VII.3 Reconstructions numériques

Les reconstructions numériques des paléo surfaces réalisées grâce au logiciel ShapeVolc nous ont permis de déterminer les volumes post-éruptifs (volumes de construction) des différents volcans composites constituant le segment volcanique de CGH. Par la suite, une quantification de volume de matériel érodé a été déduite. Cette reconstruction numérique est passée par deux étapes majeures : (1) modélisation de la surface de base anté volcanique sur laquelle s'est construite les volcans de la chaîne CGH et, (2) une extraction des secteurs non

érodés (surfaces pré-érosionnelles) des édifices volcaniques pour la modélisation de leurs paléo enveloppes tels qu'ils étaient immédiatement à la fin de leur édification.

VII.3.1 Modélisation de la surface de base anté-volcanique

La reconstruction numérique d'un volcan passe par la connaissance de la surface de base sur laquelle il s'est construit ; elle est donc l'une des surfaces la plus significative et la plus importante dans la modélisation d'un volcan et pour les calculs de volumes des édifices. Or le plus souvent, cette surface n'est pas accessible directement et nécessite donc de faire recours à des méthodes indirectes pour sa définition. Son identification passe donc par la reconnaissance préalable de l'édifice volcanique et par la suite la recherche des points de contraintes représentant de façon indirecte cette surface. Sa démarche consiste le plus souvent de sélectionner des structures ou éléments géologiques représentant les vestiges de cette surface comme, les intersections des limites de volcans avec d'autres faciès géologiques. Dans cette étude, l'observation de la plupart des édifices volcaniques de la chaîne CGH, en particulier ceux situés dans les secteurs de Gurghiu et Harghita, sont le plus souvent entourés d'éléments étendus appelés volcanoclastiques (Szakács and Seghedi, 1990) caractérisés principalement par une forme convexe leur conférant une aptitude importante à résister à l'érosion au fil du temps. Tout le challenge de cette étude a donc été d'être capable d'extraire de telles éléments qui se sont bien mis en place avant le volcanisme Miocène de la chaîne de CGH décrit comme les éléments représentatifs de la surface de base sur laquelle tous les volcans de CGH se sont construits ultérieurement (Szakács and Seghedi, 1995; Karátson and Timár, 2005).

L'extraction de ces surfaces comme décrit aux chapitre III et V ont été interpolé en utilisant le krigeage qui est l'un des meilleurs estimateurs linéaires non-biaisé et a aussi l'avantage de générer des cartes d'incertitudes associées pour chaque modèle assorti. Cette surface modélisée s'est trouvée en parfait accord avec les précédentes descriptions de (Szakács and Seghedi, 1990, 1995; Karátson and Timár, 2005) (Cf. Chapitre V).

Il est alors crucial de noter qu'une mauvaise identification ou une mauvaise définition de la paléo altitude de cette surface de base aura une influence drastique sur les volumes soit par une surestimation des volumes calculés, soit à une sous-estimation des volumes associés. Cette notion a été largement validée par les travaux de (Grosse et al., 2012; Euillades et al., 2013). Ainsi, cette surface aura une très grande influence sur les volumes calculés, par exemple, l'incertitude associée à nos volumes dépendra de la somme quadratique de l'incertitude du volcan construit (par ShapeVolc ou par krigeage) et de l'incertitude liée à l'estimation de cette surface de base (carte d'incertitude générée par krigeage) (cf. chapitre V).

VII.3.2 Modélisation numérique des paléo surfaces des volcans

VII.3.2.1 Pertinence du choix de ShapeVolc au détriment du Krigeage

Dans cette étude, les édifices volcaniques du long de la chaîne de CGH, ont été numériquement modélisés principalement par ShapeVolc (SV) et un seul volcan Pilisca a été modélisé par Krigeage. Ce choix s'explique par le fait que :

(1) Les édifices volcaniques se construisent le plus souvent autour d'un point d'émission magmatique qui est vu comme ponctuel au regard de la taille final du volcan, ce qui confère à ces derniers une géométrie au premier ordre qui s'apparente à une symétrie de révolution. Or ce critère premier de la géométrie volcanique n'est pas pris en compte dans une interpolation par krigeage.

(2) De plus, un modèle résultant d'une interpolation par krigeage passe, dans l'ensemble, au niveau des points de contraintes sélectionnés ce qui est en contradiction avec la modélisation d'une surface pré-érosionnelle qui se doit d'être au minimum aussi haut que l'ensemble des points de contraintes dont l'altitude actuelle ne peut mathématiquement être moindre que celle de la surface avant les effets de l'érosion. Par conséquent, les calculs de volumes issus d'une telle interpolation ne permettront pas d'obtenir des volumes réalistes au sens strict du terme mais, plutôt des volumes minima de la morphologie post-éruptive de l'édifice volcanique en question.

(3) Aussi, puisque notre chaîne volcanique présentait des volcans avec de grandes dépressions centrales (caldera (Fig. VII-5), cratère d'effondrement et/ou d'érosion), le krigeage ne saurait interpoler dans ces secteurs et, nous obtiendrons des modèles fortement aplanis dans la zone centrale si cette dernière est dépourvue de points de contraintes (courbe rouge sur Fig. VII-5 B).

Ainsi, dans le but de s'affranchir des problèmes inhérents à l'interpolation par krigeage, les reconstructions numériques de ce travail ont été élaborées en utilisant l'algorithme ShapeVolc. Par exemple, dans le cas des volcans fortement démantelés avec présence des calderas et ou cratères en leur sommet, les modèles issus d'une interpolation par krigeage réduisent significativement les volumes initiaux. Pour le volcan Fâncel-Lăpuşna par exemple (Fig. VII-5A et B), l'écart de volume entre notre modèle ShapeVolc (courbe verte sur Fig. VII-5B et celui obtenu par krigeage (courbe rouge Fig. VII-5B) est de l'ordre de 25 % soit un volume de 266 km^3 par krigeage contrairement au volume de 355 km^3 proposé par ShapeVolc.

S'appuyant essentiellement sur l'algorithme du simplex (Nelder and Mead, 1965), ShapeVolc recherche le jeu de paramètre qui minimise une fonction de coût, laquelle est paramétrable par les éléments de géométrie de l'édifice volcanique que sont (1) la localisation de l'axe de révolution (X, Y), l'altitude du sommet (Z), l'ellipticité de l'édifice dans un plan horizontale et l'excentricité des ellipses. De plus, dans le but de prendre en considération les irrégularités des volcans, ShapeVolc autorise également une modélisation au second ordre.

Ainsi, pour tous les volcans de CGH étudiés et modélisés via cet algorithme, nous avons appliqué à tous nos modèles une géométrie elliptique et un ajustement au second ordre ce qui a permis le meilleur ajustement des modèles. Cependant, pour des volcans ne présentant pas de symétrie de révolution comme des volcans qui se présenterai sous une forme topographique particulière (amas de dômes par exemple ; Fig. VII-6), ShapeVolc ne saurait interpoler une telle surface et dans ce cas, le krigeage peut être utilisé comme alternative. C'est le cas du volcan Pilişca dont ShapeVolc n'as pas été capable de modéliser son enveloppe. En effet, le volcan Pilişca (16) le dernier volcan modélisé numériquement dans cette étude a bénéficié d'une modélisation par krigeage.

Cela peut paraître contradictoire d'avoir écarté le krigeage pour la modélisation des autres volcans et, de subitement le réutiliser pour ce volcan. En effet, compte tenu de sa forme topographique particulière qui ne présente pas de symétrie de révolution au premier ordre, le modélisé avec ShapeVolc n'était pas pertinent. Ainsi donc, le krigeage a été préféré car, sur ce volcan nous avons noté une distribution quasi homogène des points de contraintes le long de toute la surface du volcan (Fig. VII-6A) ce qui autorisait largement l'utilisation du krigeage. De plus, ce volcan ne présentant pas de grandes dépressions sommitales comme la plupart de ces homologues, une modélisation par krigeage ne souffrirait pas d'un aplanissement de modèle comme souvent observé dans les secteurs où il n'existe pas de points de contraintes. Alors, une modélisation par krigeage a permis de reconstruire son enveloppe initiale. Cependant, le volume issu d'une telle modélisation sera considéré comme un volume minimum.

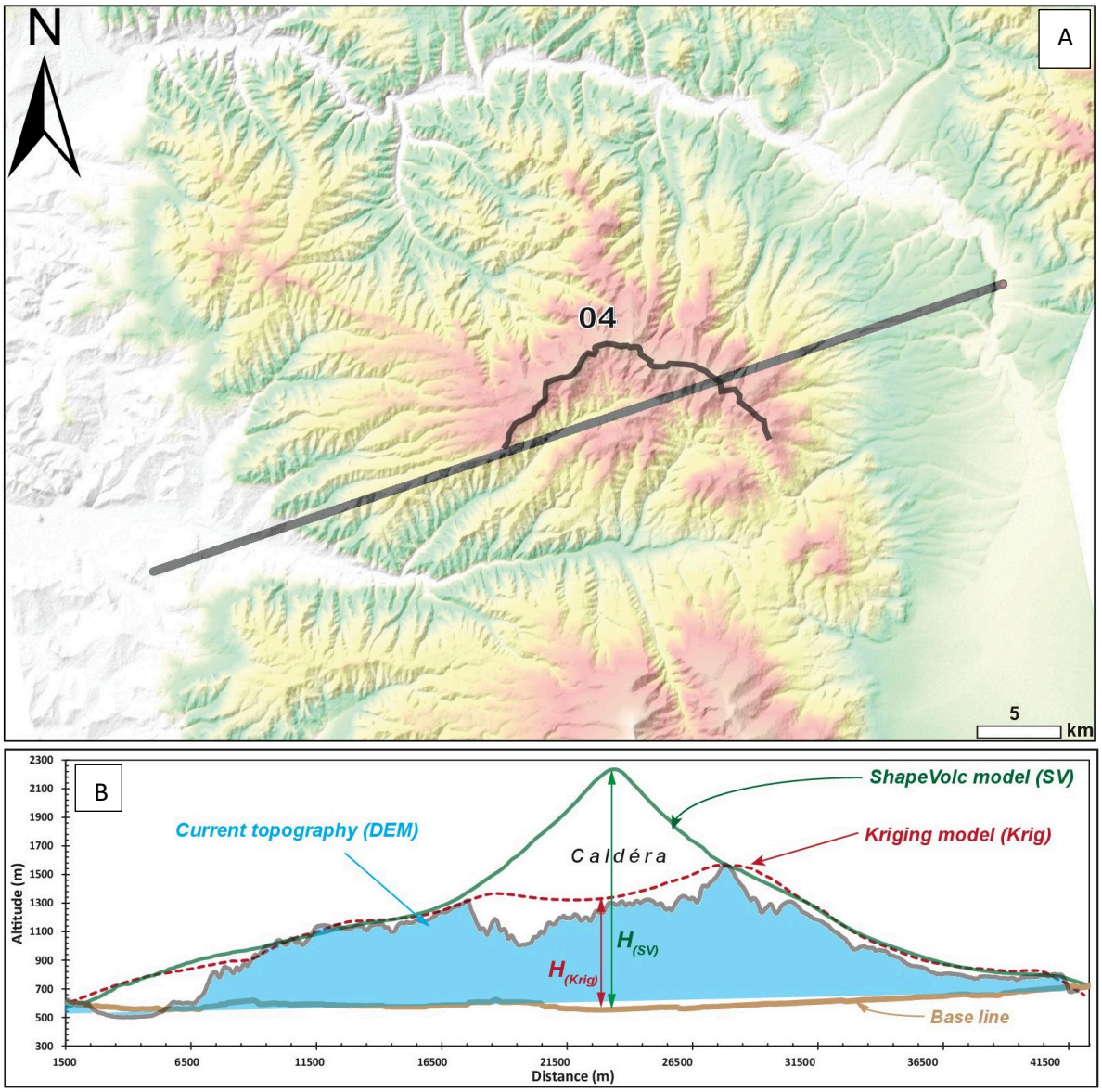


Fig. VII-5 : A) Représentation du volcan Fâncel-Lăpuşna (04) avec sa caldéra et le trait de coupe (ligne noire). B) Exemple de graphe altitude versus distance montrant la différence entre un modèle reconstruit par kriging (courbe rouge), celui reconstruit via ShapeVolc (courbe verte), la courbe bleue représente le MNT actuel et la courbe correspond à la surface de base anté-volcanique.

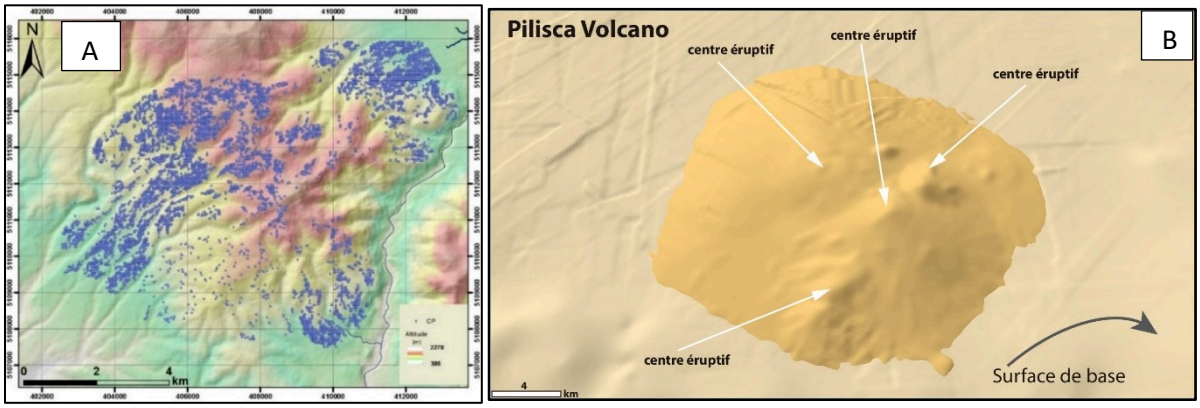


Fig. VII-6 : A) Distribution quasi uniforme des points de contraintes le long du volcan Pilişca (2D) B) représentation 3D du volcan Pilisca reconstruit pas krigeage avec ces différents centres éruptifs et sa forme topographique particulière ne montrant pas de symétrie de révolution réelle.

En se basant sur les surfaces pré-érosionnelles sélectionnées en utilisant différents outils morphométriques à savoir : la pente des édifices, l'indice de pente topographique et l'angle d'ouverture, 20 édifices volcaniques le long du segment CGH ont été reconstruits par notre approche (Fig.VII-7). Les caractéristiques morphométriques générales de chaque volcan obtenu à partir des modèles sont résumées dans la table en annexe du chapitre V. Ces volcans reconstruits sont caractérisés par des tailles assez contrastées allant des volcans de petites tailles (comme l'édifice Râchitis, (12)) aux volcans de grandes tailles (comme Călimani/Rusca-Tihu (01) ; Fig.VII-7).

Les paramètres morphométriques de ces différents volcans se regroupent en deux types de profil selon leur forme concave principale (modélisée par une courbe exponentielle et polynomiale) ou convexe (modélisée par une courbe gaussienne). Les valeurs d'excentricité de ces volcans varient de 0,16 (pour le cas des édifices quasi circulaires) à 0,80 (édifices fortement allongés). Les incertitudes des surfaces modélisées varient de 24 m pour l'édifice Râchitis à 82 m pour l'édifice Central Călimani/Rusca-Tihu (01).

(1) Au niveau du secteur géographique de Călimani, pour le volcan Rusca-Tihu (01) c'est une courbe exponentielle concave avec un sommet escarpé qui s'est le mieux ajusté à ses flancs, tandis que la géométrie des contours est assez circulaire (l'excentricité est de 0,23). Ce volcan modélisé a donné une paléo altitude original de 2899 m a.s.l proche de la valeur de 3000 m proposée par (Szakács and Seghedi, 1996). En revanche, l'édifice Moldovanul (# 02) a été modélisé par une forme concave (profil gaussien), c'est-à-dire avec un sommet relativement plat, et sa géométrie des contours plus elliptique montre une excentricité de 0,37.

(2) Dans le sud de Harghita, quatre volcans ont été reconstruits. Luci-Lazu (14a et 14b) et Cucu 15 ; Fig.VII-7) présentant des formes elliptiques contrastées avec une excentricité de 0,20 et 0,49, respectivement. Les meilleures fonctions qui s'ajustent à ces modèles sont des profils quasi linéaires (i.e., des formes quasi coniques).

(3) Au niveau du secteur géographique de Gurghiu, trois de ces sept volcans Jirca (03), Făncel-Lâpuşna (04A et B), Bacta (05) et Borzont (08) montrent une excentricité relativement élevée de 0,61 (allongé) à 0,80 (très allongé), tandis que les volcans de Seaca-Tătarca, Şumuleu et Ciumani sont quasi circulaires (excentricité entre 0,16 et 0,37). Cependant, tous les volcans de ce secteur ont une forme concave (Fig.VII-7).

(4) Au nord du secteur Harghita (Fig.VII-7), tous les volcans modélisés à l'exception du volcan Râchitis avec son profil convexe, présentent une forme elliptique avec des valeurs d'excentricité variant entre 0,33 et 0,80 et des profils concaves.

Les fortes valeurs d'excentricité enregistrées dans les secteurs de Gurghiu et Harghita du nord (0.33-0.80) contrairement aux deux autres secteurs sont en accord avec la tectonique locale. En effet, un faible mécanisme d'étalement ayant été mis en évidence dans la partie axiale du segment volcanique de CGH (Gurghiu et Harghita du Nord) avec comme conséquence, un étalement unidirectionnel préférentiel vers l'ouest (Cf. chapitre I) a eu comme conséquence majeure sur ces volcans où il s'applique de modifier la structure originelle du volcan initial à savoir, l'augmentation du diamètre des édifices et la réduction des différences de hauteur relative entre le centre et la périphérie du volcan (Delaney, 1992; Borgia, 1994; Merle and Borgia, 1996). Aussi, les profils plutôt concaves de tous les volcans reconstruits dans ce secteur sont aussi en accord avec un étalement de ces structures.

En revanche, pour le calcul des volumes, les volumes calculés ne seront pas différents des volumes d'origine puisque, l'effet d'étalement tel que présenté ci-dessus, ne modifiera que la forme du volcan, c'est-à-dire la diminution de la hauteur, qui sera ajustée par une augmentation du diamètre pour compenser cette hauteur perdue (au final, il s'agira juste d'une sorte de redistribution du matériel). La conséquence est que le volume calculé même avec ce petit effet donnera presque la même valeur que pour l'original. Ainsi, même avec le faible mécanisme d'étalement enregistré dans ces secteurs, nos calculs de volumes sont comparables aux volumes originels de ces édifices ; uniquement les formes originelles de ces volcans diffèrent probablement des modèles reconstruits.

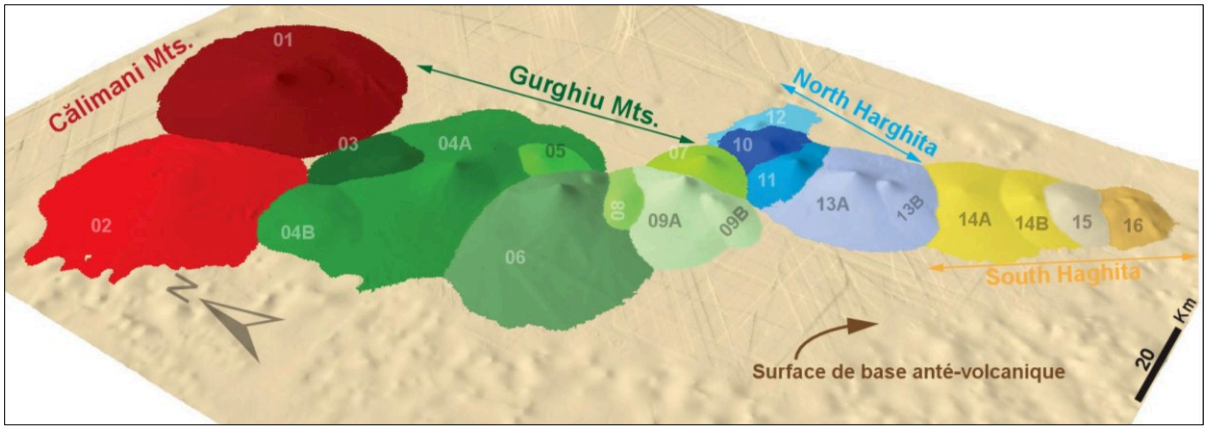


Fig.VII-7 : Modelled paleo-volcanic surfaces (as they would be directly after the cessation of volcanism, i.e. before erosion effect): Calimani (red); Gurghiu (green); North Harghita (Blue) South Harghita (yellow).

VII.4 Volumes post-éruptifs (volumes de construction)

Pour le détail des résultats de volumes, je renvoie le lecteur au chapitre V. Ici, je vais directement établir les différentes corrélations et comparaisons entre nos volumes et ceux de la littérature.

VII.4.1 Corrélation entre volume construit, hauteur et surface

La modélisation des volcans définit à la fois leur volume construit (V_C) et la superficie (A) sur laquelle ils ont été construits et la hauteur (H). Tous les volcans modélisés dans cette étude ont montré une très bonne corrélation entre le volume et l'aire ($R^2 = 0,93$) et la hauteur ($R^2 = 0,84$) (cf. chapitre V). En se basant sur les travaux de (Grosse et al., 2009), nous avons catégorisé les volcans de la chaîne de CGH. En effet, dans le diagramme hauteur versus volume proposé par (Grosse et al., 2009) (Fig.VII-8), nous avons montré que tous les volcans de cette chaîne indépendamment de leur complexité, de leur topographie et de leur histoire éruptive, appartenaient à la tendance des massifs tels que décrit par (Grosse et al., 2009). Ainsi, tous les volcans de cette chaîne sont en réalité des massifs d'un point de vue purement géomorphologique. En plus, en utilisant leurs volumes et leur superficie déduits (certains d'entre eux étant très irréguliers en raison de leur emplacement au-dessus ou autour d'anciens), à partir de nos 16 reconstructions indépendantes (chacune avec une forme différente, ces points de contraintes différents et tous modélisés au second ordre), nous avons obtenu à peu près une corrélation de 1,5 entre le volume et la surface (cf. Chapitre V) et entre le volume et la hauteur des édifices construits. Nous interprétons cette corrélation quasi idéale comme l'expression que ces volcans, même si chacun a connu sa propre histoire de construction (avec divers produits, phases éruptives, styles d'éruption volcanique), montre que leur construction individuelle à long terme a été moyennée comme une histoire assez similaire et commune. Une telle approche de quantification, basée sur des données d'âge précises et une morphométrie améliorée, peut être considérée comme une validation numérique de l'évolution prédite pour les volcans d'arcs lorsqu'ils évoluent d'un seul cône à un massif (Grosse et al., 2009).

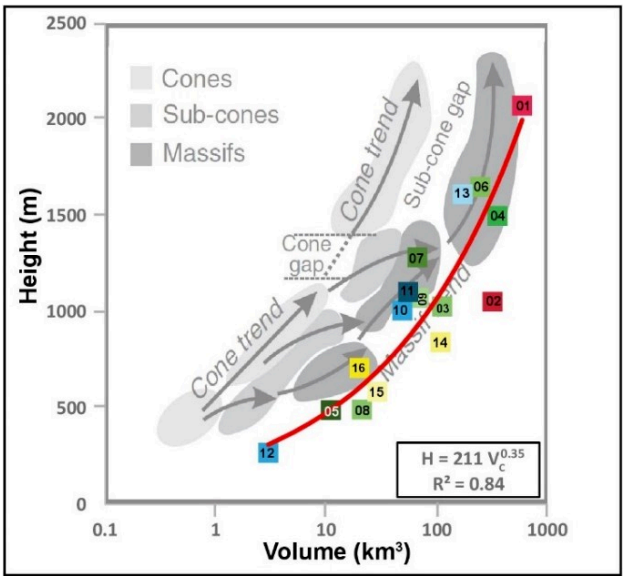


Fig.VII-8 : height and volume of CGH volcanoes plotted on the height versus volume diagram of Grosse et al. (2009) with fitting power-law function. Each number represent an individual as labelled in Fig. VII-8

VII.4.2 Comparaison des volumes construits avec les précédents résultats

La synthèse des volumes modélisés individuellement, c'est-à-dire avant tout démantèlement majeur, conduit à un volume construit total de 2300 ± 190 km^3 sur tout le segment volcanique de CGH sur une période de ~ 11 Ma. Comparer aux études précédentes, cette valeur est supérieure au volume totale de 1400 km^3 précédemment proposé par (Szakács et al., 1997) sur la même chaîne volcanique et aussi, elle est également supérieure au volume de 1606 km^3 proposé par (Karátson and Timár, 2005). Ces différences s'observent le plus dans les secteurs de Călimani et Gurghiu représentant les secteurs les plus démantelés de CGH.

En effet, à l'échelle de chaque secteur géographique, les volumes construits au niveau de Călimani ont les valeurs les plus contrastées (Compatibles uniquement à 2σ, carrés rouges sur la Fig. VII-9). Dans ce secteur, notre volume cumulé de 910 ± 140 km^3 est étonnamment comparable au volume de 784 km^3 proposé par (Seghedi et al., 2019) mais presque deux fois plus élevés que les volumes de 466 ± 45 km^3 de (Szakács et al., 1997) et de 420 km^3 (Karátson and Timár, 2005).

Dans le secteur de Gurghiu, beaucoup moins érodé que le secteur de Călimani, notre volume cumulé de 883 ± 117 km^3 est compatible à 1σ avec les valeurs de 709 ± 48 km^3 proposées par (Karátson and Timár, 2005) mais 2-3 fois plus élevé que les valeurs proposées par (Szakacs et al., 1997; Seghedi et al., 2019). Cette différence significative peut tout simplement provenir des insuffisances liées à l'approche utilisée dans les études précédentes et surtout de la difficulté à traiter des zones volcaniques fortement démantelées comme observé au niveau de Călimani et dans une seconde mesure à Gurghiu. En effet, les volumes de matériel émis quantifiés par (Szakács et al., 1997) étaient tout simplement basés sur une simple cartographie des formations volcaniques (utilisation des cartes et corrélation avec la taille des édifices pour proposer des volumes) ce qui n'est pas assez solide comme démarche ; de plus, cette démarche ne présente aucune contrainte sur le paramètre altitudinale pourtant paramètre fondamentale d'un volcan. Par contre, dans l'étude de (Karátson and Timár, 2005), les auteurs ont procédé à une démarche inverse c'est-à-dire, estimer le volume érodé et par la suite déduire le volume original du volcan. Dans le détail, ils ont tout simplement identifié au niveau des édifices volcaniques des secteurs manquants notamment les vallées et dépressions représentatives et par la suite, sur la base d'un profil empirique moyen de volcans sélectionnés dans tout le segment ils ont pu estimer les volumes nécessaires pour combler ces vallées ou dépressions ce qui les a permis d'obtenir un volume de l'édifice qui a été utilisé comme volume de matériel émis. Une telle démarche n'est pas rigoureusement vraie car en ne sélectionnant que les vallées profondes et représentatives, les auteurs négligent une très large partie de produit

volcanique qui ont été émis à des distances lointaines et aussi, les vallées actuelles ne sont pas représentatives du volcan tel qu'il a été immédiatement après sa formation. Fort de ce constat, nous avons donc conclut que ces volumes n'étaient que des valeurs indicatives. De plus, ces 2 approches développées dans les précédentes études peuvent encore avoir un sens si elles sont appliquées dans des secteurs dépourvus de dépressions sommitales (caldera, cratère et vallée profondes) car dans de telles conditions, le volcan n'étant pas assez démantelé, les précédentes approches pourraient logiquement donner des résultats comparables aux nôtres.

Comme dans ces études précédentes, la reconstruction de la paléoforme complète des volcans de Călimani (beaucoup plus démantelés que tous les autres édifices de CGH) et ceux de Gurghiu n'a pas été effectuée, il n'a pas été possible de déterminer des volumes réalistes, nous les avons donc légitimement considérés comme des minima.

Une autre source souvent responsable de variation de volume entre deux études est la définition de la surface de base anté-volcanique sur laquelle se construit les volcans. En effet, comme suggéré précédemment par (Grosse et al., 2012; Euillades et al., 2013), une définition erronée de la surface de base d'un volcan aura comme conséquence soit d'amenuir les valeurs de volume calculés ou alors, dans le cas de sa sous-estimation altitudinale d'augmenter les valeurs de volumes ce qui aura un impact direct sur la détermination du volume de l'ensemble du volcan et de tous les autres paramètres connexes. Ici, notre interpolation de la surface de base anté-volcanique est comparable avec les précédentes estimations de paléo altitude de cette surface (Szakács and Seghedi, 1995). Ce qui autorise donc légitimement, d'exclure ce cas de figure comme source principale ou secondaire de résultats différents entre les 2 études (cf. Chapitre V).

Le travail effectué dans cette thèse montre donc l'importance de la reconstruction des paléo surface notamment dans les secteurs fortement érodés pour estimer les volumes de matériel mis en jeu lors de l'édification des volcans.

Par contre, nos volumes cumulés dans le segment du nord de Harghita de 279 ± 41 km^3 et dans le segment de Harghita du sud de 165 ± 40 km^3 sont comparables aux valeurs précédemment proposées (207 - 285 km^3 et 120 - 180 km^3, respectivement). Ces résultats qui sont compatibles dans les 2 secteurs méridionales viennent également valider notre observation précédemment mentionnée que, pour des secteurs faiblement érodés, les résultats pourraient être comparable aux nôtres.

Puisque seul l'étude de (Karátson and Timár, 2005) a travaillé à l'échelle détaillée de chaque volcan, nous avons donc établis des comparaisons. Nos volumes et ceux de (Karátson

and Timár, 2005) montrent une bonne cohérence à 1σ à l'exception des 2 volcans de Călimani (Fig. VII-9). Les différences de volume observées sur les deux volcans voisins Şumuleu (09A, B) et Ciumani (07) (Fig.VII-7 ;

Table VII-1) mettent en évidence le problème crucial de l'extraction rigoureuse des paramètres morphométriques des volcans se chevauchant partiellement (Fig.VII-7). Nous avons obtenu des volumes de construction de 67 km^3 et 69 km^3, respectivement pour ces 2 volcans, tandis que (Karátson and Timár, 2005) ont proposé des volumes de 36,3 km^3 et 108 km^3 (

Table VII-1). Alors que le volume individuel diffère d'environ 40%, le volume total des 2 édifices est assez identique dans les deux études (136 km^3 vs 144 km^3). Ceci implique donc que dans l'étude de Karátson la valeur de 108 km^3 attribuée au volcan Şumuleu n'est en fait que l'incorporation à cet édifice d'une partie du volcan Ciumani. Par conséquent, le volume proposé de 108 km^3 de (Karátson and Timár, 2005) pourrait être une surestimation du volcan Şumuleu (09) car ayant ajouté une partie distale de matériel appartenant au volcan voisin Ciumani (07). Dans cette étude ce problème a été réglé sur la base de l'inspection méticuleuse du MNT, de l'identification des surfaces pré-érosionnelles en tenant compte des pentes, des bassins versants et des contraintes géochronologiques en harmonie avec la carte géologique récente de (Seghedi et al., 2019). Nous suggérons par conséquent que, les volumes de matériel émis pour ces des deux volcans sont comparables (avec des valeurs de 64 et 69 km^3) ce qui est d'ailleurs en accord avec les observations de terrain.

VII.4.3 Synthèse

En général, les résultats précédents et ceux présentés dans cette étude sont moins différents vers les volcans plus jeunes du sud de la Chaîne (Harghita du nord et du sud), ce qui signifie que dans des secteurs présentant des démentellement faibles comme dans la partie méridionale du segment, la dispersion des résultats est plus faible que celle des volcans fortement démantelés.

Dans l'ensemble, les volumes de cette étude sont plus élevés que les précédents (Fig. VII-9) en raison de l'intégration complète des volumes enlevés par érosion sur l'ensemble de l'édifice. Par conséquent, notre approche illustre l'importance de reconstruire une paléo-topographie complète de l'édifice volcanique, en particulier pour les volcans fortement démantelés tels que ceux du secteur de Călimani.

	Volcano	Volume construit (cette étude ; Km^3)	Volume construit: Karátson and Timár, 2005 (Km^3)
Călimani	Calimani (01)	592 ±115	309.3±40.4
	Modovanul (02)	320 ± 82	156.5±20.4
Gurghiu	Fâncel Lăpuşna (04)	355 ± 90	338.6±37.6
	Seaca Tatarca (06)	248 ± 57	202.0±26.4
	Ciomani (07)	67 ± 18	36.3±4.8
	Şumuleu (09)	69 ± 25	108.0±14.1
	Borzont (08)	21 ± 8	24.4±3.2
North Harghita	Osteros (10)	49 ±16	28.8±3.8
	Ivo-Cocoizos (11)	55 ±16	29.1±3.8
	Varghis (13)	172 ± 34	164.4±21.5
South Harghita	Luci-Lazu (14)	108 ± 37	74.3±9.7
	Cucu (15)	29 ± 11	54.4±7.1
	Pilisca (16)	20 ± 8	21.7±2.8

Table VII-1 : Comparison between new constructed volumes versus previously available volumes (Karátson and Timar, 2005). Red colour for Călimani area; green for Gurghiu; blue for North Harghita and Yellow for South Harghita.

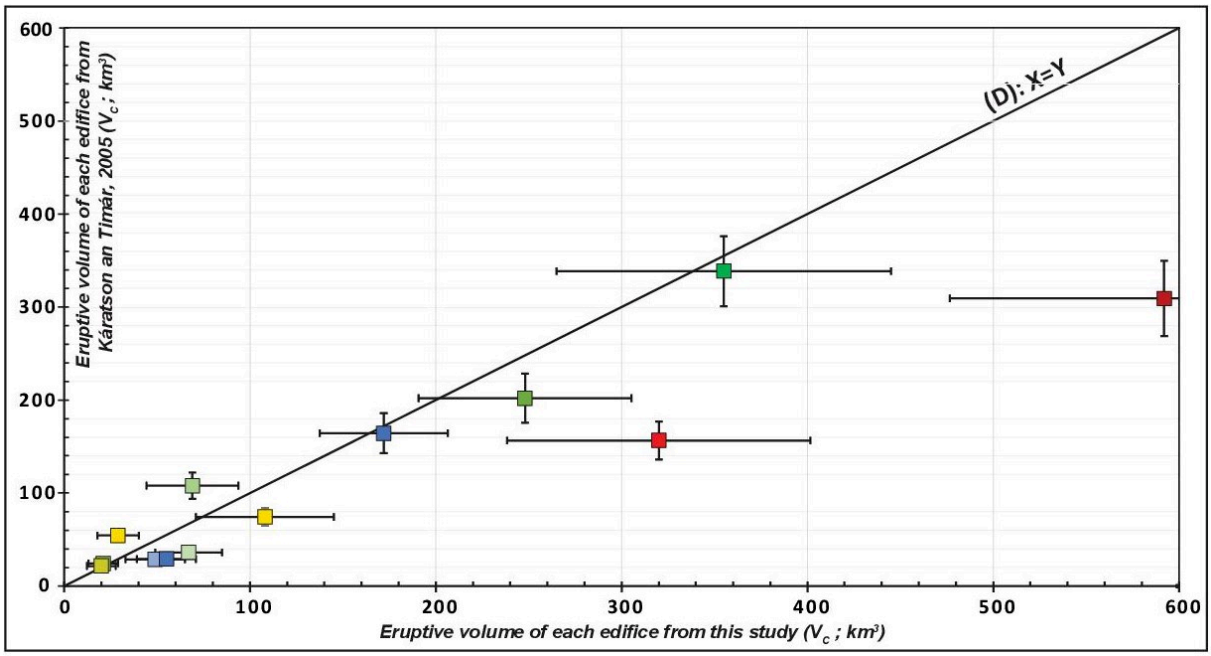


Fig. VII-9 : Comparison between new constructed volumes versus previously available volumes (Karátson and Timar, 2005)

VII.5 Taux de construction

Le taux de construction peut être utilisé comme un très bon indicateur indirect pour étudier le dynamisme, la fluctuation et l'intensité du volcanisme. A l'échelle individuel, de chaque édifice volcanique de CGH, on note des valeurs de taux de construction qui varie énormément le long de la chaîne avec des valeurs allant de 10 à 825 km^3/Ma. Sur l'ensemble de la chaîne CGH, nous avons calculé un taux de construction moyen de 200 km^3/Ma (représentant le rapport entre le volume total de matériel émis [2300 km^3] sur une durée de 11 Ma). Logiquement, cette valeur est plus grande que les valeurs de 152 et 164 km^3/Ma proposées par (Szakacs et al., 1997; Karátson and Timár, 2005). La projection de nos résultats de taux de

construction dans le graphe volume du volcan en fonction de la durée d'activité de (White et al., 2006) a mis en évidence au niveau de cette chaîne deux tendances bien distinctes de la production de magma (Fig. VII-10).

— (1) Une première tendance caractérisée par des volcans présentant des taux de constructions de 191-84 km^3/Ma et correspondant à un- un taux de construction moyen de 137 km^3/Ma pour les volcans de Calimani jusqu'au volcan Luci-Lazu (14).

— (2) Une seconde tendance formée de volcans présentant des taux de construction de 12-49 Km^3/Ma et correspondant à un taux de construction moyen de 28 km^3/Ma, pour les volcans Plio-Quaternaire du sud de Harghita, cinq fois plus faibles que le précédent taux (Chapitre V).

A ces 2 tendances, se distingue tout singulièrement le volcan Seaca-Tătarca avec le taux de construction le plus élevé de 825 km^3/Ma, de toute la chaîne volcanique (symbole jaune sur la Fig. VII-10). La valeur exceptionnellement élevée obtenu pour ce volcan est tout simplement le résultat de nos datations de haute précision qui a permis d'affiner et de réduire considérablement sa durée d'activité de 1±0.4 Ma précédemment proposé sur la base des âges roches totales (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b) à 340±140 ka (cette étude) . Une telle valeur élevée du taux de construction du volcan Seaca-Tătarca construit sur une période de ~340 ka correspond aux valeurs mondiales (réelles, à court terme) de taux de construction des volcans composites ; c'est le cas du volcan Parinacota au Chili (Hora et al., 2007).

Il est donc évident qu'une intense activité a été enregistrée lors de l'édification du volcan Seaca-Tătarca. De plus, même en considérant une durée d'activité typique de 1 Ma calculée pour la plupart des volcans de CGH du nord, nous obtenons également un taux de construction 2 fois plus élevé (~250 km^3/Ma) que la tendance générale donnée. Cela implique donc à la fois un dynamisme exceptionnellement intense de l'activité du volcan Seaca-Tătarca (06) et rappel la nécessité à obtenir des résultats d'âge plus précis pour les autres volcans de la chaîne, car, la durée d'activité de la plupart des volcans de CGH pourrait probablement être du même ordre de grandeur.

Cependant, à l'échelle mondiale, nos valeurs restent faibles par rapport aux valeurs des volcans andésitiques (carrés bleus en arrière fond sur la Fig. VII-10) provenant d'autres arcs liés à la subduction (White et al., 2006). Elles découlent des processus de génération de magma moins intenses à long terme (cette étude) contrairement aux fortes valeurs caractéristiques des zones où la subduction est plus intense, comme les Antilles, le Japon et les Andes (White et al., 2006).

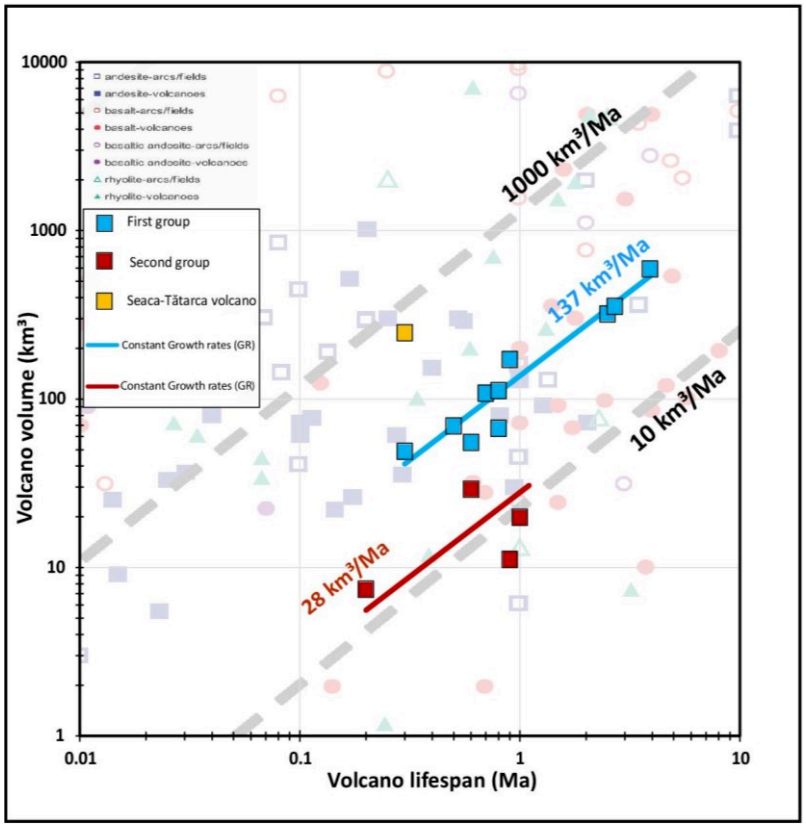


Fig. VII-10 : Volumes versus lifespan in a log-log diagram. Trends of both group (red and blue diagonal lines) as well as grey dashed lines represent constant rates of magma output. Background of the figure displaying various volcanic contexts around the world from White et al. (2006).

VII.6 Volumes érodés

La somme des volumes érodés de chaque édifice donne un total de 524 ± 125 km^3 pour l'ensemble de la chaîne volcanique de CGH et, un degré de dénudation moyen de de 22%, proche des 23% proposé par (Karátson and Timár, 2005). À l'échelle des 4 secteurs géographiques de la chaîne, les volumes totaux érodés de Gurghiu, du nord et du sud de Harghita de 190 ± 63 km^3, 39 ± 15 km^3 et 27 ± 24 km^3, respectivement, sont compatibles à 1σ avec les résultats proposés par (Karátson and Timár, 2005) (Fig. VII-11), alors que, notre nouvelle valeur pour le secteur de Călimani de 265 ± 105 km^3 est trois fois supérieure à la valeur précédemment proposée par (Karátson and Timár, 2005). Comme nous l'avons déjà traité plus haut, l'écart provient des volumes pré-érosifs considérés car, comme nous avons proposé pour Călimani un volume de construction significativement plus élevé, alors cela implique nécessairement un volume érodé plus important. A l'échelle de chaque édifice, les volumes érodés quantifiés dans cette étude sont relativement compatibles à 1σ avec les volumes proposés par (Karátson and Timár, 2005) exceptés les deux volcans du secteur de Călimani qui nécessitent un intervalle de 2σ pour être compatibles avec les précédents volumes (Fig. VII-11 et Table VII-2).

	Volcano	Volume érodé (cette étude ; Km^3)	Volume érodé de Karátson and Timár, 2005 (Km^3)
Călimani	Calimani (01)	158±85	61.9±25
	Modovanul (02)	108±61	31.3±13
Gurghiu	Fâncel Lăpuşna (04)	88±48	67.8±27
	Seaca Tatarca (06)	61±34	40.4±16
	Ciomani (07)	9±6	7.3±3
	Şumuleu (09)	12±19	21.6±9
	Borzont (08)	3±3	4.9±2
North Harghita	Osteros (10)	6±3	5.8±2
	Ivo-Cocoizos (11)	7±5	5.8±2
	Varghis (13)	25±14	32.9±113
South Harghita	Luci-Lazu (14)	18±23	14.9±6
	Cucu (15)	5±6	10.9±4
	Pilisca (16)	3±5	4.3±2

Table VII-2 : Comparison between new eroded volumes versus previously available volumes (Karátson and Timar, 2005). Red colour for Călimani area; green for Gurghiu; blue for North Harghita and Yellow for South Harghita.

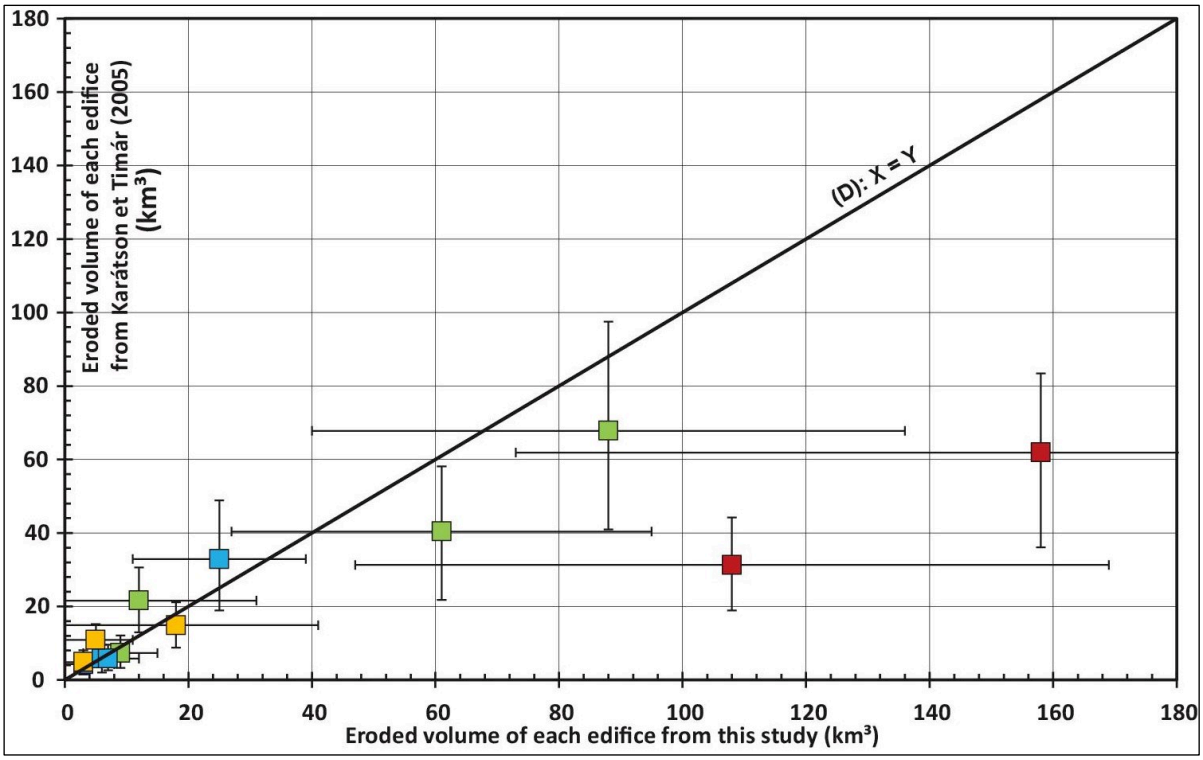


Fig. VII-11 : Comparison between new eroded volumes against previously available eroded volumes (Karátson and Timar, 2005). Same volcanic edifices as in Fig. VII-9.

VII.7 Taux d'érosion

Nous présenterons tout le détail de cette partie.

Les taux d'érosion calculés dans cette étude varient entre 8 m/Ma et 26 m/Ma pour chaque édifice volcanique. Pour l'ensemble de la chaîne CGH un taux d'érosion moyen de ~20 m/Ma est obtenu. Cette nouvelle valeur est inférieure au taux d'érosion de 31,5 m/Ma précédemment proposé par Karátson (1996). Comme nous le mentionnons déjà au chapitre II, ce « taux d'érosion » proposé par Karátson (1996) pour l'érosion à long terme repose

essentiellement sur la dégradation des cratères des sommets des volcans les plus élevés et, désigne donc, les crêtes non affectées par des écoulements fluviales. De plus, l'auteur n'a pas pris en compte les plus petits édifices d'altitude inférieure à 700 m, ce qui pourrait contribuer à surestimer ce taux moyen sur l'ensemble de la zone de CGH. Aussi, il est important de noter que ce taux est basé uniquement sur la diminution des régions situées autour du sommet du volcan et non sur l'ensemble du volcan (la dénudation globale) et par conséquent, ce taux proposé (31.5 m/Ma) aura tendance à être plus élevé (car la baisse ou le démantèlement est plus important(e) autour du sommet) que le taux de dénudation globale réel affectant l'ensemble de l'édifice volcanique. Une baisse plus importante autour du sommet est tout à fait logique car dans cette partie du volcan, il présente des pentes beaucoup plus fortes ce qui favorise un ruissellement plus abrasif et par ricochet un démantèlement plus intense. Également, au niveau des sommets on note une pluviométrie plus forte et dans des cas favorables une cryoclastie plus intense ; ce qui contribue à accentuer les taux d'érosions. En conséquence, un taux de dénudation affectant l'ensemble de l'édifice comme celui calculé dans cette étude aura plutôt tendance à être plus petit que celui proposé par Karátson (1996).

Ainsi donc, pour la chaîne volcanique de CGH, un taux d'érosion /dénudation de 31.5 m/Ma n'est pas plausible. Cependant, cette valeur montre l'efficacité qu'a l'érosion au niveau des parties sommitales d'un volcan.

A l'échelle des 4 secteurs géographiques de la chaîne CGH, nous avons obtenus des taux d'érosion moyen de 17 m/Ma pour Călimani ; 11 m/Ma pour Gurghiu ; 9 m/Ma pour Harghita du nord et 28 m/Ma pour le sud de Harghita qui ont conduit à déterminer le degré de dénudation des édifices de 30%, 25%, 20% et 15% (du nord au sud respectivement), confirmant la dégradation progressive des volcans vers le nord, tel que quantifiée pour la première fois par Karátson (1996).

L'étude efficiente de l'érosion et de sa dynamique en environnement volcanique passe le plus souvent pas, l'établissement des corrélations entre le comportement du degré de dénudation en fonction du temps, ce qui permet d'observer les comportements à court, moyen et long terme de l'érosion. Pour la chaîne volcanique de CGH, la corrélation du degré de dénudation (D_{Den}) de nos volcans en fonction du temps nous a permis d'établir des relations entre le taux d'érosion et le temps et surtout d'étudier dans le détail le comportement de l'érosion sur une fenêtre de près de 11 Ma.

La plus-value de cette étude a été notre capacité à analyser le comportement de l'érosion sur une période de temps relativement longue allant du volcanisme récent du complexe volcanique de Ciomadul mis en place entre 0.028 Ma et 0.85 Ma (points gris sur la Fig. VII-

12) jusqu'à la période de 11 Ma au niveau des secteurs de Călimani (points noirs sur la Fig. VII-12). Ceci nous a donc permis d'étudier l'érosion dans toute sa globalité.

Pour définir une fonction mathématique permettant d'étudier le comportement de l'érosion (le degré de dénudation), elle doit au minimum vérifier entre autres, deux notions fondamentales :

(1) A un instant t=0 (où l'on n'enregistre pas encore d'érosion i.e., juste après la construction du volcan) le degré de dénudation doit être nulle ($D_{Den} = 0$)

(2) A un temps infini (t= infini) le degré de dénudation devra être égal à 100% ($D_{Den} = 100\%$) (c'est à dire que tout le volcan aura été complètement démantelé).

Ainsi donc pour respecter ce cahier de charge, c'est une fonction exponentielle inverse qui c'est la mieux ajustée a un tel comportement et défini par :

$$D_{Den}(t) = (1 - k.e^{-l.t}), \text{ avec } k = 1.$$

Cependant, compte tenu du jeu de données exhaustif (0 à 11 Ma) au niveau de cette chaîne, le paramètre k c'est mieux ajusté avec une valeur de 0.9 (k ~0.9) ce qui implique donc déjà 10% de démantèlement juste après la construction du volcan (interception de la ligne bleue tiret avec l'axe y sur la Fig. VII-12) ce qui n'est ni logique ni cohérent.

Cependant, au lieu de cela (approximation en une seule tendance), les changements de degré de dénudation (D_{Den}) au cours du temps peuvent être mieux approximés par deux tendances bien distinctes : (1) premièrement, une tendance d'évolution très rapide pour le premier stade avec un degré de dénudation évoluant de 0 à 14% au cours du premier 1 Ma (points gris sur la Fig. VII-12); et (2) ensuite, une tendance à long terme (contrainte par tous les autres volcans de CGH) ajustée par l'équation suivante (encart Fig. VII-12):

$$\mathbf{D_{Den} = 1\text{-}0{,}89.\ e^{-0{,}024t}}$$

Avec $R^2 = 0{,}62$ et t ici qui représente le temps en Ma

Il se dégage donc de cette courbe différents comportements de l'érosion au cours du temps à savoir :

— (1) Une première étape : Ici, l'érosion est beaucoup plus intense ceci en raison de la présence de matériaux non consolidés facilement érodables ; aussi, dans ces premiers instants, les volcans étant encore morphologiquement quasi intacts, l'érosion se fait donc plus ressentie au niveau de ses parties sommitales qui présentent encore des pentes assez prononcées. Tout ceci contribue aux valeurs de taux d'érosion élevées. — (2) Elle est suivie d'une deuxième tendance qui à long terme décélère a.

Réciproquement, le taux moyen d'érosion au cours du temps (points rouges et oranges sur la Fig. VII-12) est ajusté par une fonction décroissant rapidement au début, puis décroit

lentement pour atteindre un seuil d'équilibre (courbe rouge sur la Fig. VII-12) avec $R^2 = 0,72$. Ces deux paramètres (le taux d'érosion et le degré de dénudation) sont étroitement dépendant du temps.

Validité de ces résultats :

Nos résultats et conclusions concordent avec les changements déjà observés par (Ruxton and McDougall, 1967; Francis, 1983; Karátson, 1996; Karátson et al., 2012) dans la dégradation des volcans: En effet ici, une érosion post-volcanique à court terme (<1 Ma) est caractérisée par un abaissement rapide et une dissection des pentes / formation de vallée des édifices avec un taux d'érosion relativement élevé (24-39 m/Ma, Fig. VII-12), suivie d'une diminution drastique jusqu'à atteindre un stade d'équilibre, où le taux d'érosion diminue lentement en fonction principalement de l'exploitation à travers un réseau de drainage bien établi (Ollier and Brown, 1971; Karátson, 1996; Karátson et al., 2012) (illustré par la courbe rouge basée sur des points oranges et rouges sur la Fig. VII-12).

D'un autre côté, pour l'érosion à long terme, les changements dans les valeurs de taux d'érosion peuvent être liés à la variabilité climatique passée. Des données palynologiques qui sont généralement de très bon indicateur représentatif des changements climatiques passés entre les phases plus humides et plus chaudes (Suc, 1984) ont indiqué une tendance à la baisse continue des températures chaudes et humides pour la région des Carpates au cours du Néogène et, une forte variabilité au Quaternaire (Traverse, 1978; Popescu, 2002, 2006).

Le plus souvent, les fluctuations du taux d'érosion dépendent de nombreux facteurs tels que les variations des conditions climatiques, les paramètres morphométriques des édifices volcaniques étudiés (hauteur, volume, aire, pente topographique locale…), la lithologie (Cotton, 1952; Ollier and Brown, 1971; Francis, 1983; Karátson et al., 1999; Thouret, 1999; Reiners et al., 2003).

Cependant, au niveau de CGH, nous avons mis en évidence qu'ils n'existent pas de corrélation entre le degré de dénudation des volcans et le paramètre altitudinal de ces volcans (cf. Chapitre V). Ainsi donc, par déduction, nous pouvons légitiment exclu les paramètres morphométriques comme une des causes majeures de fluctuation des valeurs du taux d'érosion. Aussi, étant donné que les volcans de CGH présentent des pentes relativement uniformes et modérées (14-21°) (Karátson, 2007), ce critère a pu être écarté également car, ils auraient dans une certaine mesure impacté tous les volcans de la même façon.

Notons aussi qu'au niveau du segment volcanique de CGH, les volcans ont tous dans l'ensemble une composition andésitique (i.e., qu'ici, le type pétrographique le plus courant est

l'andésite), nous suggérons que ce paramètre pétrographique (lithologie) n'a certainement pas joué un rôle majeur dans les variations de taux observées le long de la chaîne volcanique. Toutefois, en excluant ces paramètres, nous ne négligeons pas leurs rôles secondaires dans ces variations de taux. Ne reste plus que le facteur climatique qui pourrait expliquer les fluctuations observées au niveau des taux d'érosion. Nous suggérons donc que les contrastes de l'érosion observés au niveau des taux moyens d'érosion dans les 4 secteurs de la chaîne sont principalement dus aux fluctuations climatiques enregistrées dans la zone au cours du temps. Tout le challenge est donc de montrer comment le taux d'érosion a pu être influencé par le climat au fil du temps. Pour cela, à partir des valeurs représentant le taux d'érosion intégré sur chaque secteur (17 m/Ma (Călimani) ; 11 m/Ma (Gurghiu) ; 9 m/Ma (North Harghita) et 28 m/Ma (South Harghita)), il est possible de déduire le taux d'érosion qui a spécifiquement caractérisé des intervalles de temps bien précis. Pour le segment de CGH, l'échelle de temps à laquelle nous avons tenté de corréler les taux d'érosion spécifiques (Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006; Erdei et al., 2007; Magyari et al., 2014) est la suivante:

(1) La courte période identifiée au Miocène supérieur ; (~ 9,5-8,2 Ma) où l'on a enregistré un climat continental subtropical – modéré de transition.
(2) La période allant du Miocène supérieur jusqu'au Pléistocène (~ 8,2-4 Ma) où l'on a enregistré un climat continental modéré avec parfois des périodes semi-arides.
(3) La période Plio-Quaternaire (~3,0 Ma jusqu'au présent) caractérisée par un climat continental humide avec des régimes périglaciaires/glaciaires au Pléistocène.

Sur cette base, nous avons calculé le taux d'érosion spécifique pour chacune des périodes précédemment mentionnées. En effet, connaissant le taux d'érosion cumulé des périodes t_1 et $t_1 + t_2$, nous pouvons par conséquent, calculer le taux d'érosion spécifique ayant sévi au cours de la période t_2 qui conduit à un taux d'érosion cumulé de la période $t_1 + t_2$. Par exemple, le taux d'érosion cumulé pour le secteur géographique Nord de Harghita est égal au régime d'érosion qui contrôlait spécifiquement le démantèlement des volcans du nord de Harghita avant la construction des volcans du sud d'Harghita plus le régime d'érosion qui était présent lors du démantèlement des volcans du sud de Harghita. De toute évidence, le taux d'érosion calculé pour une certaine période nous a permis de déduire le comportement de l'érosion en réponse aux conditions climatiques ayant eu à régner.

Par cette démarche, nous avons déduit quatre régimes d'érosion successifs, montrant une forte fluctuation au cours du temps (losanges sur la Fig. VII-12).

— (1) Le taux d'érosion spécifique le plus élevé de 38 m/Ma, est obtenu pour la période 10,8-6,9 Ma (losange rouge), caractéristique de la période de construction de Călimani (Fig. VII-12). Elle correspond à l'influence de la période climatique subtropicale-continentale modérée transitoire comme définis ci-dessus par (Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006).

— (2) Dans un second temps, on note une diminution du taux d'érosion avec des valeurs de 14 m/Ma correspondant majoritairement à la période d'édification des volcans de Gurghiu (8,7-5,5 Ma, losange vert) et — (3) un taux de 7 m/Ma, pour la période 7,0-4,6 Ma, (losange bleu sur la Fig. VII-12) au niveau du nord de Harghita. Ces faibles valeurs, caractérisent un climat de type continental modéré en accord avec les fluctuations climatiques. De plus, la valeur extrêmement faible de 7 m/Ma, signalée pour les périodes du Miocène supérieur au Pliocène, peut s'expliquer par des conditions semi-arides occasionnelles enregistrées (Lisiecki and Raymo, 2005).

— (4) Enfin, le taux d'érosion de 28 m/Ma obtenu pour la période Plio-Quaternaire (< 3 Ma, losange jaune sur la Fig. VII-12) peut refléter le retour des conditions plus humides dominantes avec un impact mineur de l'activité érosive glaciaire et du régime périglaciaire (Suc, 1984; Karátson, 1996; Popescu, 2002, 2006; Schreiber et Unger , 2006).

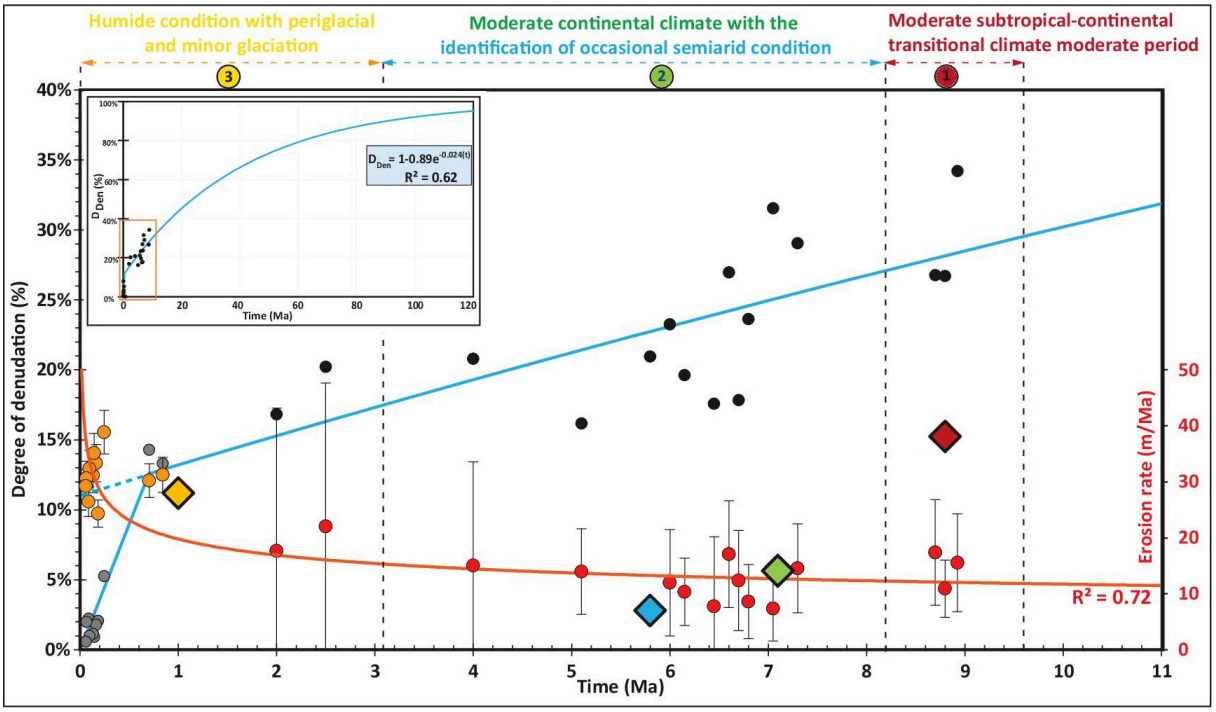


Fig. VII-12 : Graph of dismantling parameters versus time. Black and grey circles are the computed degree of denudation of each volcano (left axis), fitted by the reverse exponential curve (with parameters in the blue box). Orange and red circles are the cumulative averaged erosion rate of each volcano (right axis) and fitted by the red quadratic curve. Large diamonds represent the erosion rates computed for specific periods when specific climatic context occurred (summarized on top of the figure): red (10.8 - 6.9 Ma), green (8.7 - 5.5 Ma), blue (7.0-4.6 Ma) and yellow (<3 Ma) diamonds, respectively.

VII.7.1 Comparaison de nos taux d'érosion avec les valeurs mondiales

Peu d'études se sont focalisées sur la quantification des taux d'érosion sur une longue période de temps, ce qui explique que leur relation avec le contexte géodynamique ou la variabilité climatique soit encore mal comprise de nos jours (Karátson and Timár, 2005; Germa et al., 2010; Karátson et al., 2012; Smith et al., 2016). Nos taux d'érosion relativement élevés au sud de Harghita et au niveau de Călimani (15-28 m/Ma;) sous un climat relativement humide sont comparables au taux de 13-22 m/Ma du Sud du Pérou caractérisé aussi par des conditions climatiques plus humides (Karátson et al., 2012), tandis que nos taux d'érosion les plus faibles de 7-15 m/Ma qui caractérisent les climats continentaux avec des périodes occasionnelles arides sont comparables aux taux très bas de 7-9 m/Ma obtenus au niveau du plateau hyperaride de Puna (Karátson et al., 2012). Notons que de telles variations du taux d'érosion résultent d'effets contrastés du climat sur le démantèlement : des climats plus humides et parfois glaciaires conduiraient aux valeurs les plus élevées, tandis que les valeurs plus basses caractériseraient non seulement des périodes de sécheresse occasionnelles mais aussi des conditions climatiques arides permanentes.

Cependant, les valeurs de taux d'érosion de 12 à 77 m/Ma enregistrées au niveau du champ volcanique basaltique Egiin Davaa du dôme central de Hangay en Mongolie (Smith et al., 2016) sur une période de 13 Ma (comparable au 11 Ma de CGH), montrent des valeurs de taux légèrement supérieurs à celles obtenues pour CGH (2-28 m/Ma). Cela s'explique par le fait que, même si le démantèlement dans les deux zones géographiques était contrôlé par des conditions climatiques continentales comparables, le champ volcanique de Mongolie a été affecté par un climat plus humide avec des périodes glaciaires significativement plus longues et plus marquées (Smith et al., 2016; Klinge and Sauer, 2019) contrairement aux Carpates. De plus, les différences de lithologie peuvent aussi avoir jouées rôle important. En effet, (Gislason et al., 1996; Louvat and Allègre, 1997) ont montré que les différences de lithologie peuvent également affecter le comportement des taux d'érosion à court, moyen et à long terme. Par exemple, les roches basaltiques (comme celles du champ volcanique de Mongolie) subissent une altération plus rapide que les roches andésitiques (cette étude) ; ce qui explique les valeurs élevées du taux d'érosion pour ce champ volcanique.

Nos taux d'érosion sont bien inférieurs à ceux obtenus dans les zones tropicales typiques comme aux Petites Antilles, le volcan Morne Jacob qui a connu un taux d'érosion de 57 m/Ma au cours des derniers 1,5 Ma (Germa et al., 2010) et radicalement différent pour le taux d'érosion mécanique des îles de la Guadeloupe ~ 244 m/Ma (Rad et al., 2006; Ricci et al.,

2015a). Ces valeurs de taux d'érosion relativement élevées par rapport aux nôtres peuvent s'expliquer sous deux angles :

(1) Étant donné que ces études se sont focalisées sur une fenêtre inférieure à 1,5 Ma, la différence significative des taux d'érosion observés (3 à 8 fois plus élevés) avec les nôtres est très probablement due à une différence dans les morphologies volcaniques. En effet, comme nous l'avons mis en exergue dans cette étude, l'érosion est plus intense dans les premiers millions d'année et par la suite tend à s'atténuer (Fig. VII-12)

(2) Par le fait que, dans un environnement tropical typique soumis à de fortes pluies, l'érosion est généralement plus intense que dans notre secteur (principalement contrôlée par un climat continental modéré).

Les valeurs de taux d'érosion systématiquement plus élevées dans ces environnements tropicaux typiques (Louvat and Allègre, 1997; Rad et al., 2006; Hildenbrand et al., 2008; Germa et al., 2010; Ricci et al., 2015a) soutiennent le rôle dominant du climat comme facteur principal lors du démantèlement.

Table des figures pour Discussion :

FIG. VII-1 : DEM IN SHADED RELIEF OF CIOMADUL DOME COMPLEX. SAMPLE LOCATIONS (YELLOW SQUARES) WITH AVAILABLE AGES AND UNCERTAINTIES. ST. ANA AND MOHOȘ: UNERODED TWIN CRATERS 292

FIG. VII-2 :ANALYSE OF THE ORIGIN OF THE BIASING OF WHOLE-ROCK AGE BY PRESENCE OF PHENOCRYSTS. AMP=AMPHIBOLE; PLAG. = PLAGIOCLASE; BIOT. = BIOTITE AND THE SMALL WHITE GRIDS REPRESENT AGE OF GROUNDMASS. (A: 15CIO01 (DEALUL CETĂȚII); B: 16CIO09 (PISCUL PIETROS); C: 16CIO02 (VÂRFUL COMLOS); D: 16CIO08 (MUNTELE PUTURUSU). 295

FIG. VII-3 : A) PREVIOUS AGES BASED MOSTLY ON K-AR DATING ON WHOLE ROCK. NEW UNSPIKED K/AR AGES (IN MA): B) SEACA-TĂTARCA VOLCANO. C) VARGHIS VOLCANO. D) PILISCA VOLCANO. 299

FIG. VII-4 : : NEW UNSPIKED K/AR AGES (IN MA) FOR CĂLIMANI 299

FIG. VII-5 : A) REPRESENTATION DU VOLCAN FANCEL-LAPUSNA (04) AVEC SA CALDERA ET LE TRAIT DE COUPE (LIGNE NOIRE). B) EXEMPLE DE GRAPHE ALTITUDE VERSUS DISTANCE MONTRANT LA DIFFERENCE ENTRE UN MODELE RECONSTRUIT PAR KRIGING (COURBE ROUGE), CELUI RECONSTRUIT VIA SHAPEVOLC (COURBE VERTE), LA COURBE BLEUE REPRESENTE LE MNT ACTUEL ET LA COURBE CORRESPOND A LA SURFACE DE BASE ANTE-VOLCANIQUE. 304

FIG. VII-6 : A) DISTRIBUTION QUASI UNIFORME DES POINTS DE CONTRAINTES LE LONG DU VOLCAN PILISCA (2D) B) REPRESENTATION 3D DU VOLCAN PILISCA RECONSTRUIT PAS KRIGEAGE AVEC CES DIFFERENTS CENTRES ERUPTIFS ET SA FORME TOPOGRAPHIQUE PARTICULIERE NE MONTRANT PAS DE SYMETRIE DE REVOLUTION REELLE..... 304

FIG.VII-7 : MODELLED PALEO-VOLCANIC SURFACES (AS THEY WOULD BE DIRECTLY AFTER THE CESSATION OF VOLCANISM, I.E. BEFORE EROSION EFFECT): CALIMANI (RED); GURGHIU (GREEN); NORTH HARGHITA (BLUE) SOUTH HARGHITA (YELLOW)..... 306

FIG.VII-8 : HEIGHT AND VOLUME OF CGH VOLCANOES PLOTTED ON THE HEIGHT VERSUS VOLUME DIAGRAM OF GROSSE ET AL. (2009) WITH FITTING POWER-LAW FUNCTION. EACH NUMBER REPRESENT AN INDIVIDUAL AS LABELLED IN FIG. VII-8 307

FIG. VII-9 : COMPARISON BETWEEN NEW CONSTRUCTED VOLUMES VERSUS PREVIOUSLY AVAILABLE VOLUMES (KARÁTSON AND TIMAR, 2005) 311

FIG. VII-10 : VOLUMES VERSUS LIFESPAN IN A LOG-LOG DIAGRAM. TRENDS OF BOTH GROUP (RED AND BLUE DIAGONAL LINES) AS WELL AS GREY DASHED LINES REPRESENT CONSTANT RATES OF MAGMA OUTPUT. BACKGROUND OF THE FIGURE DISPLAYING VARIOUS VOLCANIC CONTEXTS AROUND THE WORLD FROM WHITE ET AL. (2006). 313

FIG. VII-11 : COMPARISON BETWEEN NEW ERODED VOLUMES AGAINST PREVIOUSLY AVAILABLE ERODED VOLUMES (KARÁTSON AND TIMAR, 2005). SAME VOLCANIC EDIFICES AS IN FIG. VII-9. 314

FIG. VII-12 : GRAPH OF DISMANTLING PARAMETERS VERSUS TIME. BLACK AND GREY CIRCLES ARE THE COMPUTED DEGREE OF DENUDATION OF EACH VOLCANO (LEFT AXIS), FITTED BY THE REVERSE EXPONENTIAL CURVE (WITH PARAMETERS IN THE BLUE BOX). ORANGE AND RED CIRCLES ARE THE CUMULATIVE AVERAGED EROSION RATE OF EACH VOLCANO (RIGHT AXIS) AND FITTED BY THE RED QUADRATIC CURVE. LARGE DIAMONDS REPRESENT THE EROSION RATES COMPUTED FOR SPECIFIC PERIODS WHEN SPECIFIC CLIMATIC CONTEXT OCCURRED (SUMMARIZED ON TOP OF THE FIGURE): RED (10.8 - 6.9 MA), GREEN (8.7 - 5.5 MA), BLUE (7.0-4.6 MA) AND YELLOW (<3 MA) DIAMONDS, RESPECTIVELY. 319

VIII Conclusions et Perspectives

L'étude menée lors de cette thèse aura permis, par l'association de la géochronologie et la géomorphologie, d'apporter de nouvelles contraintes dans l'évolution volcanique des Carpates Pannoniennes. Les âges obtenus lors de cette étude montrent une excellente reproductibilité pour chacun des échantillons. En outre, tous les échantillons apparaissent cohérents entre eux au sein des massifs, appuyant l'utilisation de la méthode K-Ar dans la datation des laves de ce secteur d'étude. L'approche géomorphologique aura d'une part, permis d'appuyer les données géochronologiques dans la contrainte de l'histoire volcanique, mais elle aura également permis d'apporter, pour la première fois dans les Carpates pannoniennes orientale (CGH), une étude rigoureuse et détaillée des volumes, des taux de constructions et d'érosion mais aussi de proposer les liens existants entre magmatisme et contexte géodynamique et surtout le rôle majeur que joue le climat sur la dynamique érosionnelle.

(I) Au niveau du volcanisme récent (<1 Ma) du complexe volcanique de Ciomadul au SE de la chaîne des Carpates Pannoniennes, son histoire volcanique a été affinée et réévaluée sur la base des données géochronologiques et géomorphologiques obtenues dans cette étude. Composé d'une douzaine de dômes de lave, son activité volcanique a été datée par le chronomètre K-Ar sur mésostase. Pour ce volcanisme récent un protocole particulier de double séparation de la mésostase a permis de ne sélectionner pour des datations qu'une mésostase affranchie de toute présence de phénocristaux qui aurait significativement vieilli les âges (présence des excès d'argon). Sur cette base, l'activité volcanique du complexe a donc été défini par 3 phases majeures :

- (1) La première phase de 850 à 440 ka a eu une activité essentiellement effusive des dômes de laves isolés du Nord et ceux du Sud-Est du complexe.
- (2) Après une importante période de quiescence d'une durée d'environ 250 ka, l'activité a repris dans la partie nord à environ 200 ka, avec des dômes subséquents mis en place entre 200 et 130 ka, alignés à peu près nord-sud dans la partie centre-ouest du complexe.
- (3) Après une seconde période de repos de 30 ka, la construction des dômes de la partie centrale du complexe a été initiée entre ~ 100 à <30 ka ; c'est d'ailleurs au cours de cette dernière phase de construction que l'on enregistre les éruptions fortement explosives, responsables de la formation des cratères de Mohos et St. Ana entre (~ 60 à <30 ka).

En parallèle de ces données géochronologiques, des investigations morphométriques ont permis de déterminer un volume total de magma émis de ~ 8,00 ± 0,55 km^3 et un volume de

matériel érodé de 0,18 km^3 pour la totalité du complexe volcanique de Ciomadul. Un taux moyen de production de magma de 9,76 km^3/ Ma (0,0098 km^3/ka) a été obtenu. Cependant, comme la quasi-totalité de ce volcanisme s'est déroulée au cours de la période (200 à <30 ka) (volcanisme intense) un calcul de volume de magma émis des dômes formés au cours de cette période nous donne un volume de (7,53 ± 0,51 km^3) représentant les 95% du volume total de matériel émis pour ce complexe. Ainsi, un taux de production de magma spécifique à cet intervalle de temps 30 fois plus important (37,4 km^3 /Ma) que celle de la première phase a été obtenu.

(II) Dans la partie septentrionale au complexe volcanique de Ciomadul, au niveau du segment CGH, nous avons déchiffré les différents paramètres qui ont contrôlés l'érosion de ces volcans.

Pour quatre volcans du segment volcanique CGH (Central Călimani/Rusca-Tihu, Seaca-Tătarca, Vârghiş et Pilisça), de nouveaux âges K-Ar ont contraint leur durée d'activité (6,79 ± 0,10 – 6,47 ± 0,09 Ma pour Seaca-Tătarca ; 5,47 ± 0,08 – 4,61 ± 0,07 Ma pour Vârghiş), pour Călimani son activité volcanique la plus récente (6,69 ± 0,10 Ma), ou pour Pilişca d'affiner les âges K-Ar conventionnels précédents. Ces résultats 4 à 6 fois mieux contraints que les datation K-Ar sur roche totale ont permis de mieux aborder l'étude morphométrique de ces volcans par une meilleur contrainte des durées d'activités.

En parallèle de l'acquisition de données géochronologiques, les reconstructions numériques des paléo-topographies volcaniques ont été réalisée. Elles ont permis de modéliser leur forme originelle avant tout processus de démantèlement majeur, c'est-à-dire en reconstruisant la topographie initiale atteinte à la fin de la croissance des édifices (surface volcanique pré-érosive). Sur cette base, les volumes individuels des 20 volcans identifiables des Carpates orientales ont été quantifiés, montrant une large gamme de tailles de volcans allant de 3±3 à 592±115 km^3. Un volume total de construction d'environ 2300 km^3 représentant les quatre principaux secteurs géographiques du segment volcanique des Carpates (910 km^3 pour Călimani, 880 km^3 pour Gurghiu, 279 km^3 pour North Harghita et 165 km^3 pour South Harghita) a été calculé. En couplant ces nouveaux volumes à tous les âges fiables, un taux de croissance moyen de 200 km^3/Ma a été obtenu pour l'ensemble de la chaîne volcanique de CGH. Dans le détail, ces volcans se répartissent en deux tendances principales : une première tendance pour les volcans ayant un taux de croissance modéré (137 km^3 / Ma) caractérisant les volcans Mio-Pliocène du nord (Călimani-Gurghiu-North Harghita et Luci-Lazu) ; une seconde avec un taux de croissance considérablement plus faible de (28 km^3/Ma) obtenu majoritairement pour

les volcans Plio-Quaternaire du secteur Harghita Sud. Le volcan Seaca-Tătarca n'appartient pas à ces tendances et montre le taux de croissance le plus élevée (825 km^3/Ma). Cette valeur élevée est certainement liée à la précision des datations K-Ar effectuée sur ce volcan qui ont permis de mieux contraindre (et en l'occurrence de réduire significativement) sa durée d'activité. Cette observation nous permet légitimement de penser que pour les autres volcans de la chaîne avec un même détail de datation, on pourrait avoir des taux de construction certainement comparables.

Un volume total érodé de 524 ± 125 km^3 a été calculé pour tout le segment volcanique de CGH, correspondant à un degré de dénudation moyen de 22% et à un taux d'érosion moyen de 20 m/Ma (avec 17 m/Ma pour Călimani ; 11 m/Ma pour Gurghiu ; 9 m/Ma pour Harghita du nord et 28 m/Ma pour Harghita du sud), témoignant d'une intensité d'érosion variable dans le temps. Des taux d'érosion spécifiques pour chaque période climatique majeure ont été calculés, correspondant bien au contexte climatique ayant régné: le taux d'érosion le plus élevé (38 m/Ma) s'est produit au cours de la première période climatique subtropicale-continentale modérée de transition (9,5 et 8,2 Ma); un taux d'érosion intermédiaire (14 m/Ma) a caractérisé une période de climat continental modéré jusqu'à 6,8 Ma lorsque les conditions sont devenues moins humides; un taux d'érosion extrêmement faible (7 m/Ma) a été déterminé pour un climat continental dominant mais parfois semi-aride (6,8-5,8 Ma); et enfin, un taux d'érosion plus élevé (28 m/Ma) a été dérivé pour le Plio-Quaternaire, témoignant de l'impact de l'érosion des changements rapides entre des conditions plus humides et plus froides dans les cycles interglaciaires/glaciaires qui caractérisent généralement cette période.

Notre approche morphométrique et géochronologique quantitative démontre que la reconstruction des paléo-topographies volcaniques est un outil efficace pour étudier le dynamisme volcanique au cours du temps, ce qui a également des implications sur les contextes tectoniques et climatiques qui contrôle à la fois les processus de construction et de démantèlement dans des environnements volcaniques de type arc tels que le segment CGH des Carpates orientales.

(III) Au niveau des Carpates occidentales, l'étude menée sur le complexe de dôme de lave andésitique/basaltique du « High Börzsöny », modérément explosif, visait à apporter de nouvelles contraintes temporelles à ce volcanisme effusif. Les nouvelles datations Cassignol-Gillot K-Ar se sont principalement concentrées sur la mésostase des roches de lave andésitiques du High Börzsöny. Les âges obtenus, compris entre 15,11 ± 0,21 et 14,27 ± 0,20 Ma, sont en accord avec leur position stratigraphique et sont 2 à 5 fois mieux contraints que les précédents

âges K-Ar obtenus sur roche totale. Sur la base des âges nouvellement obtenus et couplés aux données paléomagnétiques enregistrées dans le secteur, nous avons proposé une période de construction du High Börzsöny de 1.09 ± 0,13 Ma.

Au niveau des monts Bükk et Mátra, où un intense volcanisme explosif à valeur de marqueurs stratigraphiques et tectoniques compte-tenu des contraintes paléomagnétiques dont l'on dispose sur des dépôts ignimbritiques du Nord de la Hongrie, autorise une étude beaucoup plus poussée. En corrélant les événements éruptifs avec les périodes de polarité magnétique régionale et les données de déclinaison paléomagnétique, nos données situent la limite temporelle supérieure de la plus jeune rotation autour de 14.8 Ma dans la partie nord du bassin Pannonien et en même temps, le début d'une nouvelle phase de déformation.

Nous avons distingué 2 groupes caractéristiques :

(1) Un groupe situé dans la partie Ouest du champ volcanique de Bükk formé des 3 affleurements à proximité de Mátra {18Tar (13.24±0.19 Ma ; Tar), 18MB (14.05±0.20 Ma ; Mátrabérc), 17GAL (14.08±0.21 Ma ; Galaguta) et ceux de l'ouest de Bükk 18DS (13.13±0.20 Ma ; Demjén), 18WC05 (14.3±0.20 Ma ; Sirok} dont la polarité inverse caractéristiques et leur très bon groupement laissent supposer un épanchement lors d'éruptions (distinctes d'après les différences pétrologique) assez rapprochées dans le temps (13.13-14.3) correspondant aux secteurs sans rotations significatives (~10°) et représentant par conséquent, les unités supérieures en accord avec les mesures paléomagnétiques.

(2) Un second groupe caractérisé sur une base purement paléomagnétique par des déclinaisons magnétiques élevées dans la polarité normale (Bogács, Harsány, Tibolddaróc). Ici, seul l'âge obtenu sur l'échantillon 18WC01A (16.54±0.24 Ma) est en accord avec les données paléomagnétiques qui montrent une déclinaison de 174 dans la polarité nord (correspondant à une rotation de ~28°) i.e., mis en place lors de la seconde rotation autour de 30°.

Cependant nos âges K-Ar au niveau de Harsány et Tibolddaróc semblent ne pas être en accord avec les données du paléomagnétisme. En effet, avec des déclinaisons de 309 et 308° dans la polarité normale, on s'attendrait à obtenir des âges beaucoup plus vieux (>16 Ma) car correspondrait à une rotation de ~50°. Les âges obtenus sont donc significativement jeunes et sont même les plus jeunes de tout le champ volcanique de Bükk. À la vue de la bonne qualité de nos biotites (18WC04 et 18WC02), les âges de 12.8 Ma de Harsány et Tibolddaróc sont réalistes, et cette ignimbrite n'aurait pas connu de rotation significative comme laisserai croire les données du paléomagnétisme. Nous suggérons donc que ces fortes valeurs de déclinaisons,

serait possiblement due à une variation séculaire extrême responsable des déclinaisons anormales. D'ailleurs, ce mécanisme peut également être envisagé pour d'autres échantillons.

Aussi, pour mieux assoir nos résultats d'âges, d'autres pistes en cours d'analyses sont de dater dans ces dépôts ignimbritiques les sanidines afin de confirmer les âges obtenus sur biotites. Enfin, une autre piste qui n'a malheureusement pas pu être appliquée dans cette thèse et qui serait judicieux de mettre en place est de travailler à l'échelle du grain (mono grain) en effectuant des datations via la technique $^{40}Ar/^{39}Ar$.

S'il est vrai que la méthode K-Ar, est plus aisée à mettre en œuvre que la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ car, il n'est pas nécessaire d'irradier les échantillons au préalable et, qu'elle permet de construire assez rapidement le cadre chronologique d'un système volcanique, Cependant, pour des gammes de périodes comme celles des ignimbrites Miocène de cette étude, il est impérieux de confirmer les âges K-Ar par des mesures $^{40}Ar/^{39}Ar$ afin de valider leur exactitude. Contrairement à la méthode K-Ar, la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ a cette capacité de mettre en évidence, par le biais des spectres d'âge et des isochrones les pertes ou excès de ^{40}Ar.

La partie analytique de cette thèse ayant été en partie soutenue par le programme hongrois OTKA qui s'est achevé au mois d'Août 2019, n'a malheureusement pas permis de mettre en pratique des datations via la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ sur les ignimbrites Miocènes du nord de la Hongrie. Cependant, dans le Cadre du nouveau programme quadriennal (OTKA K 131894) hongrois financé pour la période 2020-2024 et, qui porte exclusivement sur l'étude de ces dépôts ignimbritiques siliciques du nord de la Hongrie, une attention toute particulière sera apportée à ces secteurs dans le but de comprendre dans le détail le shift apparent entre le paléomagnétisme et les âges biotites. Pour cela, Des études préliminaires avant toute campagne d'échantillonnage seront établis et surtout, les descriptions des mécanismes de mise en place de différentes successions composant chaque unité et aussi, différents chronomètres seront couplés (K-Ar, $^{40}Ar/^{39}Ar$ et (U-Th) /He) pour mieux voir les dispersions analytiques. De nouvelles mesures paléomagnétiques seront à nouveau effectuées et une attention particulière sera porté sur les variations séculaires.

L'objectif initial de cette thèse était la contrainte des taux d'érosion à long terme, et leur comparaison à différentes échelles de temps et en différentes localisations géographiques. Cette tâche a été accomplie avec une datation détaillée des différents volcans de la chaîne CGH et une reconstruction détaillée des paléo surfaces de ces édifices au second ordre ce qui nous a permis de produire des résultats de volumes réalistes et robustes validant ainsi la méthode de reconstruction utilisée ici. Cependant, les datations détaillées qu'ont bénéficié certains volcans du segment de CGH notamment le volcan Seaca-Tătarca a révélé que la durée d'activité précédemment proposé de 1 Ma typique de la plupart des volcans de la chaîne sur la seule base des datations K-Ar sur roche totale a été révisé significativement a 340 ka ce qui nous permet légitimement de penser que, pour les autres volcans de cette chaîne avec un même détail de datation on pourrait obtenir des résultats comparables.
Ainsi donc, pour une prochaine étape, il me semble nécessaire d'appliquer ce même travail aux restes des volcans de la chaîne ce qui aura pour conséquence, d'obtenir des taux de production magmatique (taux de construction) comparables à celui de Seaca-Tatarca et, surtout de mieux comprendre les interactions qui existent entre production magmatique et tectonique locale.

Au cours de cette étude, nous avons montré l'impact que les fluctuations climatiques pouvaient avoir au fil du temps sur la dynamique de l'érosion au travers des taux d'érosion variables et leur impact à des degrés différents sur des volcans. Cependant, cette étude mériterait d'être approfondie notamment en exploitant le potentiel qu'offre les profils de rivières comme marqueur de la dynamique érosive. En effet, les profils longitudinaux des rivières sont généralement considérés comme des indicateurs les plus sensibles aux taux de soulèvement tectonique régionaux. Ces taux d'incision des rivières dans le substratum rocheux sont influencés par les oscillations climatiques, la résistance de la roche ou par les caractéristiques des dépôts alluviaux. Au niveau du segment volcanique CGH caractérisé majoritairement pas une lithologie relativement homogène des roches dacitiques à andésitiques, une telle analyse de la forme du profil pourra donc nous indiquer des aspects évolutifs cohérents des vallées en lien avec le climat, la lithologie, la tectonique et la topographie. Pour cela, l'extraction de variables hydrologiques pourra être traitée via des SIG comme ArcGIS ou à l'aide par exemple d'un ensemble de fonctions dont l'application « TopoToolbox » pris en charge dans MATLAB.

Au niveau du secteur SE de la chaîne volcanique de CGH, les travaux de datation assez détaillés effectués au niveau du complexe volcanique de Ciomadul ont permis de revisiter de façon complète son évolution spatio-temporelle.
L'identification des textures glomérocristaux dans ces roches de Ciomadul a montré qu'ils étaient porteurs significatifs d'excès d'argon dans le système ce qui représentait une des causes

majeures du vieillissement des âges obtenus par le chronomètre K-Ar sur roche totale. Dans cette étude aussi, nous avons établis des études préliminaires sur le rôle que jouait ces phases (glomérocristaux) notamment dans la diffusion des de l'argon. Ainsi, il serait nécessaire de poursuivre ce travail en essayant d'affiner les modèles de diffusion de l'argon dans les minéraux ce qui pourrait permettre de mieux comprendre les processus d'assimilation et de mélange de magma.

Au niveau du complexe volcanique de Börzsöny, ayant pu contraindre l'activité volcanique de son plus grand édifice (High Börzsöny) avec des âges 3 à 4 fois mieux contraints que les précédents, alors, il serait important de finaliser un tel travail par une reconstruction numérique de sa paléo surface en vue d'une quantification plus rigoureuse des volumes de magma mis en jeux ainsi qu'une quantification de ces phases de construction.

Comme le secteur Est du champ volcanique de Bükk a soulevé de nombreuses interrogations car, les nouvelles données géochronologiques des dépôts ignimbritiques ont mis en évidence une histoire volcano-tectonique beaucoup plus complexe que celle proposée jusqu'alors. Cela ouvre par conséquent la voie à de nombreuses études pour contraindre plus précisément ce champ volcanique, marqueur tephro-stratigraphique majeur du bassin Pannonien. Ainsi, dans les travaux futurs, plus précisément dans le nouveau projet OTKA consacré exclusivement à cette question, une réponse efficiente sera apportée à cette question. Le challenge est donc mis sur l'analyse des données paléomagnétiques et surtout la datation des dépôts ignimbritiques du nord de la Hongrie par différents chronomètres ainsi que sur des investigations minutieuses des affleurements des régions de Bükk et Mátra. De plus, comme cette étude a montré que même si les datations K-Ar sont assez précises, elles peuvent être significativement impactés par des altérations ce qui limite son utilisation. Ainsi donc, un chronomètre qui permettrait de déceler de telles perturbations à l'échelle du minéral comme la méthode $^{40}Ar/^{39}Ar$ devra être systématiquement utilisé ou alors couplée aux différents autres chronomètres (K-Ar, (U-Th) /He). Ce n'est que de cette façon, que nous pourrions mieux situer dans le temps l'activité éruptive de ce vaste champ volcanique ignimbritique de Bükkalja et Mátra, l'un des marqueurs téphro-stratigraphique majeure caractéristique des plus grandes périodes de recrudescence de dépôts d'ignimbrites du cénozoïque en Europe.

BIBLIOGRAPHIE

A

Ackerer, J., 2017. Mécanismes et taux de dénudation d'un bassin versant élémentaire (Strengbach, France) : apport de l'étude couplée des méthodes de datation isotopique (déséquilibres U-Th-Ra, 10Be in situ) et des méthodes de modélisation hydrogéochimique (KIRMAT).

Aitken, M.J., 1998. Introduction to optical dating: the dating of Quaternary sediments by the use of photon-stimulated luminescence. Clarendon Press.

Aitken, M.J., 1994. Optical dating: a non-specialist review. Quaternary Science Reviews 13, 503–508.

Aitken, M.J., 1985. Thermoluminescence dating.

Aranda-Gómez, J.J., Luhr, J.F., Housh, T.B., Connor, C.B., Becker, T., Henry, C.D., 2003. Synextensional Pliocene–Pleistocene eruptive activity in the Camargo volcanic field, Chihuahua, México. Geological Society of America Bulletin 115, 298–313.

Arocena, J.M., Zhu, L.P., Hall, K., 2003. Mineral accumulations induced by biological activity on granitic rocks in Qinghai Plateau, China. Earth Surface Processes and Landforms: The Journal of the British Geomorphological Research Group 28, 1429–1437.

Avouac, J.-P., Burov, E.B., 1996. Erosion as a driving mechanism of intracontinental mountain growth. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 101, 17747–17769.

B

Bablon, M., Quidelleur, X., Samaniego, P., Le Pennec, J.-L., Lahitte, P., Liorzou, C., Bustillos, J.E., Hidalgo, S., 2018. Eruptive chronology of Tungurahua volcano (Ecuador) revisited based on new K-Ar ages and geomorphological reconstructions. Journal of Volcanology and Geothermal Research 357, 378–398. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2018.05.007

Bahr, H.-A., Fischer, G., Weiss, H.-J., 1986. Thermal-shock crack patterns explained by single and multiple crack propagation. Journal of Materials Science 21, 2716–2720.

Báldi, T., Kókay, J., 1970. The fauna of the Kismaros tuffite and the age of the Börzsöny andesitic volcanism. Földt. Közlöny 100, 274–283.

Balla, Z., 1978. A magas-börzsönyi paleovulkán rekonstrukciója.

Balla, Z., Csongrádi, J., Havas, L., Korpás, L., 1981. Age of the Börzsöny volcanics and accuracy of K-Ar dating. Bull. Hung. Geol. Soc 111, 307–324.

Balla, Z., Korpás, L., 1980. Volcano-tectonics and evolution of the Börzsöny Mountains. Annu. Rep. Hung. Geol. Inst 78–101.

BAS, M.L., Maitre, R.L., Streckeisen, A., Zanettin, B., Rocks, I.S. on the S. of I., 1986. A chemical classification of volcanic rocks based on the total alkali-silica diagram. Journal of petrology 27, 745–750.

Beaumont, C., Fullsack, P., Hamilton, J., 1992. Erosional control of active compressional orogens, in: Thrust Tectonics. Springer, pp. 1–18.

Binnie, S.A., Phillips, W.M., Summerfield, M.A., Fifield, L.K., Spotila, J.A., 2010. Tectonic and climatic controls of denudation rates in active orogens: The San Bernardino Mountains, California. Geomorphology 118, 249–261.

Blaikie, T.N., van Otterloo, J., Ailleres, L., Betts, P.G., Cas, R.A.F., 2015. The erupted volumes of tephra from maar volcanoes and estimates of their VEI magnitude: examples from the late Cenozoic Newer Volcanics Province, south-eastern Australia. Journal of Volcanology and Geothermal Research 301, 81–89.

Bluth, G.J., Kump, L.R., 1994. Lithologic and climatologic controls of river chemistry. Geochimica et Cosmochimica Acta 58, 2341–2359.

Borgia, A., 1994. Dynamic basis of volcanic spreading. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 99, 17791–17804. https://doi.org/10.1029/94JB00578

Borgia, A., Tizzani, P., Solaro, G., Manzo, M., Casu, F., Luongo, G., Pepe, A., Berardino, P., Fornaro, G., Sansosti, E., 2005. Volcanic spreading of Vesuvius, a new paradigm for interpreting its volcanic activity. Geophysical Research Letters 32.

Bottrill, A.D., van Hunen, J., Allen, M.B., 2012. Insight into collision zone dynamics from topography: numerical modelling results and observations. Solid Earth. 3, 387–399.

Bourquin, S., Rigollet, C., Bourges, P., 1998. High-resolution sequence stratigraphy of an alluvial fan–fan delta environment: stratigraphic and geodynamic implications–An example from the Keuper Chaunoy Sandstones, Paris Basin. Sedimentary Geology 121, 207–237.

Brown, E.T., Stallard, R.F., Larsen, M.C., Raisbeck, G.M., Yiou, F., 1995. Denudation rates determined from the accumulation of in situ-produced 10Be in the Luquillo Experimental Forest, Puerto Rico. Earth and Planetary Science Letters 129, 193–202.

Brozović, N., Burbank, D.W., Meigs, A.J., 1997. Climatic limits on landscape development in the northwestern Himalaya. Science 276, 571–574.

Burbank, D.W., Anderson, R.S., 2001. Geomorphic markers. Burbank, DW & Anderson, RS, Tectonic Geomorpholgy. Malden:(ed.) Blackwell Publishing 13–32.

Burbank, D.W., Blythe, A.E., Putkonen, J., Pratt-Sitaula, B., Gabet, E., Oskin, M., Barros, A., Ojha, T.P., 2003. Decoupling of erosion and precipitation in the Himalayas. Nature 426, 652–655.

Burchfiel, B.C., 1980. Eastern European Alpine system and the Carpathian orocline as an example of collision tectonics. Tectonophysics 63, 31–61.

Burgess, R., Kelley, S.P., Parsons, I., Walker, F.D.L., Worden, R.H., 1992. 40Ar? 39Ar analysis of perthite microtextures and fluid inclusions in alkali feldspars from the Klokken syenite, South Greenland. Earth and Planetary Science Letters 109, 147–167.

C

Capaccioni, B., Coradossi, N., Harangi, R., Harangi, S., Karátson, D., Sarocchi, D., Valentini, L., 1995. Early Miocene pyroclastic rocks of the Bükkalja lgnimbrite Field (North Hungary)-A preliminary stratigraphic report. Acta Vulcanologica 7, 119–124.

Cassignol, C., 1979. Quelques recherches sur la méthode Potassium-Argon. Quaternaire 16, 27–33.

Cassignol, C., Cornette, Y., David, B., Gillot, P.-Y., 1978. Potassium-argon technology. CEA Centre d'Etudes Nucleaires de Saclay.

Cassignol, C., Gillot, P.Y., 1982. Range and effectiveness of unspiked potassium-argon dating: experimental groundwork and applications. Numerical dating in stratigraphy 1, 159–179.

Casta L (1980) Les formations quaternaires de la Dépression de Braşov (Roumanie). PhD Thesis, Université de Aix-Marseille II, pp 256

Chalot-Prat, F., Girbacea, R., 2000. Partial delamination of continental mantle lithosphere, uplift-related crust–mantle decoupling, volcanism and basin formation: a new model for the Pliocene–Quaternary evolution of the southern East-Carpathians, Romania. Tectonophysics 327, 83–107.

Champagnac, J.-D., Molnar, P., Sue, C., Herman, F., 2012. Tectonics, climate, and mountain topography. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 117.

Champagnac, J.-D., Valla, P.G., Herman, F., 2014. Late-Cenozoic relief evolution under evolving climate: A review. Tectonophysics 614, 44–65. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2013.11.037

Christian, P., 1989. Relation entre érosion et systèmes de production dans le bassin-versant sud du lac de Managua (Nicaragua). Cahiers ORSTOM: Série pédologie 25, 171.

Ciulavu, D., 1999. Tertiary tectonics of the Transylvania basin.

Ciupagea, D., Pauca, M., Ichim, T., 1970. Geology of the Transylvanian depression. Editura Academiei Republici Socialiste Romania, Bucharest.

Cloetingh, S., Burov, E., 2011. Lithospheric folding and sedimentary basin evolution: a review and analysis of formation mechanisms. Basin Research 23, 257–290.

Cloetingh, S., Burov, E., Matenco, L., Toussaint, G., Bertotti, G., Andriessen, P.A.M., Wortel, M.J.R., Spakman, W., 2004. Thermo-mechanical controls on the mode of continental collision in the SE Carpathians (Romania). Earth and Planetary Science Letters 218, 57–76.

Cloetingh, S., Ziegler, P.A., Beekman, F., Andriessen, P.A.M., Matenco, L., Bada, G., Garcia-Castellanos, D., Hardebol, N., Dèzes, P., Sokoutis, D., 2005. Lithospheric memory, state of stress and rheology: neotectonic controls on Europe's intraplate continental topography. Quaternary Science Reviews 24, 241–304.

Cotton, C.A., 1952. Volcanoes as landscape forms Whitcombe and Tombs. New Zealand.

Crisp, J.A., 1984. Rates of magma emplacement and volcanic output. Journal of Volcanology and Geothermal Research 20, 177–211. https://doi.org/10.1016/0377-0273(84)90039-8

Csontos, L., 1995. Tertiary tectonic evolution of the Intra-Carpathian area: a review. Acta Vulcan. 7, 1–13.

Csontos, L., Nagymarosy, A., Horváth, F., Kovac, M., 1992. Tertiary evolution of the Intra-Carpathian area: a model. Tectonophysics 208, 221–241.

Csontos, L., Vörös, A., 2004. Mesozoic plate tectonic reconstruction of the Carpathian region. Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology 210, 1–56.

Cumbest, R.J., Johnson, E.L., Onstott, T.C., 1994. Argon composition of metamorphic fluids: Implications for 40Ar/39Ar geochronology. Geological Society of America Bulletin 106, 942–951.

Czuppon, G., Lukács, R., Harangi, S., Mason, P.R., Ntaflos, T., 2012. Mixing of crystal mushes and melts in the genesis of the Bogács Ignimbrite suite, northern Hungary: An integrated geochemical investigation of mineral phases and glasses. Lithos 148, 71–85.

D

Dalrymple, G.B., Moore, J.G., 1968. Argon-40: Excess in Submarine Pillow Basalts from Kilauea Volcano, Hawaii. Science 161, 1132. https://doi.org/10.1126/science.161.3846.1132

Davis, D., Suppe, J., Dahlen, F.A., 1983. Mechanics of fold-and-thrust belts and accretionary wedges. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 88, 1153–1172.

Day, S.J., 1996. Hydrothermal pore fluid pressure and the stability of porous, permeable volcanoes. Geological Society, London, Special Publications 110, 77–93.

de Vries, B. van W., Kerle, N., Petley, D., 2000. Sector collapse forming at Casita volcano, Nicaragua. Geology 28, 167–170.

Delaney, P.T., 1992. You can pile it only so high. Nature 357, 194–196. https://doi.org/10.1038/357194a0

Delcaillau, B., 2004. Reliefs et Tectonique Récente: Nouveau Précis de Géomorphologie.

Demetrescu, C., Andreescu, M., 1994. On the thermal regime of some tectonic units in a continental collision environment in Romania. Tectonophysics 230, 265–276.

Demetrescu, C., Nielsen, S.B., Ene, M., Şerban, D.Z., Polonic, G., Andreescu, M., Pop, A., Balling, N., 2001. Lithosphere thermal structure and evolution of the Transylvanian Depression—insights from new geothermal measurements and modelling results. Physics of the Earth and Planetary Interiors 126, 249–267.

Dewey, J.F., PITMAN III, W.C., Ryan, W.B., Bonnin, J., 1973. Plate tectonics and the evolution of the Alpine system. Geological society of America bulletin 84, 3137–3180.

Dibacto, S., Lahitte, P., Karátson, D., Hencz, M., Szakács, A., Biró, T., Kovács, I., Veres, D., 2020. Growth and erosion rates of the East Carpathians volcanoes constrained by numerical models: Tectonic and climatic implications. Geomorphology 368, 107352.

Dixon, J.L., Heimsath, A.M., Amundson, R., 2009. The critical role of climate and saprolite weathering in landscape evolution. Earth Surface Processes and Landforms 34, 1507–1521.

Doglioni, A., Simeone, V., 2014. Geomorphometric analysis based on discrete wavelet transform. Environmental earth sciences 71, 3095–3108.

Doglioni, A., Simeone, V., 2013. Quantitative geomorphological analysis based on wavelet transforms, in: Landslide Science and Practice. Springer, pp. 257–264.

Doneus, M., 2013. Openness as visualization technique for interpretative mapping of airborne lidar derived digital terrain models. Remote sensing 5, 6427–6442.

Donnelly-Nolan, J.M., Grove, T.L., Lanphere, M.A., Champion, D.E., Ramsey, D.W., 2008. Eruptive history and tectonic setting of Medicine Lake Volcano, a large rear-arc volcano in the southern Cascades. Journal of Volcanology and Geothermal Research 177, 313–328. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2008.04.023

Dosseto, A., Bourdon, B., Turner, S.P., 2008. Uranium-series isotopes in river materials: insights into the timescales of erosion and sediment transport. Earth and Planetary Science Letters 265, 1–17.

Downes, H., Seghedi, I., Szakacs, A., Dobosi, G., James, D.E., Vaselli, O., Rigby, I.J., Ingram, G.A., Rex, D., Pecskay, Z., 1995. Petrology and geochemistry of late Tertiary/Quaternary mafic alkaline volcanism in Romania. Lithos 35, 65–81. https://doi.org/10.1016/0024-4937(95)91152-Y

Downes, H., Vaselli, O., 1995. Neogene and related magmatism in the Carpatho-Pannonian region. Istituti editoriali e poligrafici internazionali.

Drever, J.I., 1994. The effect of land plants on weathering rates of silicate minerals. Geochimica et Cosmochimica Acta 58, 2325–2332.

Drever, J.I., Zobrist, J., 1992. Chemical weathering of silicate rocks as a function of elevation in the southern Swiss Alps. Geochimica et Cosmochimica Acta 56, 3209–3216.

E

Egholm, D.L., Nielsen, S.B., Pedersen, V.K., Lesemann, J.-E., 2009. Glacial effects limiting mountain height. Nature 460, 884–887.

Egli, M., Mirabella, A., Sartori, G., 2008. The role of climate and vegetation in weathering and clay mineral formation in late Quaternary soils of the Swiss and Italian Alps. Geomorphology 102, 307–324.

Einsele, G., 1992. Sedimentary basins: evolution, facies, and sedimentary budget. Springer-Verlag.

Erdei, B., Hably, L., Kázmér, M., Utescher, T., Bruch, A.A., 2007. Neogene flora and vegetation development of the Pannonian domain in relation to palaeoclimate and palaeogeography. Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology 253, 115–140.

Euillades, L.D., Grosse, P., Euillades, P.A., 2013. NETVOLC: An algorithm for automatic delimitation of volcano edifice boundaries using DEMs. Computers & Geosciences 56, 151–160. https://doi.org/10.1016/j.cageo.2013.03.011

F

Favalli, M., Fornaciai, A., 2017. Visualization and comparison of DEM-derived parameters. Application to volcanic areas. Geomorphology 290, 69–84. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2017.02.029

Favalli, M., Fornaciai, A., Pareschi, M.T., 2009a. LIDAR strip adjustment: Application to volcanic areas. Geomorphology 111, 123–135.

Favalli, M., Innocenti, F., Pareschi, M.T., Pasquarè, G., Mazzarini, F., Branca, S., Cavarra, L., Tibaldi, A., 1999. The DEM of Mt. Etna: geomorphological and structural implications. Geodinamica Acta 12, 279–290.

Favalli, M., Karátson, D., Mazzarini, F., Pareschi, M.T., Boschi, E., 2009b. Morphometry of scoria cones located on a volcano flank: A case study from Mt. Etna (Italy), based on high-resolution LiDAR data. Journal of Volcanology and Geothermal Research 186, 320–330. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2009.07.011

Favalli, M., Karátson, D., Yepes, J., Nannipieri, L., 2014. Surface fitting in geomorphology — Examples for regular-shaped volcanic landforms. Geomorphology 221, 139–149. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2014.06.009

Fevre, Y., 2005. Mécanismes et vitesses d'érosion à l'échelle géologique sur une île volcanique jeune à relief élevé–La Réunion (Océan Indien). FEVRE Yannick.

Fielitz, W., Seghedi, I., 2005. Late Miocene–Quaternary volcanism, tectonics and drainage system evolution in the East Carpathians, Romania. Tectonophysics 410, 111–136. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2004.10.018

Finnegan, N.J., Hallet, B., Montgomery, D.R., Zeitler, P.K., Stone, J.O., Anders, A.M., Yuping, L., 2008. Coupling of rock uplift and river incision in the Namche Barwa–Gyala Peri massif, Tibet. Geological Society of America Bulletin 120, 142–155.

Francis, H., 1983. Magmaandsediment-11 Problems of interpreting palaeovolcanics buried in the stratigraphiccolumn 19.

G

Gaber, L.J., Foland, K.A., Corbato, C.E., 1988. On the significance of argon release from biotite and amphibole during 40Ar/39Ar vacuum heating. Geochimica et Cosmochimica Acta 52, 2457–2465.

Gabet, E.J., 2007. A theoretical model coupling chemical weathering and physical erosion in landslide-dominated landscapes. Earth and Planetary Science Letters 264, 259–265.

Gabet, E.J., Mudd, S.M., 2009. A theoretical model coupling chemical weathering rates with denudation rates. Geology 37, 151–154.

Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., 1999. Geochemistry of large river suspended sediments: silicate weathering or recycling tracer? Geochimica et Cosmochimica Acta 63, 4037–4051.

Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., 1995. A global geochemical mass budget applied to the Congo Basin rivers: erosion rates and continental crust composition. Geochimica et Cosmochimica Acta 59, 3469–3485.

Garner, E.L., Murphy, T.J., Gramlich, J.W., Paulsen, P.J., Barnes, I.L., 1975. Absolute isotopic abundance ratios and the atomic weight of a reference sample of potassium: Journal of Research National Bureau of Standards, v. 79A.

Gee, J.S., Kent, D.V., 2007. Source of oceanic magnetic anomalies and the geomagnetic polarity time scale.

Germa, A., Lahitte, P., Quidelleur, X., 2015. Construction and destruction of Mont Pelée volcano: Volumes and rates constrained from a geomorphological model of evolution. Journal of Geophysical Research: Earth Surface 120, 1206–1226. https://doi.org/10.1002/2014JF003355

Germa, A., Quidelleur, X., Labanieh, S., Chauvel, C., Lahitte, P., 2011. The volcanic evolution of Martinique Island: Insights from K–Ar dating into the Lesser Antilles arc migration since the Oligocene. Journal of Volcanology and Geothermal Research 208, 122–135. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2011.09.007

Germa, A., Quidelleur, X., Labanieh, S., Lahitte, P., Chauvel, C., 2010. The eruptive history of Morne Jacob volcano (Martinique Island, French West Indies): Geochronology, geomorphology and geochemistry of the earliest volcanism in the recent Lesser Antilles arc. Journal of Volcanology and Geothermal Research 198, 297–310.

Gillot, P.-Y., Cornette, Y., 1986. The Cassignol technique for potassium—Argon dating, precision and accuracy: Examples from the Late Pleistocene to recent volcanics from southern Italy. Chemical Geology: Isotope Geoscience section 59, 205–222.

Gillot, P.-Y., Cornette, Y., Max, N., Floris, B., 1992. Two Reference Materials, Trachytes Mdo-G and Ish-G, for Argon Dating (k-Ar and 40ar/39ar) of Pleistocene and Holocene Rocks. Geostandards Newsletter 16, 55–60. https://doi.org/10.1111/j.1751-908X.1992.tb00487.x

Gîrbacea, R.A., 1997. The Pliocene to recent tectonic evolution of the Eastern Carpathians (Romania). Ph D Thesis, Univ. Tubingen, TGA A37, Tubingen 136.

Gislason, S.R., Arnorsson, S., Armannsson, H., 1996. Chemical weathering of basalt in Southwest Iceland; effects of runoff, age of rocks and vegetative/glacial cover. American Journal of Science 296, 837–907.

Gosse, J.C., Phillips, F.M., 2001. Terrestrial in situ cosmogenic nuclides: theory and application. Quaternary Science Reviews 20, 1475–1560.

Gröger, H.R., Fügenschuh, B., Tischler, M., Schmid, S.M., Foeken, J.P.T., 2008. Tertiary cooling and exhumation history in the Maramures area (internal eastern Carpathians, northern Romania): thermochronology and structural data. Geological Society, London, Special Publications 298, 169–195.

Grosse, P., Euillades, P.A., Euillades, L.D., de Vries, B. van W., 2014. A global database of composite volcano morphometry. Bulletin of Volcanology 76, 784.

Grosse, P., Kervyn, M., 2018. Morphometry of terrestrial shield volcanoes. Geomorphology 304, 1–14. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2017.12.017

Grosse, P., Orihashi, Y., Guzman, S.R., Sumino, H., Nagao, K., 2018. Eruptive history of Incahuasi, Falso Azufre and El Condor Quaternary composite volcanoes, southern Central Andes. Bulletin of Volcanology 80, 44. https://doi.org/10.1007/s00445-018-1221-5

Grosse, P., van Wyk de Vries, B., Euillades, P.A., Kervyn, M., Petrinovic, I.A., 2012. Systematic morphometric characterization of volcanic edifices using digital elevation models. Geomorphology 136, 114–131. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.06.001

Grosse, P., van Wyk de Vries, B., Petrinovic, I.A., Euillades, P.A., Alvarado, G.E., 2009. Morphometry and evolution of arc volcanoes. Geology 37, 651–654. https://doi.org/10.1130/G25734A.1

Gvirtzman, Z., 2002. Partial detachment of a lithospheric root under the southeast Carpathians: toward a better definition of the detachment concept. Geology 30, 51–54.

H

Hames, W.E., Cheney, J.T., 1997. On the loss of 40Ar∗ from muscovite during polymetamorphism. Geochimica et Cosmochimica Acta 61, 3863–3872.

Hámor, G., Ravasz-Baranyai, L., Balogh, K., Árva-Sós, E., 1979. K/Ar dating of Miocene pyroclastic rocks in Hungary. Annales GeÂologique Pays HelleÂnique, Hors Serie 2, 491–500.

Harangi, S., Lenkey, L., 2007. Genesis of the Neogene to Quaternary volcanism in the Carpathian-Pannonian region: Role of subduction, extension, and mantle plume. SPECIAL PAPERS-GEOLOGICAL SOCIETY OF AMERICA 418, 67.

Harangi, S., Lukacs, R., Schmitt, A.K., Dunkl, I., Molnar, K., Kiss, B., Seghedi, I., Novothny, A., Molnar, M., 2015a. Constraints on the timing of Quaternary volcanism and duration of magma residence at Ciomadul volcano, east-central Europe, from combined U-Th/He and U-Th zircon geochronology. Journal of Volcanology and Geothermal Research 301, 66–80. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2015.05.002

Harangi, S., Mason, P.R., Lukács, R., 2005. Correlation and petrogenesis of silicic pyroclastic rocks in the Northern Pannonian Basin, Eastern-Central Europe: In situ trace element data of glass shards and mineral chemical constraints. Journal of Volcanology and Geothermal Research 143, 237–257.

Harangi, S., Molnár, M., Vinkler, A.P., Kiss, B., Jull, A.T., Leonard, A.G., 2010. Radiocarbon dating of the last volcanic eruptions of Ciomadul volcano, Southeast Carpathians, eastern-central Europe. Radiocarbon 52, 1498–1507.

Harangi, S., Novak, A., Kiss, B., Seghedi, I., Lukacs, R., Szarka, L., Wesztergom, V., Metwaly, M., Gribovszki, K., 2015b. Combined magnetotelluric and petrologic constrains for the nature of the magma storage system beneath the Late Pleistocene Ciomadul volcano (SE Carpathians). Journal of Volcanology and Geothermal Research 290, 82–96. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2014.12.006

Harrison, T.M., Heizler, M.T., Lovera, O.M., Wenji, C., Grove, M., 1994. A chlorine disinfectant for excess argon released from K-felsspar during step heating. Earth and Planetary Science Letters 123, 95–104.

Harrison, T.M., McDougall, I., 1980. Investigations of an intrusive contact, northwest Nelson, New Zealand—II. Diffusion of radiogenic and excess 40Ar in hornblende revealed by 40Ar39Ar age spectrum analysis. Geochimica et Cosmochimica Acta 44, 2005–2020.

Henck, A.C., Huntington, K.W., Stone, J.O., Montgomery, D.R., Hallet, B., 2011. Spatial controls on erosion in the Three Rivers Region, southeastern Tibet and southwestern China. Earth and Planetary Science Letters 303, 71–83.

Hildenbrand, A., Gillot, P.-Y., Marlin, C., 2008. Geomorphological study of long-term erosion on a tropical volcanic ocean island: Tahiti-Nui (French Polynesia). Geomorphology 93, 460–481. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2007.03.012

Hjort, J., Luoto, M., 2012. Can geodiversity be predicted from space? Geomorphology 153, 74–80.

Hora, J.M., Singer, B.S., Wörner, G., 2007. Volcano evolution and eruptive flux on the thick crust of the Andean Central Volcanic Zone: 40Ar/39Ar constraints from Volcán Parinacota, Chile. Geological Society of America Bulletin 119, 343–362.

Horváth, F., 1993. Towards a mechanical model for the formation of the Pannonian basin. Tectonophysics 226, 333–357.

J

James, M.R., Robson, S., 2014. Mitigating systematic error in topographic models derived from UAV and ground-based image networks. Earth Surface Processes and Landforms 39, 1413–1420.

Jenness, J., 2006. Topography position index TPI landform slope classification standardization neighborhood statistics. Topographic Position Index (TPI) v 1.

K

Karátson, D., 2014. Composite Volcano, in: Encyclopedia of Planetary Landforms. Springer New York, New York, NY, pp. 1–15. https://doi.org/10.1007/978-1-4614-9213-9_62-1

Karátson, D., 2007. A Börzsönytől a Hargitáig—vulkanológia, felszínfejlődés, ősföldrajz. Typotex Kiadó, Budapest 463.

Karátson, D., 1999. Erosion of primary volcanic depressions in the Inner Carpathian Volcanic Chain. Zeitschrift fur Geomorphologie, Supplementband 114, 49–62.

Karátson, D., 1997. Volcanic activity of the Börzsöny Mts., and its relationship to the caldera problem. Bull. Hung. Geogr. Soc 121, 4.

Karátson, D., 1996. Rates and factors of stratovolcano degradation in a continental climate: A complex morphometric analysis for nineteen Neogene/Quaternary crater remnants in the Carpathians. Journal of Volcanology and Geothermal Research 73, 65–78. https://doi.org/10.1016/0377-0273(96)00016-9

Karátson, D., 1995. Ignimbrite formation, resurgent doming and dome collapse activity in the Miocene Borzsony Mountains. Acta Vulcan. 7, 107–117.

Karátson, D., 1994. A Hargita és a Görgényi-havasok vulkánossága, elsődleges formakincse és mai felszínének kialakulása (Volcanism of Harghita and Gurghiu Mts., their primary landforms, and

formation of the present relief). Földrajzi Közlemények (Bull. Hung. Geogr. Soc.), Budapest, CXVIII (XLII), in: Hungarian with English Abstract. pp. 83–111.

Karátson, D., Csontos, L., Harangi, S., Székely, B., Kovácsvólgyi, S., 2001. Volcanic successions and the role of destructional events in the Western Mátra Mountains, Hungary: implications for the volcanic structures/Successions volcanologiques et événements tectoniques dans les Monts Mátra occidentaux: implications pour les structures volcaniques. Géomorphologie: relief, processus, environnement 7, 79–92.

Karátson, D., Favalli, M., Tarquini, S., Fornaciai, A., Wörner, G., 2010. The regular shape of stratovolcanoes: A DEM-based morphometrical approach. Journal of Volcanology and Geothermal Research 193, 171–181. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2010.03.012

Karátson, D., Marton, E., Harangi, S., Jozsa, S., Balogh, K., Pecskay, Z., Kovacsvolgyi, S., Szakmany, G., Dulai, A., 2000. Volcanic evolution and stratigraphy of the Miocene Borzony Mountains, Hungary: An integrated study. Geologica Carpathica 51, 325–343.

Karátson, D., Németh, K., 2001. Lithofacies associations of an emerging volcaniclastic apron in a Miocene volcanic complex: an example from the Börzsöny Mountains, Hungary. Int J Earth Sci (Geol Rundsch) 90, 776–794. https://doi.org/10.1007/s005310100193

Karátson, D., Olah, I., Pecskay, Z., Marton, E., Harangi, S., Dulai, A., Zelenka, T., Kosik, S., 2007. Miocene volcanism in the Visegrad Mountains (Hungary): an integrated approach to regional volcanic stratigraphy. Geologica Carpathica 58, 541–563.

Karátson, D., Pécskay, Z., Szakács, S., Seghedi, I., 1992. An extinct volcano in the Hargita Mountains, Eastern Carpathians: Mt. Kakukkhegy. Tudomány (Hung issue of Sci Am) Budapest 1, 70–79.

Karátson, D., Telbisz, T., Dibacto, S., Lahitte, P., Szakács, A., Veres, D., Gertisser, R., Jánosi, Cs., Timár, G., 2019. Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part II: magma output rates. Bulletin of Volcanology 81. https://doi.org/10.1007/s00445-019-1287-8

Karátson, D., Telbisz, T., Harangi, S., Magyari, E., Dunkl, I., Kiss, B., Jánosi, C., Veres, D., Braun, M., Fodor, E., 2013. Morphometrical and geochronological constraints on the youngest eruptive activity in East-Central Europe at the Ciomadul (Csomád) lava dome complex, East Carpathians. Journal of Volcanology and Geothermal Research 255, 43–56.

Karátson, D., Telbisz, T., Woerner, G., 2012. Erosion rates and erosion patterns of Neogene to Quaternary stratovolcanoes in the Western Cordillera of the Central Andes: An SRTM DEM based analysis. Geomorphology 139, 122–135. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.10.010

Karátson, D., Thouret, J.-C., Moriya, I., Lomoschitz, A., 1999. Erosion calderas: origins, processes, structural and climatic control. Bulletin of Volcanology 61, 174–193. https://doi.org/10.1007/s004450050270

Karátson, D., Timar, G., 2005. Comparative volumetric calculations of two segments of the Carpathian Neogene/Quaternary volcanic chain using SRTM elevation data: implications for erosion and

magma output rates, in: Thouret, J.C., Chester, D.K. (Eds.), Volcanic Landforms, Processes and Hazards. pp. 19–35.

Karátson, D., Wulf, S., Veres, D., Magyari, E.K., Gertisser, R., Timar-Gabor, A., Novothny, A., Telbisz, T., Szalai, Z., Anechitei-Deacu, V., Appelt, O., Bormann, M., Janosi, C., Hubay, K., Schaebitz, F., 2016a. The latest explosive eruptions of Ciomadul (Csomad) volcano, East Carpathians - A tephrostratigraphic approach for the 51-29 ka BP time interval. Journal of Volcanology and Geothermal Research 319, 29–51. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2016.03.005

Karátson, D., Yepes, J., Favalli, M., Rodriguez-Peces, M.J., Fomaciai, A., 2016b. Reconstructing eroded paleovolcanoes on Gran Canaria, Canary Islands, using advanced geomorphometry. Geomorphology 253, 123–134. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2015.10.004

Kelley, S., 2002. Excess argon in K–Ar and Ar–Ar geochronology. Chemical Geology 188, 1–22.

Kereszturi, G., Németh, K., Cronin, S.J., Agustín-Flores, J., Smith, I.E., Lindsay, J., 2013. A model for calculating eruptive volumes for monogenetic volcanoes—Implication for the Quaternary Auckland Volcanic Field, New Zealand. Journal of Volcanology and Geothermal Research 266, 16–33.

Kervyn, M., Ernst, G.G.J., Carracedo, J.-C., Jacobs, P., 2012. Geomorphometric variability of "monogenetic" volcanic cones: evidence from Mauna Kea, Lanzarote and experimental cones. Geomorphology 136, 59–75.

Kervyn, M., Ernst, G.G.J., Goossens, R., Jacobs, P., 2008. Mapping volcano topography with remote sensing: ASTER vs. SRTM. International Journal of Remote Sensing 29, 6515–6538.

Kiss, B., Harangi, S., Ntaflos, T., Mason, P.R., Pál-Molnár, E., 2014. Amphibole perspective to unravel pre-eruptive processes and conditions in volcanic plumbing systems beneath intermediate arc volcanoes: a case study from Ciomadul volcano (SE Carpathians). Contributions to Mineralogy and Petrology 167, 986.

Klinge, M., Sauer, D., 2019. Spatial pattern of Late Glacial and Holocene climatic and environmental development in Western Mongolia - A critical review and synthesis. Quaternary Science Reviews 210, 26–50. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2019.02.020

Knapp, J.H., Knapp, C.C., Raileanu, V., Matenco, L., Mocanu, V., Dinu, C., 2005. Crustal constraints on the origin of mantle seismicity in the Vrancea Zone, Romania: The case for active continental lithospheric delamination. Tectonophysics 410, 311–323.

Kober, F., Ivy-Ochs, S., Schlunegger, F., Baur, H., Kubik, P.W., Wieler, R., 2007. Denudation rates and a topography-driven rainfall threshold in northern Chile: Multiple cosmogenic nuclide data and sediment yield budgets. Geomorphology 83, 97–120.

Koppes, M.N., Montgomery, D.R., 2009. The relative efficacy of fluvial and glacial erosion over modern to orogenic timescales. Nature Geoscience 2, 644–647.

Korpás, L., 1998. Explanations to the geological map of the Börzsöny and Visegrád Mountains. Hung. Geol. Inst., Budapest 1–216.

Korpás, L., Lang, B., 1993. Timing of volcanism and metallogenesis in the Börzsöny Mountains, Northern Hungary. Ore Geology Reviews 8, 477–501.

Korpás, L., Teplánszky, E., 1999. Uncovered Geological Map of the Börzsöny–Visegrád Hills area, 1: 50 000. Geol. Inst. Hungary, Budapest.

Kramar, N., Cosca, M.A., Hunziker, J.C., 2001. Heterogeneous 40Ar* distributions in naturally deformed muscovite: in situ UV-laser ablation evidence for microstructurally controlled intragrain diffusion. Earth and Planetary Science Letters 192, 377–388.

Krige, D.G., 1951. A statistical approach to some basic mine valuation problems on the Witwatersrand. Journal of the Southern African Institute of Mining and Metallurgy 52, 119–139.

Krs, M., Krsová, M., Pruner, P., 1996. Palaeomagnetism and palaeogeography of the Western Carpathians from the Permian to the Neogene. Geological Society, London, Special Publications 105, 175–184.

L

Lagabrielle, Y., Guivel, C., Maury, R.C., Bourgois, J., Fourcade, S., Martin, H., 2000. Magmatic–tectonic effects of high thermal regime at the site of active ridge subduction: the Chile Triple Junction model. Tectonophysics 326, 255–268.

Lahitte, P., Dibacto, S., Karátson, D., Gertisser, R., Veres, D., 2019. Eruptive history of the Late Quaternary Ciomadul (Csomád) volcano, East Carpathians, part I: timing of lava dome activity. Bulletin of Volcanology 81. https://doi.org/10.1007/s00445-019-1286-9

Lahitte, P., Samper, A., Quidelleur, X., 2012. DEM-based reconstruction of southern Basse-Terre volcanoes (Guadeloupe archipelago, FWI): Contribution to the Lesser Antilles Arc construction rates and magma production. Geomorphology 136, 148–164. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.04.008

Lang, B., Edelstein, O., Steinitz, G., Kovacs, M., Halga, S., 1994. Ar-Ar dating of adularia; a tool in understanding genetic relations between volcanism and mineralization; Baia Mare area (Gutii Mountains), northwestern Romania. Economic Geology 89, 174–180. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.89.1.174

Laumonier, B., Branquet, Y., Lopès, B., Cheilletz, A., Giuliani, G., Rueda, F., 1996. Mise en évidence d'une tectonique compressive Éocène-Oligocène dans l'Ouest de la Cordillère orientale de Colombie, d'après la structure en duplex des gisements d'émeraude de Muzo et de Coscuez (Evidence for an Eocene-Oligocene compressive tectonics in the western part of Eastern Cordillera of Colombia, from the duplex structure of the Muzo and Coscuez emerald deposits).

Lavigne, F., Degeai, J.-P., Komorowski, J.-C., Guillet, S., Robert, V., Lahitte, P., Oppenheimer, C., Stoffel, M., Vidal, C.M., Surono, Pratomo, I., Wassmer, P., Hajdas, I., Hadmoko, D.S., de Belizal, E., 2013. Source of the great A.D. 1257 mystery eruption unveiled, Samalas volcano, Rinjani Volcanic Complex, Indonesia. Proc Natl Acad Sci USA 110, 16742. https://doi.org/10.1073/pnas.1307520110

Le Friant, A., Harford, C.L., Deplus, C., Boudon, G., Sparks, R.S.J., Herd, R.A., Komorowski, J.C., 2004. Geomorphological evolution of Montserrat (West Indies): importance of flank collapse and erosional processes. Journal of the Geological Society 161, 147–160. https://doi.org/10.1144/0016-764903-017

Lebatard, A.-E., Bourlès, D., 2015. Quantification des processus superficiels et datation par les radionucléides cosmogéniques 10Be, 26Al et 36Cl. Quaternaire. Revue de l'Association française pour l'étude du Quaternaire 26, 193–213.

Lee, J.K., 1993. The argon release mechanisms of hornblende in vacuo. Chemical Geology 106, 133–170.

Lillie, R.J., Bielik, M., Babuška, V., Plomerová, J., 1994. Gravity modelling of the lithosphere in the Eastern Alpine-Western Carpathian-Pannonian Basin region. Tectonophysics 231, 215–235.

Lipman, P.W., Mullineaux, D.R., 1981. 1981, The 1980 eruptions of Mount St. Helens, Washington: US Geological Survey Professional Paper 1250, 844.

Lippolt, H.J., Troesch, M., Hess, J.C., 1990. Excess argon and dating of quaternary Eifel volcanism, IV. Common argon with high and lower-than-atmospheric 40Ar/36Ar ratios in phonolitic rocks, East Eifel, FRG. Earth and planetary science letters 101, 19–33.

Lisiecki, L.E., Raymo, M.E., 2005. A Pliocene-Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic δ18O records. Paleoceanography 20.

López, D.L., Williams, S.N., 1993. Catastrophic volcanic collapse: relation to hydrothermal processes. Science 260, 1794–1796.

Louvat, P., Allègre, C.J., 1998. Riverine erosion rates on Sao Miguel volcanic island, Azores archipelago. Chemical Geology 148, 177–200.

Louvat, P., Allègre, C.J., 1997. Present denudation rates on the island of Réunion determined by river geochemistry: Basalt weathering and mass budget between chemical and mechanical erosions. Geochimica et Cosmochimica Acta 61, 3645–3669. https://doi.org/10.1016/S0016-7037(97)00180-4

Lucas, Y., 2001. The role of plants in controlling rates and products of weathering: importance of biological pumping. Annual Review of Earth and Planetary Sciences 29, 135–163.

Lugeon, M., 1903. Les nappes de recouvrement de la Tatra et l'origine des Klippes des Carpathes. Verlag nicht ermittelbar.

Lukács, R., Harangi, S., Bachmann, O., Guillong, M., Danišík, M., Buret, Y., von Quadt, A., Dunkl, I., Fodor, L., Sliwinski, J., Soós, I., Szepesi, J., 2015. Zircon geochronology and geochemistry to constrain the youngest eruption events and magma evolution of the Mid-Miocene ignimbrite flare-up in the Pannonian Basin, eastern central Europe. Contributions to Mineralogy and Petrology 170. https://doi.org/10.1007/s00410-015-1206-8

Lukács, R., Harangi, S., Guillong, M., Bachmann, O., Fodor, L., Buret, Y., Dunkl, I., Sliwinski, J., von Quadt, A., Peytcheva, I., Zimmerer, M., 2018. Early to Mid-Miocene syn-extensional massive silicic volcanism in the Pannonian Basin (East-Central Europe): Eruption chronology,

correlation potential and geodynamic implications. Earth-Science Reviews 179, 1–19. https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2018.02.005

Lukács, R., Harangi, S., Mason, P.R., Ntaflos, T., 2009. Bimodal pumice populations in the 13.5 Ma Harsány ignimbrite, Bükkalja Volcanic Field, Northern Hungary: Syn-eruptive mingling of distinct rhyolitic magma batches? Central European Geology 52, 51–72.

Lukács, R., Harangi, S., Ntaflos, T., Mason, P.R., 2005. Silicate melt inclusions in the phenocrysts of the Szomolya Ignimbrite, Bükkalja Volcanic Field (Northern Hungary): Implications for magma chamber processes. Chemical Geology 223, 46–67.

Lukács, R., Ntaflos, T., Koller, F., Pécskay, Z., 2007. The characteristics of the Upper Rhyolite Tuff Horizon in the Bükkalja Volcanic Field: The Harsány ignimbrite unit. Földtani Közlöny 137, 487–514.

M

Magyari, E.K., Veres, D., Wennrich, V., Wagner, B., Braun, M., Jakab, G., Karatson, D., Pal, Z., Ferenczy, G., St-Onge, G., Rethemeyer, J., Francois, J.-P., von Reumont, F., Schaebitz, F., 2014. Vegetation and environmental responses to climate forcing during the Last Glacial Maximum and deglaciation in the East Carpathians: attenuated response to maximum cooling and increased biomass burning. Quaternary Science Reviews 106, 278–298. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2014.09.015

Maheľ, M., Zárubová, H., 1974. Tectonics of the Carpathian Balkan Regions: Explanations to the Tectonic Map of the Carpathian-Balkan Regions and Their Foreland. Geological Institute of Dionýz Štúr.

Martin, J.-M., Meybeck, M., 1979. Elemental mass-balance of material carried by major world rivers. Marine chemistry 7, 173–206.

Márton, E., Fodor, L., 1995. Combination of palaeomagnetic and stress data—a case study from North Hungary. Tectonophysics 242, 99–114.

Márton, E., Grabowski, J., Tokarski, A.K., Túnyi, I., 2016. Palaeomagnetic results from the fold and thrust belt of the Western Carpathians: an overview. Geological Society, London, Special Publications 425, 7–36. https://doi.org/10.1144/SP425.1

Márton, E., Márton, P., 1996. Large scale rotations in North Hungary during the Neogene as indicated by palaeomagnetic data. Geological Society, London, Special Publications 105, 153–173.

Márton, E., Pécskay, Z., 1998. Complex evaluation of paleomagnetic and K/Ar isotope data of the Miocene ignimbritic volcanics in the Bukk Foreland, Hungary. Acta Geologica Hungarica 41, 467–476.

Márton, E., Vass, D., Túnyi, I., 2000. Counterclockwise rotations of the Neogene rocks in the East Slovak Basin. Geologica Carpathica 51, 159–168.

Márton, E., Zelenka, T., Márton, P., 2007. Paleomagnetic correlation of Miocene pyroclastics of the Bükk Mts and their forelands. Central European Geology 50, 47–57.

Mason, P.R.D., Downes, H., Thirlwall, M.F., Seghedi, I., Szakács, A., Lowry, D., Mattey, D., 1996. Crustal Assimilation as a Major Petrogenetic Process in the East Carpathian Neogene and Quaternary Continental Margin Arc, Romania. Journal of Petrology 37, 927–959. https://doi.org/10.1093/petrology/37.4.927

Mason, P.R.D., Seghedi, I., Szákacs, A., Downes, H., 1998. Magmatic constraints on geodynamic models of subduction in the East Carpathians, Romania. Tectonophysics 297, 157–176. https://doi.org/10.1016/S0040-1951(98)00167-X

Matenco, L., Bertotti, G., 2000. Tertiary tectonic evolution of the external East Carpathians (Romania). Tectonophysics 316, 255–286.

Maţenco, L., Bertotti, G., Dinu, C., Cloetingh, S., 1997. Tertiary tectonic evolution of the external South Carpathians and the adjacent Moesian platform (Romania). Tectonics 16, 896–911.

Matenco, L., Krézsek, C., Merten, S., Schmid, S., Cloetingh, S., Andriessen, P., 2010. Characteristics of collisional orogens with low topographic build-up: an example from the Carpathians. Terra Nova 22, 155–165. https://doi.org/10.1111/j.1365-3121.2010.00931.x

McDougall, Harrison, T.M., 1999. Geochronology and Thermochronology by the 40Ar/39Ar Method. Oxford University Press on Demand.

Melelli, L., Vergari, F., Liucci, L., Del Monte, M., 2017. Geomorphodiversity index: Quantifying the diversity of landforms and physical landscape. Science of the Total Environment 584, 701–714.

Merle, O., Borgia, A., 1996. Scaled experiments of volcanic spreading. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 101, 13805–13817. https://doi.org/10.1029/95JB03736

Meulenkamp, J.E., Kováč, M., Cicha, I., 1996. On Late Oligocene to Pliocene depocentre migrations and the evolution of the Carpathian-Pannonian system. Tectonophysics 266, 301–317.

Meybeck, M., 1987. Global chemical weathering of surficial rocks estimated from river dissolved loads. American journal of science 287, 401–428.

Michailova, N., Glevasskaia, A., Tsykora, V., Nestianu, T., Romanescu, D., 1983. New paleomagnetic data for the Calimani, Gurghiu and Harghita volcanic Mountains in the Romanian Carpathians. Ann. Inst. Geol. Geofiz 63, 112–124.

Milliman, J.D., Syvitski, J.P., 1992. Geomorphic/tectonic control of sediment discharge to the ocean: the importance of small mountainous rivers. The journal of Geology 100, 525–544.

Millot, R., érôme Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., 2003. Northern latitude chemical weathering rates: clues from the Mackenzie River Basin, Canada. Geochimica et Cosmochimica Acta 67, 1305–1329.

Millot, R., Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., 2002. The global control of silicate weathering rates and the coupling with physical erosion: new insights from rivers of the Canadian Shield. Earth and Planetary Science Letters 196, 83–98.

Molnár, K., Harangi, S., Lukács, R., Dunkl, I., Schmitt, A.K., Kiss, B., Garamhegyi, T., Seghedi, I., 2018. The onset of the volcanism in the Ciomadul Volcanic Dome Complex (Eastern

Carpathians): Eruption chronology and magma type variation. Journal of Volcanology and Geothermal Research 354, 39–56. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2018.01.025

Molnar, K., Lukacs, R., Dunkl, I., Schmitt, A.K., Kiss, B., Seghedi, I., Szepesi, J., Harangi, S., 2019. Episodes of dormancy and eruption of the Late Pleistocene Ciomadul volcanic complex (Eastern Carpathians, Romania) constrained by zircon geochronology. Journal of Volcanology and Geothermal Research 373, 133–147. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2019.01.025

Molnar, P., 2009. The state of interactions among tectonics, erosion, and climate: A polemic. GSA Today 19, 44–45.

Molnar, P., England, P., 1990. Late Cenozoic uplift of mountain ranges and global climate change: chicken or egg? Nature 346, 29–34.

Montgomery, D.R., Brandon, M.T., 2002. Topographic controls on erosion rates in tectonically active mountain ranges. Earth and Planetary Science Letters 201, 481–489.

Montigny, R., 1985. Méthode classique potassium-argon. Méthode de datation par les phénomènes nucléaires naturels: applications: textes réunis par E. Roth et b. Poty. Masson.

Morley, C.K., 1988. Out-of-sequence thrusts. Tectonics 7, 539–561.

Moulton, K.L., Berner, R.A., 1998. Quantification of the effect of plants on weathering: studies in Iceland. Geology 26, 895–898.

Moulton, K.L., West, J., Berner, R.A., 2000. Solute flux and mineral mass balance approaches to the quantification of plant effects on silicate weathering. American Journal of Science 300, 539–570.

Mrazec, M.L., 1915. Les plis diapirs et le diapirisme en général. Comptes Rendus des Séances, Institut Géologique de Roumanie 4, 226–270.

N

Nelder, J.A., Mead, R., 1965. A simplex method for function minimization. The computer journal 7, 308–313.

Nier, A.O., 1950. A redetermination of the relative abundances of the isotopes of carbon, nitrogen, oxygen, argon, and potassium. Physical Review 77, 789.

Noszky, J., 1930. A Magyar Középhegység ÉK–i részének oligocén–miocén rétegei: II. A Miocén, in: Annales Musei Nationalis Hungarici. pp. 159–204.

O

Oliva, P., Viers, J., Dupré, B., Fortuné, J.P., Martin, F., Braun, J.J., Nahon, D., Robain, H., 1999. The effect of organic matter on chemical weathering: Study of a small tropical watershed: Nsimi-Zoetele site, Cameroon. Geochimica et Cosmochimica Acta 63, 4013–4035.

Ollier, C., 1988. Volcanoes, 228 pp. Basil Blackwell, Ltd., New York, NY.

Ollier, C.D., Brown, M.J.F., 1971. Erosion of a young volcano in New Guiana. Zeitschrift fur Geomorphologie 15, 12–28.

Ozawa, A., Tagami, T., Kamata, H., 2006. Argon isotopic composition of some Hawaiian historical lavas. Chemical Geology 226, 66–72. https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2005.10.001

P

Panaiotu, C., 1999. Paleomagnetic studies in Romania. Tectonophysics implications. Unpublished PhD thesis University Bucharest.

Panaiotu, C., 1998. Paleomagnetic constraints on the geodynamic history of Romania. Monograph of Southern Carpathians. Reports on Geodesy 7, 205–216.

Panaiotu, C., Sęclăman, M., Panaiotu, C.E., 1994. Timing of rotational motion of Apuseni Mountains (Romania): paleomagnetic data from Tertiary magmatic rocks. Tectonophysics 233, 163–176.

Panaiotu, C.G., Vişan, M., Ţugui, A., Seghedi, I., Panaiotu, A.G., 2012. Palaeomagnetism of the South Harghita volcanic rocks of the East Carpathians: implications for tectonic rotations and palaeosecular variation in the past 5 Ma: Palaeomagnetism of South Harghita volcanic area. Geophysical Journal International 189, 369–382. https://doi.org/10.1111/j.1365-246X.2012.05394.x

Pantó, G., 1970. Tertiary volcanism of the northern part of the Börzsöny Mts. Volcanological studies in the Mátra and Börzsöny Mountains. Akadémiai Kiadó, Budapest 163, 302.

Pantó, G., 1963. Ignimbrites of Hungary with regard to their genetics and classification. Bulletin Volcanologique 25, 175–181.

Paris, R., Carracedo, J.C., 2001. Formation d'une caldera d'érosion et instabilité récurrente d'une île de point chaud: la caldera de Taburiente, La Palma, îles Canaries/Formation of an erosion caldera and recurring instability on a hotspot-generated island: the caldera de Taburiente, La Palma, Canary Islands. Géomorphologie: relief, processus, environnement 7, 93–105.

Peccerillo, A., Taylor, S.R., 1976. Geochemistry of Eocene calc-alkaline volcanic rocks from the Kastamonu area, northern Turkey. Contributions to mineralogy and petrology 58, 63–81.

Pécskay, Edelstein, O., Seghedi, I., Szakacs, A., Marinel, K., Crihan, I.-M., Bernad, A., 1995a. K-Ar datings of Neogene-Quaternary calc-alkaline volcanic rocks in Romania.

Pécskay, SEGHEDI, I., Lexa, SZAKÁCS, 1995b. Space and time distribution of Neogene-Quaternary volcanism in the Carpatho-Pannonian region. Acta Vulcanol. 7, 15–28.

Pécskay, Szakács, S., Seghedi, I., Karátson, D., 1992. New data on the geochronological interpretation of Cucu volcano and its environs (South Harghita, Romania). Földt. Közl 122, 2–4.

Pécskay, Z., Lexa, J., Szakacs, A., Seghedi, I., Balogh, K., Konecny, V., Zelenka, T., Kovacs, M., Poka, T., Fulop, A., Marton, E., Panaiotu, C., Cvetkovic, V., 2006. Geochronology of Neogene magmatism in the Carpathian arc and intra-Carpathian area. Geologica Carpathica 57, 511–530.

Pedersen, V.K., Egholm, D.L., 2013. Glaciations in response to climate variations preconditioned by evolving topography. Nature 493, 206–210.

Peltz, S., Vajdea, E., Balogh, K., Pécskay, Z., 1987. Contributions to the chronological study of the volcanic processes in the Cãlimani and Harghita Mountains (East Carpathians, Romania). Compte Rendu de Institute de Geologie e Geofisique 72, 1.

Pike, R.J., 1978. Volcanoes on the inner planets-Some preliminary comparisons of gross topography, in: Lunar and Planetary Science Conference Proceedings. pp. 3239–3273.

Pinet, P., Souriau, M., 1988. Continental erosion and large-scale relief. Tectonics 7, 563–582.

Plescia, J.B., 2004. Morphometric properties of Martian volcanoes. Journal of Geophysical Research: Planets 109.

Poisson, B., 2002. Impact du climat et de la tectonique sur l'évolution géomorphologique d'un piémont-Exemple du piémont Nord du Tian Shan depuis la fin du Pléistocène.

Popa, M., Radulian, M., Szakacs, A., Seghedi, I., Zaharia, B., 2012. New Seismic and Tomography Data in the Southern Part of the Harghita Mountains (Romania, Southeastern Carpathians): Connection with Recent Volcanic Activity. Pure and Applied Geophysics 169, 1557–1573. https://doi.org/10.1007/s00024-011-0428-6

Popescu, S.-M., 2006. Late Miocene and early Pliocene environments in the southwestern Black Sea region from high-resolution palynology of DSDP Site 380A (Leg 42B). Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology 238, 64–77.

Popescu, S.-M., 2002. Repetitive changes in Early Pliocene vegetation revealed by high-resolution pollen analysis: revised cyclostratigraphy of southwestern Romania. Review of Palaeobotany and Palynology 120, 181–202.

Porcelli, D., Andersson, P.S., Wasserburg, G.J., Ingri, J., Baskaran, M., 1997. The importance of colloids and mires for the transport of uranium isotopes through the Kalix River watershed and Baltic Sea. Geochimica et Cosmochimica Acta 61, 4095–4113.

Portenga, E.W., Bierman, P.R., 2011. Understanding Earth's eroding surface with 10 Be. GSA today 21, 4–10.

Porter, S.C., 1972. Distribution, morphology, and size frequency of cinder cones on Mauna Kea volcano, Hawaii. Geological Society of America Bulletin 83, 3607–3612.

Puchol, N., 2013. Détermination des paléo-taux d'érosion par l'utilisation des isotopes cosmogéniques. Cas de la transition Pliocène-Pleistocène. Université de Lorraine.

Q

Quidelleur, X., Gillot, P.-Y., Soler, V., Lefèvre, J.-C., 2001. K/Ar dating extended into the last millennium: application to the youngest effusive episode of the Teide volcano (Spain). Geophysical Research Letters 28, 3067–3070.

R

Rad, S., 2007. Mécanismes et temps d'érosion dans les îles volcaniques: apport des séries de l'uranium, des éléments majeurs et traces, exemple des Antilles et de la Réunion. Unpubl.) PhD Thesis, Institut de Physique du Globe de Paris.

Rad, S., Louvat, P., Gorge, C., Gaillardet, J., Allègre, C.J., 2006. River dissolved and solid loads in the Lesser Antilles: new insight into basalt weathering processes. Journal of Geochemical Exploration 88, 308–312.

Rad, S., Rivé, K., Vittecoq, B., Cerdan, O., Allègre, C.J., 2013. Chemical weathering and erosion rates in the Lesser Antilles: An overview in Guadeloupe, Martinique and Dominica. Journal of South American Earth Sciences 45, 331–344.

Radulescu, D., Patrascu, S., Bellon, H., 1972. Pilocene geomagnetic epochs: New evidence of reversed polarity around the age of 7 my. Earth and Planetary Science Letters 14, 70–72.

Rădulescu, D.P., Săndulescu, M., 1973. The plate-tectonics concept and the geological structure of the Carpathians. Tectonophysics 16, 155–161. https://doi.org/10.1016/0040-1951(73)90010-3

Reddy, S.M., Potts, G.J., Kelley, S.P., 2001. 40 Ar/39 Ar ages in deformed potassium feldspar: evidence of microstructural control on Ar isotope systematics. Contributions to Mineralogy and Petrology 141, 186–200.

Reiners, P.W., Ehlers, T.A., Mitchell, S.G., Montgomery, D.R., 2003. Coupled spatial variations in precipitation and long-term erosion rates across the Washington Cascades. Nature 426, 645–647. https://doi.org/10.1038/nature02111

Rey, F., Ballais, J.-L., Marre, A., Rovera, G., 2004. Rôle de la végétation dans la protection contre l'érosion hydrique de surface. Comptes rendus géoscience 336, 991–998.

Ricci, J., Lahitte, P., Quidelleur, X., 2015a. Construction and destruction rates of volcanoes within tropical environment: Examples from the Basse-Terre Island (Guadeloupe, Lesser Antilles). Geomorphology 228, 597–607. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2014.10.002

Ricci, J., Quidelleur, X., Lahitte, P., 2015b. Volcanic evolution of central Basse-Terre Island revisited on the basis of new geochronology and geomorphology data. Bulletin of Volcanology 77, 84.

Riebe, C.S., Kirchner, J.W., Granger, D.E., Finkel, R.C., 2001. Minimal climatic control on erosion rates in the Sierra Nevada, California. Geology 29, 447–450.

Riquelme, R., Darrozes, J., Maire, E., Hérail, G., Soula, J.C., 2008. Long-term denudation rates from the Central Andes (Chile) estimated from a Digital Elevation Model using the Black Top Hat function and Inverse Distance Weighting: implications for the Neogene climate of the Atacama Desert. Andean Geology 35, 105–121.

Roman, C., 1970. Seismicity in Romania—evidence for the sinking lithosphere. Nature 228, 1176.

Royden, L.H., 1988. Late Cenozoic Tectonics of the Pannonian Basin System: Chapter 3.

Ruxton, B.P., McDougall, I., 1967. Denudation rates in northeast Papua from potassium-argon dating of lavas. American Journal of Science 265, 545–561.

S

Salvany, T., Lahitte, P., Nativel, P., Gillot, P.-Y., 2012. Geomorphic evolution of the Piton des Neiges volcano (Réunion Island, Indian Ocean): Competition between volcanic construction and

erosion since 1.4Ma. Geomorphology 136, 132–147. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2011.06.009

Samper, A., Quidelleur, X., Lahitte, P., Mollex, D., 2007. Timing of effusive volcanism and collapse events within an oceanic arc island: Basse-Terre, Guadeloupe archipelago (Lesser Antilles Arc). Earth and Planetary Science Letters 258, 175–191. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.03.030

Sanders, C., Huismans, R., van Wees, J.D., Andriessen, P., 2001. The Neogene history of the Transylvanian basin in relation to its surrounding mountains. Stephan Mueller Special Publication Series 3, 121–133. https://doi.org/10.5194/smsps-3-121-2002

Sanders, C.A., Andriessen, P.A.M., Cloetingh, S., 1999. Life cycle of the East Carpathian orogen: Erosion history of a doubly vergent critical wedge assessed by fission track thermochronology. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 104, 29095–29112.

Sandulescu, M., 1988. Cenozoic Tectonic History of the Carpathians: Chapter 2.

Sandulescu, M., 1984. Geotectonica României. Tehnica.

Schmid, S.M., Bernoulli, D., Fügenschuh, B., Matenco, L., Schefer, S., Schuster, R., Tischler, M., Ustaszewski, K., 2008. The Alpine-Carpathian-Dinaridic orogenic system: correlation and evolution of tectonic units. Swiss Journal of Geosciences 101, 139–183.

Schmid, S.M., Fügenschuh, B., Kissling, E., Schuster, R., 2004. Three lithospheric transects across the Alps and their forelands, in: Swiss Geoscience Meeting, Lausanne.

Schwarz, W.H., Trieloff, M., 2007. Intercalibration of 40Ar–39Ar age standards NL-25, HB3gr hornblende, GA1550, SB-3, HD-B1 biotite and BMus/2 muscovite. Chemical Geology 242, 218–231.

Seghedi, Downes, H., Harangi, S., Mason, P.R.D., Pecskay, Z., 2005a. Geochemical response of magmas to Neogene-Quaternary continental collision in the Carpathian-Pannonian region: A review. Tectonophysics 410, 485–499. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2004.09.015

Seghedi, I., 2004. Neogene–Quaternary magmatism and geodynamics in the Carpathian–Pannonian region: a synthesis. Lithos 72, 117–146. https://doi.org/10.1016/j.lithos.2003.08.006

Seghedi, I., Balintoni, I., Szakács, A., 1998. Interplay of tectonics and neogene post-collisional magmatism in the intracarpathian region. Lithos 45, 483–497. https://doi.org/10.1016/S0024-4937(98)00046-2

Seghedi, I., Downes, H., 2011. Geochemistry and tectonic development of Cenozoic magmatism in the Carpathian-Pannonian region. Gondwana Research 20, 655–672. https://doi.org/10.1016/j.gr.2011.06.009

Seghedi, I., Downes, H., Vaselli, O., Szakács, A., Balogh, K., Pécskay, Z., 2004a. Post-collisional Tertiary–Quaternary mafic alkalic magmatism in the Carpathian–Pannonian region: a review. Tectonophysics 393, 43–62. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2004.07.051

Seghedi, I., Maţenco, L., Downes, H., Mason, P.R.D., Szakács, A., Pécskay, Z., 2011. Tectonic significance of changes in post-subduction Pliocene–Quaternary magmatism in the south east

part of the Carpathian–Pannonian Region. Tectonophysics 502, 146–157. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2009.12.003

Seghedi, I., Mirea, V., Popa, R.-G., Szakács, A., 2019. Tectono-magmatic characteristics of post-collisional magmatism: Case study East Carpathians, Călimani-Gurghiu-Harghita volcanic range. Physics of the Earth and Planetary Interiors 293, 106270. https://doi.org/10.1016/j.pepi.2019.106270

Seghedi, I., Popa, R.-G., Panaiotu, C.G., Szakacs, A., Pecskay, Z., 2016. Short-lived eruptive episodes during the construction of a Na-alkalic basaltic field (Persani Mountains, SE Transylvania, Romania). Bulletin of Volcanology 78, 69. https://doi.org/10.1007/s00445-016-1063-y

Seghedi, I., Szakács, A., 1990. Harta geologica al structure Cucu. Manuscript, Inst. Geol. Geophys., Bucharest.

Seghedi, I., Szakacs, A., Snelling, N.J., Pecskay, Z., 2004b. Evolution of the Neogene Gurghiu Mountains volcanic range (Eastern Carpathians, Romania), based on K-Ar geochronology. Geologica Carpathica 55, 325–332.

Seghedi, I., Szakács, A., Udrescu, C., Stoian, M., Grabari, G., 1987. Trace element geochemistry of the South Harghita volcanics (East Carpathians). Calc-alkaline and shoshonitic association. DS Inst. Geol. Geofiz 72, 1.

Seghedi Ioan, Németh Karoly, Szakács Alexandru, Konečny Vlastimil, Pécskay Zoltan, Fülöp Alexandrina, Kovacs Marinel, 2010. Neogene-Quaternary Volcanic forms in the Carpathian-Pannonian Region: a review. geo 2, 207. https://doi.org/10.2478/v10085-010-0024-5

Seghedi, Szakács, A., Pécskay, Z., Mason, P.R.D., 2005b. Eruptive history and age of magmatic processes in the Cãlimani volcanic structure (Romania) 10.

Self, S., Sparks, R.S.J., Booth, B., Walker, G.P.L., 1974. The 1973 Heimaey strombolian scoria deposit, Iceland. Geological Magazine 111, 539–548.

Settle, M., 1979. The structure and emplacement of cinder cone fields. American Journal of Science 279, 1089–1107.

Siebert, L., 1984. Large volcanic debris avalanches: characteristics of source areas, deposits, and associated eruptions. Journal of volcanology and geothermal research 22, 163–197.

Siebert, L., Glicken, H., Ui, T., 1987. Volcanic hazards from Bezymianny-and Bandai-type eruptions. Bulletin of Volcanology 49, 435–459.

Smith, M.J., Clark, C.D., 2005. Methods for the visualization of digital elevation models for landform mapping. Earth Surface Processes and Landforms 30, 885–900.

Smith, S.G., Wegmann, K.W., Ancuta, L.D., Gosse, J.C., Hopkins, C.E., 2016. Paleotopography and erosion rates in the central Hangay Dome, Mongolia: Landscape evolution since the mid-Miocene. Journal of Asian Earth Sciences 125, 37–57. https://doi.org/10.1016/j.jseaes.2016.05.013

SMITH, S.R.Allen.E., 1994. Eruption styles and voIcanic hazardin the AuckIand VoIcanic Field, New ZeaJand. 静岡大学地球科学研究報告 20, 5–14.

Sperner, B., Lorenz, F., Bonjer, K., Hettel, S., Müller, B., Wenzel, F., 2001. Slab break-off–abrupt cut or gradual detachment? New insights from the Vrancea Region (SE Carpathians, Romania). Terra Nova 13, 172–179.

Stampfli, G.M., Borel, G.D., 2004. The TRANSMED transects in space and time: constraints on the paleotectonic evolution of the Mediterranean domain, in: The TRANSMED Atlas. The Mediterranean Region from Crust to Mantle. Springer, pp. 53–80.

Steiger, R.H., Jäger, E., 1977. Subcommission on geochronology: Convention on the use of decay constants in geo- and cosmochronology. Earth and Planetary Science Letters 36, 359–362. https://doi.org/10.1016/0012-821X(77)90060-7

Sternai, P., Herman, F., Champagnac, J.-D., Fox, M., Salcher, B., Willett, S.D., 2012. Pre-glacial topography of the European Alps. Geology 40, 1067–1070.

Stille, H., 1953. Der geotektonische Werdegang der Karpaten.

Suc, J.-P., 1984. Origin and evolution of the Mediterranean vegetation and climate in Europe. Nature 307, 429.

Sun, S.S., Donough, W., 1989. Chemical and Isotopic systematics ofoceanic basalts: Implications for mantle compositions and processes. Geological Society special publication. Chmaical and imtopic systm'katics o {o-cnic basalts: implication for mantle composition and processes 42, 313–346.

Szabó, C., Harangi, S., Csontos, L., 1992. Review of Neogene and Quaternary volcanism of the Carpathian-Pannonian region 14.

Szakács, A., Ioane, D., Seghedi, I., Rogobete, M., Pecskay, Z., 1997. Rates of migration of volcanic activity and magma out put along the Calimani-Gurghiu-Harghita volcanic range, East Carpathians, Romania. Przegląd Geologiczny 45, 1106.

Szakács, A., Krézsek, C., 2006. Volcano–basement interaction in the Eastern Carpathians: Explaining unusual tectonic features in the Eastern Transylvanian Basin, Romania. Journal of Volcanology and Geothermal Research 158, 6–20. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2006.04.012

Szakács, A., Ort, M., 2001. Comments on the article "Erosion calderas: origins, processes, structural and climatic control" by Karatson D., Thouret J.-C., Moriya I., Lomoschitz A. (1999) Bull Volcanol 61 :17 4—193. Bulletin of Volcanology 63, 289–290. https://doi.org/10.1007/s004450100148

Szakacs, A., Pecskay, Z., Silye, L., Balogh, K., Vlad, D., Fueloep, A., 2012. On the age of the Dej Tuff, Transylvanian Basin (Romania). Geologica Carpathica 63, 139–148. https://doi.org/10.2478/v10096-012-0011-9

Szakacs, A., Seghedi, I., 2013. THE RELEVANCE OF VOLCANIC HAZARD IN ROMANIA: IS THERE ANY? Environmental Engineering and Management Journal 12, 125–135. https://doi.org/10.30638/eemj.2013.015

Szakács, A., Seghedi, I., 2000. Large volume volcanic debris avalanche in the East Carpathians, Romania. Volcaniclastic rocks, from magmas to sediments, Gordon Breach Science Publishers, Amsterdam, The Netherlands 131–151.

Szakács, A., Seghedi, I., 1996. Volcaniclastic sequences around andesitic stratovolcanoes, East Carpathians, Romania. Romanian Journal of Petrology 77, 1–55.

Szakács, A., Seghedi, I., 1995. The Călimani-Gurghiu-Harghita volcanic chain. East Carpathians, Romania: Volcanological features. Acta Vulcanol, 7(2),145-153.

Szakács, A., Seghedi, I., 1990. Quaternary dacitic volcanism in the Ciomadul massif (South Harghita Mts, East Carpathians, Romania), in: IAVCEI International Volcanological Congress. pp. 3–8.

Szakács, A., Seghedi, I., Pécskay, Z., 1993. Peculiarities of South Harghita Mts as a Terminal Segment of the Carpathian Neogene to Quaternary Volcanic Chain. Editura Academiei Române.

Szakács, A., Seghedi, I., Pécskay, Z., Mirea, V., 2015. Eruptive history of a low-frequency and low-output rate Pleistocene volcano, Ciomadul, South Harghita Mts., Romania. Bulletin of Volcanology 77. https://doi.org/10.1007/s00445-014-0894-7

Székely, B., Karátson, D., 2004. DEM-based morphometry as a tool for reconstructing primary volcanic landforms: examples from the Börzsöny Mountains, Hungary. Geomorphology 63, 25–37. https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2004.03.008

T

Tărăpoancă, M., Bertotti, G., Maţenco, L., Dinu, C., Cloetingh, S., 2003. Architecture of the Focşani depression: A 13 km deep basin in the Carpathians bend zone (Romania). Tectonics 22.

Tari, G., Dövényi, P., Dunkl, I., Horváth, F., Lenkey, L., Stefanescu, M., Szafián, P., Tóth, T., 1999. Lithospheric structure of the Pannonian basin derived from seismic, gravity and geothermal data. Geological Society, London, Special Publications 156, 215–250.

Tarquini, S., Vinci, S., Favalli, M., Doumaz, F., Fornaciai, A., Nannipieri, L., 2012. Release of a 10-m-resolution DEM for the Italian territory: Comparison with global-coverage DEMs and anaglyph-mode exploration via the web. Computers & geosciences 38, 168–170.

Thiede, R.C., Bookhagen, B., Arrowsmith, J.R., Sobel, E.R., Strecker, M.R., 2004. Climatic control on rapid exhumation along the Southern Himalayan Front. Earth and Planetary Science Letters 222, 791–806.

Thomson, S.N., Brandon, M.T., Tomkin, J.H., Reiners, P.W., Vásquez, C., Wilson, N.J., 2010. Glaciation as a destructive and constructive control on mountain building. Nature 467, 313–317.

Thouret, J.-C., 1999. Volcanic geomorphology—an overview. Earth-Science Reviews 47, 95–131. https://doi.org/10.1016/S0012-8252(99)00014-8

Thouret, J.-C., Chester, D., Duncan, A., Ollier, C., 2007. Volcanic landforms, processes and hazards on volcanoes. Géomorphologie : relief, processus, environnement 13, 211–215.

Toussaint, G., Burov, E., Avouac, J.-P., 2004. Tectonic evolution of a continental collision zone: A thermomechanical numerical model. Tectonics 23.

Traverse, A., 1978. Palynological analysis of DSDP Leg 42B (1975) cores from the Black Sea. Initial Report DSDP 42, 993–1016.

Tyler, G., Ström, L., 1995. Differing organic acid exudation pattern explains calcifuge and acidifuge behaviour of plants. Annals of Botany 75, 75–78.

U

Uhlig, V.K., 1907. Über die Tektonik den Karpathen. Alfred Hölder.

Ustaszewski, K., Schmid, S.M., FüGENSCHUH, B., Tischler, M., Kissling, E., Spakman, W., 2008. A map-view restoration of the Alpine-Carpathian-Dinaridic system for the Early Miocene. Swiss Journal of Geosciences 101, 273–294.

V

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.

Van Wyk de Vries, B., Grosse, P., Alvarado, G.E., 2007. Volcanism and volcanic landforms. Central America: Geology, Resources, and Hazards 1, 123–154.

Vassallo, R., 2006. Chronologie et évolution des reliefs dans la région Mongolie-Sibérie: approche morphotectonique et géochronologique.

Viers, J., Dupré, B., Polvé, M., Schott, J., Dandurand, J.-L., Braun, J.-J., 1997. Chemical weathering in the drainage basin of a tropical watershed (Nsimi-Zoetele site, Cameroon): comparison between organic-poor and organic-rich waters. Chemical Geology 140, 181–206.

Vigier, N., Bourdon, B., Turner, S., Allègre, C.J., 2001. Erosion timescales derived from U-decay series measurements in rivers. Earth and Planetary Science Letters 193, 549–563.

Vinkler, A.P., Harangi, S.Z., Ntaflos, T., Szakács, A., 2007. Petrology and geochemistry of pumices from the Ciomadul volcano (Eastern Carpathians)—implication for petrogenetic processes. Földtani Közlöny 137, 103–128.

Voight, B., Elsworth, D., 1997. Failure of volcano slopes. Geotechnique 47, 1–31.

Völker, D., Kutterolf, S., Wehrmann, H., 2011. Comparative mass balance of volcanic edifices at the southern volcanic zone of the Andes between 33 S and 46 S. Journal of Volcanology and Geothermal Research 205, 114–129.

Von Blanckenburg, F., 2005. The control mechanisms of erosion and weathering at basin scale from cosmogenic nuclides in river sediment. Earth and Planetary Science Letters 237, 462–479.

W

Wadge, G., 1984. Comparison of volcanic production rates and subduction rates in the Lesser Antilles and Central America. Geology 12, 555–558.

Wadge, G., 1982. Steady state volcanism: Evidence from eruption histories of polygenetic volcanoes. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 87, 4035–4049. https://doi.org/10.1029/JB087iB05p04035

Wartho, J.-A., 1995. Apparent argon diffusive loss 40Ar/39Ar age spectra in amphiboles. Earth and Planetary Science Letters 134, 393–407.

Waythomas, C.F., Miller, T.P., Beget, J.E., 2000. Record of Late Holocene debris avalanches and lahars at Iliamna Volcano, Alaska. Journal of Volcanology and Geothermal Research 104, 97–130.

Weiss, A., 2001. Topographic position and landforms analysis, in: Poster Presentation, ESRI User Conference, San Diego, CA.

Whipple, K.X., Kirby, E., Brocklehurst, S.H., 1999. Geomorphic limits to climate-induced increases in topographic relief. Nature 401, 39–43.

Whipple, K.X., Tucker, G.E., 1999. Dynamics of the stream-power river incision model: Implications for height limits of mountain ranges, landscape response timescales, and research needs. Journal of Geophysical Research: Solid Earth 104, 17661–17674.

White, S.M., Crisp, J.A., Spera, F.J., 2006. Long-term volumetric eruption rates and magma budgets. Geochemistry, Geophysics, Geosystems 7. https://doi.org/10.1029/2005GC001002

Willenbring, J.K., Codilean, A.T., McElroy, B., 2013. Earth is (mostly) flat: Apportionment of the flux of continental sediment over millennial time scales. Geology 41, 343–346.

Wood, C.A., 1980. Morphometric analysis of cinder cone degradation. Journal of Volcanology and Geothermal Research 8, 137–160.

Wooller, L., van Wyk de Vries, B., Murray, J.B., Rymer, H., Meyer, S., 2004. Volcano spreading controlled by dipping substrata. Geology 32, 573. https://doi.org/10.1130/G20472.1

Wortel, M.J.R., Spakman, W., 2000. Subduction and slab detachment in the Mediterranean-Carpathian region. Science 290, 1910–1917.

Wright, R., Garbeil, H., Baloga, S.M., Mouginis-Mark, P.J., 2006. An assessment of shuttle radar topography mission digital elevation data for studies of volcano morphology. Remote Sensing of Environment 105, 41–53.

Y

Yokoyama, R., Shirasawa, M., Pike, R.J., 2002. Visualizing Topography by Openness: A New Application of Image Processing to Digital Elevation Models.

Yokoyama, R., Sirasawa, M., Kikuchi, Y., 1999. Representation of topographical features by opennesses. Journal of the Japan society of photogrammetry and remote sensing 38, 26–34.

Z

Zweigel, P., 1997. The Tertiary tectonic evolution of the Eastern Carpathians (Romania): Orogenic arc formation in response to microplate movements. Inst. und Museum für Geologie und Paläontologie.

ANNEXE A:

Tableau synthétique des nouveaux âges K-Ar

— ANNEXE A –

Tableau synthétique des nouveaux âges K-Ar

Sectors	Sample code	Rock type	Longitude (m)	Latitude (m)	Phase	Fraction Size (µm)	Density	Melted mass (g)	K%	40Ar* (in % of total 40Ar)	40Ar* $\times 10^{12}$ at/g	Age ± 1σ (Ma)		Mean age ± 1σ (Ma)	
Pilișca (South Harghita)	**17EC12**	Olt riverbed andesite	411434.177	5108373.765	G.M.	40-80	2.81-2.84	0.99610	0.592	19.65	1.32	2.14	0.03	**2.13±0.03**	CGH volcanic range
								2.30068		20.83	1.31	2.12	0.03		
	17EC13	Olt riverbed andesite	411284.501	5108696.355	G.M.	40-80	2.77-2.80	1.01798	0.599	13.86	1.34	2.14	0.03	**2.11±0.03**	
								1.57857		17.20	1.31	2.09	0.03		
	17EC14	Dacite (Tușnad Gorge)	411248.34	5111301.069	G.M.	63-125	2.48-2.51	1.14959	2.730	4,07	5.61	1.97	0.06	**1.98±0.06**	
								0.15036		4.10	5.75	2.02	0.06		
								0.13046		4.18	5.55	1.95	0.05		
	17EC15	Dacite (Tușnad Gorge)	411371.626	5111815.125	G.M.	125-250	2.52-2.55	0.82044	2.841	11.39	6.18	2.08	0.04	**2.11±0.04**	
								0.30400		9.87	6.36	2.14	0.04		
Vârghiș edifice (North Harghita)	17EC11	Pyroxene andesite	388477.329	5132719.105	G.M.	63-125	2.66-2.71	0.99313	1.503	61.74	7.24	4.61	0.07	**4.61±0.07**	
								1.32976		62.04	7.25	4.61	0.07		
	17EC09	Pyroxene andesite	390423.552	5143433.744	G.M.	125-250	2.63-2.67	1.00278	1.551	42.80	7.54	4.65	0.07	**4.65±0.07**	
								0.88290		40.63	7.55	4.66	0.07		
	17EC06	Pyroxene andesite	389497.309	5137475.602	G.M.	125-250	2.61-2.63	1.00395	1.932	77.38	9.67	4.79	0.07	**4.79±0.07**	
								1.26816		79.13	9.68	4.79	0.07		
	17EC10	Pyroxene andesite	391049.977	5144915.892	G.M.	63-125	2.61-2.64	0.92248	1.995	41.35	1.02	4.88	0.07	**4.89±0.07**	
								0.63608		40.30	1.02	4.91	0.07		
	17EC07	Pyroxene andesite	390205.909	5139881.503	G.M.	125-250	2.66-2.70	0.90092	1.326	39.82	7.07	5.10	0.07	**5.06±0.07**	
								0.90690		43.53	6.98	5.04	0.07		
	17EC08	Amphibole andesite	390874.966	5143062.219	G.M.	63-125	2.56-2.60	0.77766	2.373	22.09	13.56	5.46	0.08	**5.47±0.08**	
								0.25174		18.11	13.63	5.49	0.08		
Seaca-Tătarca (Gurghiu)	**17EC02**	Pyroxene andesite	368367.366	5170198.74	G.M.	63-125	2.62-2.69	0.90282	1.219	35.78	8.29	6.50	0.09	**6.47±0.09**	
								0.67361		32.34	8.22	6.45	0.09		
	17EC01	Pyroxene andesite	360819.941	5169711.87	G.M.	63-125	2.56-2.59	1.01265	1.328	56.06	9.05	6.51	0.09	**6.52±0.09**	
								0.96357		53.47	9.07	6.52	0.09		
	17EC05	Pyroxene andesite	371299.847	5169112.925	G.M.	125-250	2.61-2.65	0.88571	1.517	77.14	10.48	6.60	0.09	**6.61±0.09**	
								0.96337		67.20	10.50	6.61	0.09		
	17EC04	Pyroxene andesite	365662.61	5175973.982	G.M.	63-125	2.62-2.67	1.08020	1.461	70.99	10.18	6.66	0.09	**6.65±0.09**	
								1.06816		76.12	10.15	6.64	0.09		
	17EC03	Pyroxene andesite	366918.949	5172977.744	G.M.	125-250	2.56-2.58	1.00114	1.193	41.79	8.47	6.78	0.10	**6.79±0.10**	
								0.78759		32.82	8.50	6.81	0.10		
Central Călimani (Călimani)	**17KEL6**	Px-Amph Andesite	367485.616	5225415.255	G.M.	125-250	2.60-2.67	0.81537	1.680	57.99	14.71	8.36	0.12	**8.33±0.12**	
								0.65459		61.04	14.61	8.31	0.12		
	17P-KEL6	Px-Amph Andesite	367485.616	5225415.255	G.M.	125-250	2.64-2.68	0.90640	1.648	59.13	14.31	8.30	0.12	**8.30±0.12**	
								0.64304		56.91	14.29	8.29	0.12		
	17KEL5	Monzodiorite	367358.616	5220187.078	G.M.	125-250	2.65-2.69	0.96031	2.755	51.30	23.78	8.27	0.12	**8.26±0.12**	
								0.34215		44.59	23.66	8.23	0.12		
	17KEL1	Dacite (Pietricelul)	365940.446	5217795.240	G.M.	63-125	2.60-2.64	0.81722	2.291	75.95	16.09	6.71	0.10	**6.69±0.10**	
								0.73450		81.63	16.00	6.68	0.10		

— ANNEXE A –

Tableau synthétique des nouveaux âges K-Ar

Dome	Sample code	Longitude (m)	Latitude (m)	phase	Method	Fraction Size (µm)	Density	Melted mass (g)	K%	40Ar* (in % of total 40Ar)	40Ar* $\times 10^{11}$ at/g	Age ± 1σ (ka)		Mean age ± 1σ (ka)	
Dealul Cetății	15CIO01	413713.112	5110905.039	groundmass	Single separation	125-250	2.51-2.54	1.12936	3.612	5.00	7.62	202	5	**202±5**	Ciomadul volcanic complex
								1.60347	3.612	4.04	7.70	204	6		
								0.81418	3.612	3.87	7.52	199	6		
	15CIO01	413713.112	5110905.039	groundmass	Double separation	63-125	2.6-2.63	1.39572	3.722	4.40	7.14	184	5	**184±5**	
								0.98144	3.722	4.17	7.13	183	5		
	15CIO01	413713.112	5110905.039	amphibole	Single separation	125-250	—	1.34612	0.931	11.11	13.85	1423	24	**1386±37**	
								1.13661	0.931	27.43	13.34	1371	20		
	15CIO01	413713.112	5110905.039	biotite	Single separation	125-250		0.98961	6.532	20.60	38.88	570	9	**569±9**	
							—	0.70850	6.532	16.92	38.81	569	9		
	15CIO01	413713.112	5110905.039	Plag. Gl.	Single separation	125-250		0.92418	0.822	7.35	9.72	1132	22	**1132±22**	
Haramul Mic	16CIO00	416985.825	5114107.03	Pl. µP.	Double separation	63-125	2.54-2.60	1.00960	1.336	1.03	3.13	224	22	**245±22**	
								0.54336	1.336	1.21	3.68	264	22		
Vârful Comlos	16CIO02	413146.121	5109911.625	groundmass	Double separation	63-125	2.6-2.63	1.07610	3.471	4.27	5.22	144	4	**144±4**	
								1.25157	3.471	4.23	5.21	144	4		
	16CIO02	413146.121	5109911.625	Plag. µL.	Double separation	63-125	—	1.06093	0.654	7.50	7.32	1071	21	**1071±21**	
	16CIO02	413146.121	5109911.625	Plag. Gl.	Single separation	250-500	—	1.27157	0.655	24.75	12.66	1848	28	**1848±28**	
Ciomadul Mare	16CIO04	413872.773	5109760.31	Pl. µP.	Double separation	40-80	2.57-2.60	1.00768	1.377	1.21	1.72	120	10	**134±18**	
								1.00711	1.377	1.51	2.10	146	10		
	16CIO04	413872.773	5109760.31	Plag. µL.	Double separation	63-125	2.55-2.57	1.00277	1.104	1.42	1.96	170	12	**165±11**	
								1.01021	1.104	1.52	1.84	160	11		
Vf. Mohoș	16CIO05	415440.271	5110371.028	groundmass	Double separation	63-125	2.38-2.42	1.06894	3.845	3.92	2.53	63.0	1.8	**63.9±1.6**	
								1.40195	3.845	5.87	2.59	64.5	1.4		
Bálványos	16CIO06	419672.903	5107443.364	groundmass	Double separation	63-125	2.40-2.50	1.09281	3.449	4.28	15.45	429	12	**440±12**	
								0.41800	3.449	4.49	16.24	451	12		
Bálványos	16CIO07	419619.606	5107471.843	groundmass	Double separation	63-125	2.48-2.51	1.03129	3.585	29.21	23.78	635	9	**641±9**	
								1.22063	3.585	34.2	24.19	646	9		
Puturosu	16CIO08	418644.98	5107909.431	groundmass	Double separation	63-125	2.59-2.54	0.40769	3.226	5.23	23.29	691	16	**704±18**	
								0.35928	3.226	4.49	24.26	720	19		
	16CIO08	418644.98	5107909.431	Plag. µL.	Double separation	63-125	2.75-2.64	0.87621	1.568	4.83	12.01	733	18	**739±19**	
								0.66177	1.568	4.59	12.19	744	19		
Piscul Pietros	16CIO09	415362.114	5108312.809	groundmass	Double separation	63-125	2.50-2.43	1.01727	3.441	1.16	2.04	57	5	**60±5**	
								1.02985	3.441	1.32	2.24	62	5		
	16CIO09	415362.114	5108312.809	Plag. Gl.	Single separation	250-500	2.62	2.93303	0.757	35.22	7.96	1007	15	**981±14**	
								2.54541	0.757	35.12	7.55	955	14		
	16CIO09	415362.114	5108312.809	Plag. µL.	Double separation	63-125	-	1.41031	1.714	6.10	3.60	201	5	**201±5**	
Puturusu	16CIO11	413505.756	5107989.852	groundmass	Double separation	63-125	2.38-2.40	1.24289	3.624	0.86	1.06	28.0	3.3	**27.7±1.4**	
								1.22080	3.624	0.82	0.97	25.7	3.2		
								1.27241	3.624	0.90	1.02	27.0	3.0		
								1.31702	3.624	0.88	1.04	27.6	3.2		
								0.79715	3.624	0.98	1.15	30.5	3.1		
Haramul Mare	15CIO09	416664.047	5111953.008	groundmass	Double separation	63-125	-	1.39005	3.668	6.41	3.75	98	2	**96±2**	
								1.39963	3.668	12.02	3.64	95	2		
	15CIO09	416664.047	5111953.008	Whole rock	Single separation	40-500	—	0.80364	2.119	7.91	5.10	230	4	**231±4**	
								1.17638	2.119	7.87	5.11	231	4		
	15CIOX2			Biotite	Single separation	125-250		0.73270	5.720	3.24	33.54	561	19	**561±19**	

— ANNEXE A –

Tableau synthétique des nouveaux âges K-Ar

	Sample code	Locality	Longitude (m)	Latitude (m)	Phase	Fraction Size (µm)	Density	Melted mass (g)	K%	40Ar* (in % of total 40Ar)	40Ar* ×10^{13} (at/g)	Age ± 1σ (Ma)		Mean age ± 1σ (Ma)	
Miocene Ignimbrite deposits	18WC04	Harsány; Vine cellars	480789.11	5312438.84	Biotite	250-1000	2.73-2.62	0.05164	6.611	30.62	8.81	12.71	0.18	**12.71±0.18**	**Bükk foreland and Mátra**
								0.05416		34.88	8.81	12.71	0.18		
	18WC02	Tibolddaróc Vine cellars	472698.72	5307684.42	Biotite	250-1000	2.76-2.65	0.05125	6.096	14.65	8.16	12.77	0.20	**12.81±0.20**	
								0.03453		13.35	8.21	12.85	0.21		
	18WC03	Tibolddaróc Valley	472698.72	5307684.42	Biotite	250-1000	2.81-2.70	0.06688	5.454	18.44	7.47	13.06	0.20	**13.15±0.20**	
								0.05118		17.05	7.58	13.25	0.20		
	18WC01A	Bogács Abrahamka	464610.32	5306180.09	Biotite	250-1000	2.77-2.72	0.05053	5.012	59.51	8.81	16.77	0.24	**16.54 ±0.24**	
								0.09038		64.48	8.60	16.33	0.23		
	18WC05	SIROK (middle part)	440001.21	5308986.78	Biotite	250-1000	2.77-2.61	0.07082	5.608	48.70	8.40	14.28	0.20	**14.30 ±0.20**	
								0.08555		48.26	8.42	14.32	0.20		
	18DS	Demjén	450887.7	5297967.62	Biotite	250-1000	-	0.19928	5.811	16.57	8.01	13.15	0.20	**13.13±0.20**	
								0.04834		15.42	7.98	13.10	0.20		
	18Tar	Tar	407612.07	5311793.94	Biotite	250-1000	-	0.05087	5.551	25.36	7.68	13.20	0.19	**13.24±0.19**	
								0.05125		25.63	7.72	13.27	0.19		
	18MB	Mátrabérc	414050.89	5308838.38	Biotite	250-1000	2.85-2.75	0.20017	6.312	29.13	9.35	14.12	0.21	**14.05±0.20**	
								0.05019		30.47	9.25	13.98	0.20		
	17GAL	Galgaguta	381222.8	5299440.1	Biotite	250-1000	> 264	0.16138	5.499	18.37	8.12	14.08	0.21	**14.08±0.21**	
								0.06957		17.93	8.12	14.08	0.21		
	18CT	SIROK	440061.15	5308501.52	Biotite	250-1000	-	0.05008	6.962	56.61	10.65	14.59	0.21	**14.70±0 .21**	
								0.08236		61.42	10.81	14.80	0.21		

— ANNEXE A –
Tableau synthétique des nouveaux âges K-Ar

	Sample code	Rock type	Locality	Phase	Fraction Size (µm)	Density	Melted mass (g)	K%	40Ar* (in % of total 40Ar)	40Ar* $\times 10^{13}$ at/g	Age ± 1σ (Ma)		Mean age ± 1σ (Ma)	
High Borzony	**16BOR47**	Andesite lava	Ökör-orom	G.M.	80-160	2.69-2.64	0.87398	0.986	69.91	1.48	14.36	0.20	**14.27±0.20**	Börzsöny volcanic complex
							0.76448		67.78	1.47	14.18	0.20		
	19BORSZB	Andesite lava	Szaráz-berc	G.M.	63-125	2.77-2.66	0.23182	2.563	54.62	3.92	14.59	0.21	**14.67±0.21**	
							0.22410		54.33	3.96	14.75	0.21		
	19BORNH	Andesite lava flow	Nagy Hideg Hill	G.M.	63-125		0.36465	1.903	74.34	2.97	14.90	0.21	**14.78±0.21**	
							0.56175		72.59	2.92	14.65	0.21		
	16BORIQ39	Andesite lava	Inóc Quarry	G.M.	80-160	2.66-2.64	0.76550	2.696	72.88	4.18	14.79	0.21	**14.79±0.21**	
							0.30120		62.75	4.18	14.79	0.21		
	19BORTV	Andesite lava	Templon Vögly	G.M.	63-125		0.30100	2.477	60.68	3.43	15.02	0.21	**14.98±0.21**	
							0.27756		6014	3.41	14.95	0.21		
	17BOR01	Andesite lava	Csarna-patak W	G.M.	63-125	2.61-2.65	0.87398	2.512	66.45	3.98	15.12	0.21	**15.11±0.22**	
							0.76448		51.32	3.98	15.01	0.21		
	15BORK1	Ignimbrite dacite lithoclast, biotite	Királyrét	Biotite	125-250	-	0.1528	5.780	63.45	9.56	15.76	0.22	**15.68±0.22**	
							0.10292		69.32	9.46	15.61	0.22		

— ANNEXE A –
Tableau synthétique des nouveaux âges K-Ar

ANNEXE B:

Volumetric results at level of individual volcano: Case of CGH range

A. 1. Călimani segment

The volcanic activity along the CGH range occurred in Călimani between 10.6±0.5 Ma (Seghedi et al., 2005) to 6.69±0.07 Ma (chapter V). It had a complex evolution, characterized by formation of a 10 km-large, northward-open caldera and late-stage post-caldera lava flows and rim domes (Szakács and Seghedi, 1995; Seghedi et al., 2005).

Numerical reconstruction defines the Central Călimani edifice as the most widespread (1078 km^2), highest (2072 m a. base.l, i.e. as basement level) and most voluminous (592±115 km^3) volcano of the CGH range. These parameters categorize it as a large composite volcano, such as those of the Cascade Range (Donnelly-Nolan et al., 2008). We computed a V_E of 158±85 km^3 equivalent to an average altitude loss (ΔH_{mean}) of 151±82 m and corresponding to a D_{Den} of 27%. Combining volume, lifespan and age of the volcano helps determine a GR of 152 km^3/Ma and ER of 17 m/Ma (chapter V).

Moldovanul edifice (#02) was built up contemporaneously, between 10.2 and 7.7 Ma (Pécskay et al., 1995a; Seghedi et al., 2005b). It presents an atypical shape characterized with a flat top (chapter V). V_C and V_E (320±82 km^3 and 108±61 km^3, respectively) lead to a D_{Den} of 34%, with an ΔH_{mean} of 139±78 m, comparable to its neighbour. Similarly, GR (128 km^3/Ma) and ER (16 m/Ma) suggest a similar magmatic source controlled by the same tectonic context and a subsequent dismantling under the same climatic conditions.

B. 1. Gurghiu segment

Here, Jirca (#03, chapter V), constructed between 9.2 and 8.4 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b), is the northernmost and oldest volcano. As pointed out by Seghedi et al. (2004b), it's lower parts are covered by younger volcanic rocks belonging to the adjacent larger structures (Făncel-Lâpuşna in the South and Călimani in the North). For this relatively small and strongly degraded edifice, the GR (140 km^3/Ma) is comparable to those obtained for the somewhat older volcanoes of the Călimani segment, whereas ER is slightly smaller (11 m/Ma,

chapter V) probably due to shielding from erosion provided by the overlying younger volcanic products.

Fâncel-Lăpuşna complex represented by the large Fâncel-Lăpuşna stratovolcanic edifice (#04a) alongside a small adjacent cone (Obarsia [Széles-tető], #04b) is the largest volcano in this segment characterized by a southward open amphitheatre-like caldera with a complex intrusion inside. Reconstruction shows that its aprons cover most of Jirca volcano in the North whereas it is peripherally overlain in the East by Bacta volcano. During its lifespan, between ca. 8.7-6 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b), it achieved a volume of 355±90 km^3 with a GR of 131 km^3/Ma (chapter V). Moreover, several voluminous pumiceous pyroclastic deposits (Fâncel-Lăpuşna Volcaniclastic Formation; Szakács and Seghedi, 1996) up to 25 km away of vent (Seghedi et al., 2004b) are associated to the caldera formation, supporting the huge V_C of the volcano. Its calculated V_E (88±48 km^3) and D_{Den} (29%) correspond to ΔH_{mean} of 106±58 m and an ER of 15 m/Ma (chapter V).

Bacta edifice adjoins the southeastern side of the caldera of Fâncel-Lăpuşna. It is the smallest andesitic edifice, actually a cluster of a few adjoining lava domes, constructed between 7.5 to 6.6 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b). Poorly constrained volumetry (11±6 km^3 and 3±2 km^3 of V_C and V_E, respectively) results in a D_{Den} of 32% and ΔHmean of 52±41m. The computed GR and ER are the lowest in Gurghiu with respective values of 12 km^3/Ma and 7 m/Ma (chapter V), in direct correlation to the small size of the edifice.

The shield-like Seaca-Tătarca edifice (#06) grew up fast according to the new groundmass K-Ar ages obtained in this study (6.8 to 6.5 Ma,). V_C (248±57 km^3) and new ages point to a fast GR of 825 km^3/Ma, five times larger than any other CGH rate. This high value is principally induced by the lifespan that we found drastically reduced from ~1 Ma (Seghedi et al., 2004b) to 340 ka by the new age results. This could be the case with other volcanic edifices too, if more precise dating were applied. Even if it has a large central depression, analysed by Karátson (1999) as an erosional caldera possibly inherited from a subsidence

caldera occupying its centre, the V_E (61±34 km^3) and correlated D_{Den} (27%) are not so high as also the ΔH_{mean} (113±63 m) and ER (17 m/Ma).

Ciumani-Fierăstraie (#07) is a typical composite volcano constructed between 7.1-6.3 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b). Its peculiar summit morphology is characterized by two eroded crater remnants: Ciumani and Fierăstraie (Fűrész-patak) opened to the north and to the south, respectively (Karátson 1994, 1999). Construction parameters (V_C of 67±18 km^3 and GR of 84 km^3/Ma) are slightly lower than those of most volcanoes in the segment (chapter V). Dismantling parameters (D_{Den} = 18%, V_E = 9±6 km^3, ΔH_{mean}= 83±60 m and ER = 12 m/Ma) define Ciumani-Fierăstraie as one of the most well-preserved volcano, possibly due to the absence of a large summit depression, contrary to most of the other volcanoes of the segment.

Borzont (#08) is a monogenetic effusive shield volcano, which represents one of the smallest edifices of the segment. Since it was constructed by a single effusive eruption around 6.8±0.5 Ma (Pécskay et al., 1995), we just calculated the V_C and V_E with respective value of 21±8 $km^3$and 3±3 km^3 leading to a D_{Den} of 24%.

Şumuleu is a composite volcano constructed between 6.7-6.2 Ma (Pécskay et al., 1995; Seghedi et al., 2004b) and characterized by a large central depression (#09a) and a prominent ridge (09b) present on the lower southern side of the volcano. Its lifespan overlapped with that of Ciumani, making the identification of the pre-erosional surface difficult. However, based on a recent geological map in Seghedi et al. (2019), we could select their respective CPs, allowing us to reconstruct the edifice with higher precision. V_C (69±25 km^3) compares to the one obtained for Ciumani volcano, but its GR is higher (138 km^3/Ma) due to the shorter lifespan. Dismantling parameters (V_E of 12±19 km^3, D_{Den} of 18%, ΔH_{mean} of 50±80 m and ER of 8 m/Ma) are comparable to those of the neighbouring Ciumani-Fierăstraie volcano. The high similarities in these morphometric parameters highlight the relationship in the topography of these two volcanoes, supporting similar volcanic activity as well similar erosional history.

C. 1. North Harghita segment

Ostoroş (#10) and Ivo-Cocoizaş (#11) edifices were constructed between 6.3-6.0 Ma and 6.3-5.7 Ma, respectively (Pécskay et al., 1995). Ostoroş is a relatively small-sized edifice with an erosional crater whereas Ivo-Cocoizaş, in contrast, has a morphologically not so obvious crater remnant with a well exposed core complex (Szakács and Seghedi, 1995). Both volcanoes have quite similar V_C (49±16 km^3 and 55±16 km^3) and V_E (6±3 km^3 and 7±5 km^3). However, the lifespan twice shorter for Ostoroş (0.3 Ma versus 0.6 Ma for Ivo-Cocoizaş) induced contrasted GR: 163 km^3/Ma and 92 km^3/Ma, respectively. With similar V_C and V_E as well as similar terminal age of their activity, these volcanoes logically show a comparable D_{Den} of 20% and 23%, and ER of 10 m/Ma and 12m/Ma, respectively (chapter V).

With an area of only 67 km^2 and an average height of 45 m, Râchitis volcano, a simple monogenetic dacitic dome (Szakács and Seghedi, 1995) built around 5.8±0.3 Ma (Pécskay et al., 1995), is logically the smallest edifice of the CGH range, its V_C (3±3 km^3) and V_E (1±2 km^3) the lowest in the segment. The D_{Den} of 21% is comparable to the other volcanoes of this segment).

Half of North Harghita is occupied by the Vârghiş volcanic complex characterized by a central edifice (#13a) and the associated Szeles Vésze cone (#13b) to the southeast. The central edifice is a large cone with a southward-open sector collapse caldera and at least four rim domes (Karátson, 1994; Szakács and Seghedi, 1995). New ages allowed us to refine its activity between 5.47±0.07 and 4.61±0.07 Ma (chapter V) and lifespan of 0.9±0.1 Ma. The V_C (172±34 km^3) is the largest in this segment, and its GR (143 km^3/Ma) is comparable to the other volcanoes of the segment (except Râchitis). D_{Den} (16%) is the smallest, whereas ΔH_{mean} and ER (71±39 m and 14 m/Ma, respectively) are comparable to the others.

D. 1. South Harghita segment

South Harghita segment contains five major volcanoes: Luci-Lazu (#14a and #14b, respectively), Cucu (#15), Pilişca (#16) and Ciomadul (#17), all of them except Ciomadul modelled in this study, and a few isolated small-sized domes (Szakács et al., 1993).

Luci-Lazu edifice, the northernmost volcano of the segment constructed between 4.3 to 3.6 Ma (Peltz et al., 1987; Pécskay et al., 1995a), consists in the older Luci cone (#14a), characterized by an amphitheatre-shaped shallow depression open southward, and the younger Lazu cone (#14b) which covered the former structure in the south (Szakács and Seghedi, 1995). The D_{Den} (21%) and the ΔH_{mean} (60±74 m) are the biggest of the segment. Its V_C (108±37 km^3) makes it the largest South Harghita volcano and results in a GR of 155 km^3/Ma, three times larger than the other ones in the segment. V_E (18±23 km^3) is also the highest, but due to its longer erosional period, its ER (15±19 m/Ma) is the lowest in South Harghita.

The Cucu volcano (#15) grew between 2.8-2.2 Ma (Pécskay et al., 1992; Szakács et al., 1993). It has an atypical central erosional depression with three crater remnants opened into a common elongated drainage basin (Karátson et al., 1992). Constructional parameters, VC (29±11 km^3) and GR (49 km^3/Ma), as well as dismantling ones, D_{Den} (20%), ΔHmean (55±64 m), VE (5±6 km^3) and ER (22 m/Ma), show intermediate values.

Pilişca edifice (#16) was constructed during ~1 Ma (Peltz et al., 1987; Pécskay et al., 1995). This edifice, constituted of a complex aggregation of steep, partly dacitic lava domes built up over the remnants of an older andesitic shield-like edifice (Szakács and Seghedi, 1995), constructed a V_C of 20±8 km^3 with a GR of 20 km^3/Ma. Compared to the other edifices, Pilişca volcano does not show an obvious crater-like depression. Dismantling parameters (D_{Den}=17%, ΔH_{mean}=35±51 m and V_E=3±5 km^3) are comparable to those of Cucu volcano whereas its ER (18 m/Ma) is slightly lower and can be due to the absence of a central depression (that otherwise accelerates erosion).

université PARIS-SACLAY
ÉCOLE DOCTORALE
Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Titre : Dynamique de construction et démantèlement des volcans tertiaires et quaternaires des Carpates par des approches géomorphologiques et géochronologiques

Mots clés : Technique Cassignol-Gillot ; Volcanisme des Carpates Pannoniennes ; Reconstruction numérique ; Taux de construction ; Taux d'érosion ; Contraintes paléoclimatiques

Résumé : Dans cette thèse, 47 nouveaux âges ont été obtenus par la technique Cassignol-Gillot. La très bonne reproductibilité des âges obtenus, ajoutée à une stricte cohérence observée entre les édifices volcaniques, supporte l'utilisation de la méthode K-Ar dans la datation des laves des Carpates orientales (Călimani-Gurghiu-Harghita ; CGH) et des dépôts d'ignimbrite du Miocène des Carpates occidentales (les monts de Mátra et Bükk). Dans la partie orientale de la chaîne, les données géochronologiques ont été combinées avec des analyses géomorphologiques pour contraindre l'histoire volcanique et calculer leur taux de construction et d'érosion. Parallèlement, dans la partie occidentale de la chaîne, les données géochronologiques obtenues ont été combinées aux données paléomagnétiques disponibles pour affiner leur stratigraphie.

La chaîne des Carpates orientales a connu une migration de son activité éruptive le long de l'arc du Miocène au Quaternaire. Ici, une méthodologie novatrice et complexe apporte de nouvelles contraintes géochronologiques et géomorphologiques sur l'évolution des 20 volcans de la chaîne. Les nouveaux âges ont permis de contraindre leur durée d'activité Par exemple Seaca-Tătarca (6,79-6,47 Ma), Vârghiş (5,47-4,61Ma) ou de dater l'activité volcanique la plus récente de Călimani. Pour le complexe volcanique de Ciomadul, composé d'une douzaine de dômes de lave, l'activité volcanique a été contrainte entre 704±18 et 28±1ka (<1 Ma) interrompue de périodes de repos. En parallèle, des reconstructions numériques de paléo-topographies volcaniques ont été réalisées dans le but de quantifier leur forme à la fin de leur construction. Les résultats déduits de nos reconstructions ont donné un volume total de matériel émis de 2200 km^3 sur toute la chaîne avec, à l'échelle de chaque volcan, une large gamme de variation de leur taille (3±3 à 592±115 km^3). Ces volumes montrent une nette diminution du nord au sud de la chaîne avec des valeurs de 910, 880, 279 et 165 km^3 pour des secteurs géographiques de Călimani, Gurghiu, North Harghita et South Harghita respectivement. Combinés aux âges, ces volumes ont permis de calculer un taux de construction moyen de 200 km^3/Ma pour toute la chaîne, représenté par deux groupes distincts ; un groupe caractérisé par des taux de construction de 137 km^3/Ma caractéristiques des vieux volcans (11-3,6 Ma) suivi d'un groupe avec des taux de construction de 28 km^3/Ma pour les volcans Plio-Quaternaires. La comparaison des volcans reconstruits et ceux actuels a permis de calculer un volume érodé total de 524±125 km^3, correspondant à une dénudation moyenne de 22% et à un taux d'érosion moyen de 20 m/Ma pour la chaîne de CGH. Suite aux fluctuations climatiques enregistrées le long de cette chaîne, les taux d'érosion caractéristiques de ces grandes périodes climatiques ont été calculés dans le but de montrer le rôle qu'a joué le climat sur les taux d'érosion. Le taux d'érosion le plus élevé de 38m/Ma a été obtenu pour la période régie par un climat continental subtropical modéré transitionnel (9,5-8,2 Ma). Pour la période climatique continentale modérée (8,2-6,8 Ma), caractérisée par des conditions climatiques beaucoup moins humides, un taux d'érosion de 14 m/Ma est proposé. Pour la période correspondant à un climat continental avec identification de périodes semi-arides (6,8-5,8 Ma), un taux d'érosion de 7 m/Ma a été calculé. Pour les volcans Plio-Quaternaires ayant connus des cycles interglaciaires/glaciaires, un taux d'érosion de 28m/Ma a été obtenu. Une telle approche morphométrique et géochronologique quantitative démontre son efficacité à étudier le dynamisme volcanique, y compris les processus de construction et d'érosion au fil du temps.

Dans la partie occidentale des Carpates, les âges obtenus sur les coulées de lave de Börzsöny contraignent sa période d'activité entre 14,3-15,1Ma. Pour les dépôts ignimbritiques de Bükk, les résultats K-Ar évoluent entre 12,7-16,5 Ma.

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

ÉCOLE DOCTORALE
Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Title: Dynamics of construction and dismantling of the Carpathian Neogene to Quaternary volcanism by geomorphological and geochronological approaches

Keywords: Unspiked K-Ar technique; Carpathian volcanism; Numerical reconstruction; Volcano growth; Erosion rate; Paleo climatic constrains

Abstract: In this PhD thesis, 47 new ages have been obtained by the Cassignol-Gillot technique. The very good reproducibility of the ages obtained in this study, added to a strict consistency observed between the volcanic edifices, support the use of the K-Ar method in the dating of the East Carpathian lavas (Călimani-Gurghiu-Harghita) and ignimbrite deposits of the North Hungarian (Mátra and Bükk Mts. [western Carpathians]). In the Eastern part, this new geochronological dataset has been combined with geomorphological analyses to constrain the volcanic history as well as to compute construction and erosion rates of those volcanoes. In parallel, in the western part geochronological dataset has been combined with available paleomagnetic data to refine their stratigraphy.

The East Carpathian volcanic range experienced an along-arc, Late Miocene to Quaternary migration of eruptive activity. Here, a novel and complex methodology are presented that yields new geochronological and geomorphological constraints on the evolution of the 20 volcanic edifices. New unspiked K-Ar ages either constrain their lifespan (6.79- 6.47 Ma for Seaca-Tătarca; 5.47- 4.61 Ma for Vârghiş) or date the youngest volcanic activity (central Călimani). For Ciomadul volcanic complex composed by a dozen of lava domes, which hosts the recent volcanic activity since the last 1 Ma, its activity has been constrained between 704 ± 18 ka and 28 ± 1 ka with several quiescence periods. In parallel, numerical reconstructions of volcanic paleo-topographies were performed to quantify their shape at the end of their construction stage. The inferred initial volcano size shows a wide range (3±3 to 592±115 km^3), making up the four main successive volcanic segments (910, 880, 279 and 165 km^3 for Călimani, Gurghiu, North Harghita and South Harghita segment, respectively) totalizing 2200 km^3. Volume and age constraints allowed computing an average growth rate of 200 km^3/Ma for the whole range, characterized by an initial moderate growth rate (137 km^3/Ma) of the older volcanoes (11-3.6 Ma) followed by a lower growth rate (28 km^3/Ma) obtained for the Plio-Quaternary volcanoes. Comparing reconstructed and current topographies yielded a total eroded volume of 524±125 km^3, defining averaged denudation of 22% and a 20 m/Ma erosion rate. Erosion rates for major climatic periods were computed, which highlight the contrasting climatic contexts since 11 Ma. The highest erosion rate (38 m/Ma) occurred during a transitional moderate subtropical continental climate period (9.5-8.2 Ma). An intermediate erosion rate (14 m/Ma) characterized a moderate continental climate period (8.2-6.8 Ma) when conditions became less humid. The lowest erosion rate (7 m/Ma) reflects the prevailing continental but occasionally semi-arid climate (6.8-5.8 Ma). The highest erosion rate (28 m/Ma) was obtained for Plio-Quaternary times during the interglacial/glacial cycles. Such a quantitative morphometric and geochronological approach demonstrates its efficiency to study volcanic dynamism, including both constructional and erosional processes, through time.

In the western part of the Carpathian range, the new ages obtained on the lava flows of Börzsöny made it possible to constraint its period of activity between 14.27 - 15.11 Ma. For the Miocene ignimbrite of Bükk foreland, the new K-Ar results range between 12.7 - 16.5 Ma.

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