HAL
open science

Le cycle de l'osmium et du rhénium pendant l'érosion himalayenne

Anne-Catherine Pierson Wickmann

To cite this version:

Anne-Catherine Pierson Wickmann. Le cycle de l'osmium et du rhénium pendant l'érosion himalayenne. Sciences de la Terre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2000. Français. NNT : 2000INPL058N . tel-01749943

HAL Id: tel-01749943

https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749943v1

Submitted on 29 Mar 2018

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

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

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

00INPL058N

inpl nancy

Centre de Recherches
Pétrographiques et Géochimiques

CNRS CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

Thèse
présentée pour l'obtention du titre de
Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine

Spécialité Géosciences
par

Anne-Catherine Pierson-Wickmann

Le cycle de l'osmium et du rhénium pendant l'érosion himalayenne

Soutenue publiquement le 6 juillet 2000 devant la Commission d'examen

Rapporteurs :	J.-L. Birck	IPG, Paris
	[illegible]	Université L. Pasteur, Strasbourg
Examin[illegible]	[illegible]	LMTG-CNRS, Toulouse
	[illegible]ian	Yale University, New Haven
Directeurs de thèse	L. Reisberg	CRPG-CNRS, Nancy
	C. France-Lanord	CRPG-CNRS, Nancy

D 136 019753 3

1360197533
00INPL058N

Centre de Recherches
Pétrographiques et Géochimiques

CENTRE NATIONAL
DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

Thèse

[M] 2000 PIERSON-WICKMANN, AC

présentée pour l'obtention du titre de

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine

Spécialité Géosciences

par

Anne-Catherine Pierson-Wickmann

Le cycle de l'osmium et du rhénium pendant l'érosion himalayenne

Soutenue publiquement le 6 juillet 2000 devant la Commission d'Examen

Rapporteurs	
J.-L. Birck	Directeur de Recherche, IPG, Paris
F. Chabaux	Professeur, Université Louis Pasteur, CGS, Strasbourg
Examinateurs	
B. Dupré	Directeur de Recherche, LMTG-CNRS, OMP, Toulouse
K. K. Turekian	Professeur, Yale University, New Haven (USA)
Directeurs de thèse	
Laurie Reisberg	Chargé de Recherche, CRPG-CNRS
Christian France-Lanord	Directeur de Recherche, CRPG-CNRS, Nancy

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

A mes parents,

A mes sœurs,

A ma famille,

A mes ancêtres.

"Que chacun s'efforce dans le milieu où il se trouve de témoigner à d'autres une véritable humanité. C'est de cela que dépend l'avenir du monde"
Albert Schweitzer

Remerciements

En premier lieu, je tiens à remercier les membres du jury : François Chabaux et Jean-Louis Birck d'avoir été les rapporteurs de cette thèse, et Bernard Dupré et Karl K. Turekian d'en avoir été les examinateurs.

Merci à mes deux directeurs de thèse, Laurie Reisberg et Christian France-Lanord, qui ont su m'apporter l'enthousiasme nécessaire pour faire de la recherche et des manips, grâce à leurs connaissances, rigueur et vigilance scientifiques. Laurie pour m'avoir inculqué les bases du système Re-Os et de la chimie en salle blanche ; à qui j'ai fait quelques peurs bleues (ou plutôt vertes !) avec mes extractions de Re. Christian qui m'a fait découvrir la chaîne himalayenne dans tous les sens du terme. *« Oui, je me rappelle bien la montée de la Dordi !»*. J'ai vraiment aimé travailler avec vous deux durant ces années et je ne le regrette pas du tout ! Merci.

Un merci particulier à Catherine Spatz, sans qui ces années en salle blanche n'auraient été aussi joyeuses et efficaces. Nos fou-rires et nos « coups de gueule » en salle blanche ou au spectro ont permis de rythmer toutes ces journées. *« Je crois qu'on n'a pas éteint la température ! »*. Au fait Catherine, *« Sauvez les bébés phoques ! »*.

Merci à Albert Galy pour avoir répondu à mes questions himalayennes ou chimiques.

Bien entendu, sans l'excellente ambiance régnant au C.R.P.G., cette thèse n'aurait pas pu se faire dans l'enthousiasme et la bonne humeur. Merci à mes deux colocataires de bureau (dit « bureau Zen du 2ème » ou « bureau des lamentations » selon les personnes), Jérôme et Nicolas, avec qui j'ai pu avoir des bonnes discussions scientifiques ou autres. Lequel est le plus « tête de lard » de nous trois ? A présent, je crois qu'on peut dire : « On n'a pas la main verte ! ». Et restons zen !

Merci à Laurent Z. (Oui, je finirai mon D.E.A un jour !), Estelle, complice de tous les sports, mes deux secrétaires préférées, Isabelle et Valérie, et complices des virées à la piscine, Caroline Z., toujours partante pour m'emmener chercher des échantillons au fort *(« Non, je n'ai pas oublié les clefs »),* Jean-Claude pour avoir dépanné notre bon vieux Monsieur Finnigan, Bertrand J. pour m'avoir appris à jouer avec le feu, Pierre pour nous avoir permis de « parfumer » son labo, Anne P. pour ces petites peurs de l'HF, aux autres étudiants, Peggy, Claire, Sylvie, Éric, Olivier, et à tous les autres. Merci au CRPG pour m'avoir accueillie durant ces années.

Je dédie cette thèse tout d'abord à mes parents que je remercie pour m'avoir soutenue dans mes choix et pour m'avoir donné le goût de la connaissance et des connaissances, et pour m'avoir accompagnée durant toutes ces années, surtout depuis mon âge de raison, après la conférence d'un certain Maurice Krafft. Je dédie également cette thèse à mes deux sœurs, Isabelle et Christine, pour avoir été là tout simplement.

Je dédie à ma grand-mère, à mes deux tantes, à Rémi et Jéremy, et à Sarah (la nouvelle génération) et à mes ancêtres.

Résumé

Le cycle de l'osmium et du rhénium pendant l'érosion himalayenne

Cette étude a permis de déterminer la composition isotopique d'Os des trois principales formations himalayennes (TSS, HHC et LH) à partir de roches sources, ainsi que celle de sédiments de rivières qui représentent le produit d'érosion de la chaîne. Les formations du Haut Himalaya ont un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ comparable à celui de la croûte continentale moyenne. Par contre, le LH se distingue par des rapports radiogéniques rencontrés dans deux lithologies distinctes : les schistes noirs et les marbres impurs du LH. Un mélange de trois pôles (silicates du Haut Himalaya + schistes noirs du LH + carbonates impurs du LH) permet d'expliquer les signatures des sédiments de rivières à la sortie de la chaîne ou dans le Gange. Les sédiments du Brahmapoutre montrent un rapport moins radiogénique que ceux du Gange, expliqué d'une part par la présence d'affleurement d'ophiolites dans le bassin versant du Brahmapoutre et d'autre part par l'absence de carbonates résiduels. L'origine des carbonates radiogéniques dans le LH est à relier au métamorphisme himalayen qui a permis la mobilisation d'Os et de Re à partir des schistes noirs radiogéniques du LH. L'altération à basse température étudiée à partir de sols a montré que les compositions isotopiques et les concentrations d'Os et de Re ne varient pas avec la profondeur. Cependant une perte importante d'Os et de Re a probablement lieu dans les premiers stades de l'altération, lors du passage de la roche saine au saprolite.

Les sédiments récents du Cône du Bengale montrent que l'érosion de la chaîne himalayenne est la source majeure des sédiments, surtout dans le cône actif. Cependant, dans le reste de la Baie du Bengale, cette source himalayenne peut être masquée par des sources secondaires, comme l'érosion de la chaîne indo-birmane ou l'érosion du Sri Lanka.

Il n'y a aucune preuve qu'une perte significative d'Os lors du transport ou après le dépôt dans le Cône se produise. Ceci implique que la contribution de l'érosion himalayenne au budget de l'Os marin est limitée à la phase dissoute, et donc insuffisante pour expliquer l'augmentation du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ marin durant les 16 derniers Ma.

Abstract

This study allowed determination of the Os isotopic compositions of the three major Himalayan formations (TSS, HHC, LH), based on both source rocks and river sediments, which represent the erosional products of Himalayan erosion. The High Himalayan formations (TSS+HHC) have $^{187}Os/^{188}Os$ ratios (0.9 to 1.6) similar to that of average continental crust. In contrast, the LH includes very radiogenic Os isotopic ratios, found in black shales and some carbonates. River sediments are mixtures of three components: High Himalayan silicates, LH black shales and LH carbonates. Sediments from the Brahmaputra are less radiogenic than those from the Ganga, due to either the addition of an ophiolitic fraction or the absence of detrital carbonates in the sediments. The origin of the radiogenic Os isotopic compositions in LH carbonates is related to Himalayan metamorphism which mobilized Re and radiogenic Os from black shales and redistributed it in carbonates. Alteration at low temperature was studied in soil profiles. The concentrations of Re and Os, as well as the Os isotopic ratios, do not vary with depth. Nevertheless, an important loss of Re and Os occurs during the earlier stages of alteration, during the passage from source rock to saprolith.

Sediments from the Bengal Fan show that Himalayan erosion is the major source of detritic material, especially in the active fan. In the rest of the Bay of Bengal, the Himalayan source may be masked by secondary sources, such as the erosion of the Indo-Burman range or the Sri Lanka. There is no evidence for significant loss of Os during sediment transport or after deposition in the Fan. This implies that the contribution of Himalayan erosion to seawater is limited to that carried in dissolved form, which is not nearly sufficient to explain the increase of the $^{187}Os/^{188}Os$ seawater ratio during the past 16 Ma.

Table des matières

Remerciements 5
Résumé 7
Abstract 8
Table des matières 9
Liste des figures 15
Liste des tableaux 19

Introduction générale

Pourquoi étudier le système Re-Os en Himalaya 23

Chapitre 1 : Le système Re-Os

Le système Re-Os 31
I Notions essentielles sur le rhénium et l'osmium 32
I.A D'un point de vue chimique 32
I.B D'un point de vue géochimique 33
I.B.1 Les isotopes 33
I.B.2 Le système Re-Os 36
II L'osmium et le rhénium dans les différents réservoirs 38
II.A Le noyau et les météorites 38
II.B Le manteau et les météorites 39
II.C La croûte 40
II.C.1 La croûte continentale 40
II.C.2 La croûte océanique 42
III L'osmium marin : enregistrement temporel des sources 42
III.A Les échantillons 42
III.B Les sources 44
III.C Les variations du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ dans les océans au cours du temps 45
III.C.1 La décroissance de $^{187}Os/^{188}Os$ 46
III.C.2 La croissance de $^{187}Os/^{188}Os$ 47
IV Le rhénium marin 49

Chapitre 2 : Les procédures analytiques

Les procédures analytiques 53
Les analyses Re-Os 54
I. Chimie d'Os et de Re : principes de base 54
I.A. L'osmium 54
I.B. Le rhénium 54
II. Préparations des échantillons et du matériel 55
II.A. La préparation des échantillons 55
II.A.1 Les sédiments modernes, les sédiments marins, les sols 55
II.A.2 Les roches sources 55
II.B. Préparation des réactifs 56
II.C. Les traceurs isotopiques (spikes) 57
III. Les méthodes d'extraction utilisées 58
III.A. Méthode par Carius tube (Shirey et Walker, 1995) 58
III.A.1 Principe de la méthode 58
III.A.2 Méthode 59
III.B. 'La méthode de Paris' (Birck et al., 1997) 63
III.B.1 Principe de la méthode 63
III.B.2 Étapes de la chimie de Paris 65
III.C. Lessivage selon Pegram et al. (1992) 66
IV. Comparaison des méthodes utilisées 66
IV.A. Reproductibilité 66
IV.B. Rendements et blancs 69
V. La spectrométrie de masse 69
V.A. Les mesures d'Os par thermo-ionisation 69
V.A.1 Les mesures d'Os 72
V.A.2 Les corrections apportées aux analyses 72
V.A.3 Les standards d'osmium 74
V.B. Les analyses de Re par ICPMS 75
V.B.1 Les mesures de Re 75
V.B.2 Reproductibilité des mesures des standards de Re 76
Les analyses Rb-Sr et Sm-Nd 78
Les analyses de carbone organique 80

Chapitre 3 : L'Himalaya et son érosion

L'Himalaya et son érosion 83
I. La chaîne himalayenne 84
I.A. Géologie 84
I.B. Hydrographie 87

I.C. Géochimie **91**
II. La surrection de l'Himalaya et ses conséquences **93**

Chapitre 4 : Erosion himalayenne : sources et flux d'Os et de Re

Erosion himalayenne : sources et flux d'Os et de Re **97**

I. Echantillonnage **98**
I.A. Les roches **98**
I.B. Les sédiments de rivières **102**
II. La composition isotopique d'Os de roches et de sédiments himalayens : importance des schistes noirs. **104**
Article « The Os isotopic composition of Himalayan river bedloads and berocks : importance of black shales. » **106**
Abstract ***106***
1. Introduction ***106***
2. The Himalayan range and the Ganga-Brahmaputra river system ***107***
3. Analytical procedures ***111***
4. Results ***112***
4.1. The TSS Unit ***112***
4.2. The HHC Unit ***113***
4.3. The LH Unit ***113***
4.4. Main Himalayan river bedloads ***114***
4.4.1. Central Nepal ***114***
4.4.2. Bangladesh ***114***
5. Discussion ***115***
5.1. The role of physical erosion ***115***
5.2. Dissolved and particulate Os and Re fluxes ***118***
5.3. Brahmaputra ***119***
5.4. Potential contribution of sediment-carried Os to the marine Os budget ***119***
5.5. Summary and conclusions ***119***
References ***120***
III. Une autre source d'Os radiogénique **122**
III.A. Les données de départ **123**
III.B. Les échantillons utilisés **123**
III.C. Les résultats de Re-Os sur les carbonates **125**
III.D. Origine des rapports radiogéniques dans les carbonates **130**
IV. Influence des schistes noirs et des carbonates sur les produits d'érosion **131**
V. La fraction manquante : l'eau **135**
VI. Synthèse **137**

Chapitre 5 : Les sols et l'altération à basse température

Les sols et l'altération à basse température **141**
I. Les échantillons **142**
II. Les éléments majeurs **143**
III. Le carbone organique **144**
IV. Les données isotopiques de Sr et de Nd **145**
V. Les données Re-Os **146**
VI. Autres altérations des schistes noirs **150**
VII. Synthèse **151**

Chapitre 6 : Le système Re-Os dans le Cône du Bengale

Le système Re-Os dans le Cône du Bengale **155**
I. Le Cône du Bengale **156**
II. A l'échelle du Néogène – Le Leg ODP 116 **159**
III. A l'échelle des derniers cycles glaciaires **161**
IV. L'Os dans le Cône du Bengale **162**
Article « Os-Sr-Nd tracing sediment transport in the Bay of Bengal : Implication for the marine Os record » ***166***
Abstract ***167***
1. Introduction ***168***
2. Study area and samples ***170***
2.1. Study area ***170***
2.2. Samples ***170***
3. Analytical procedures ***165***
3.1. Sr and Nd isotopic analyses ***171***
3.2. Re-Os isotopic analyses ***172***
4. Results ***174***
5. Source of sediments ***176***
5.1. Origin of Bengal Fan sediments ***176***
5.2. Comparison with Leg ODP 116 sediments ***180***
6. Summary and conclusions ***182***
References ***184***
V. Synthèse **187**

Conclusion générale

Conclusion générale **191**

Références bibliographiques

Références bibliographiques **201**

Annexe 1

Article Reisberg et al. (1997) **215**

Annexe 2

Tableaux de compositions chimiques **229**

Liste des figures

Introduction générale

Figure 1 : Variation de la composition isotopique de Sr dans les océans durant les 70 derniers millions d'années (d'après Palmer et Elderfield (1985)) **24**
Figure 2 : Variation de la composition isotopique d'Os dans les océans au cours des 80 derniers Ma (d'après Peucker-Ehrenbrink et al. (1995). **25**
Figure 3 : Comparaison des rapports isotopiques d'Os et de Sr dans les océans (d'après Peucker-Ehrenbrink et al. (1995)). **26**

Chapitre 1 : Le système Re-Os

Figure 1: Abondances relatives des isotopes d'Os et de Re. **34**
Figure 2 : Calcul d'un âge modèle d'une roche crustale. La ligne continue représente l'évolution chondritique du manteau avec un rapport initial $^{187}Os/^{188}Os$ de 0.096 et un rapport $^{187}Re/^{188}Os$ de 0.402. La ligne en pointillé représente l'évolution d'une roche crustale ayant un rapport $^{187}Re/^{188}Os$ de 19.3 et un âge modèle d'extraction à partir du manteau de 3.5 Ga.**37**
Figure 3 : Variation de la composition isotopique d'Os dans l'eau de mer au cours du temps. Courbe d'après Peucker-Ehrenbrink et al. (1995). Les triangles représentent des lessivages de sédiments, tandis que les disques représentent des analyses en roche totale. **45**
Figure 4 : Variation de la composition isotopique de Sr dissous dans les océans sur une période de 70 Ma, d'après Palmer et Elderfield (1985). La zone grisée représente la période avant la collision entre l'Inde et l'Asie. **46**
Figure 5 : $^{187}Os/^{188}Os$ en fonction de $^{87}Sr/^{86}Sr$ sur les derniers 65 Ma, d'après Peucker-Ehrenbrink et al. (1995). **47**

Chapitre 2 : Les procédures analytiques

Figure 1 : Schéma d'un Carius tube (dimensions en mm) **58**
Figure 2 : Organigramme de la méthode par Carius tube selon Shirey et Walker (1995). **60**
Figure 3 : Organigramme de la méthode de Paris **64**
Figure 4 : Microdistillation selon la méthode de Roy-Barman (1993) **60**
Figure 5 : Schéma du spectromètre de masse Finnigan MAT 262 **70**
Figure 6 : Dessin du spectromètre de masse Finnigan MAT 262 (TIMS), d'après la documentation Finnigan. **71**
Figure 7 : Variation de $^{187}Os/^{188}Os$ du standard d'Os sur une période de 3 ans. Les barres d'erreur sur les rapports représentent $2\sigma m$. Le rond gris représente la moyenne de tous les standards passés avec l'écart-type en barre d'erreur. Le domaine grisé montre les standards

analysés après le changement du multiplicateur d'électrons (changement d'un multi Phillips à ETP). **74**
Figure 8 : Evolution du rapport $^{187}Re/^{185}Re$ du standard de Re au cours des 20 derniers mois, passé à l'ICP-MS., Perkin-Elmer Elan 6000. **77**

Chapitre 3 : L'Himalaya et son érosion

Figure 1 : Carte géologique du Plateau Tibétain et de la chaîne himalayenne (d'après Harrison et al. (1992). **83**
Figure 2 : Coupe géologique N-S de la chaîne himalayenne au Népal Central d'après Lavé et al. (2000). **84**
Figure 3 : Coupe géologique de la chaîne himalayenne au Népal Central d'après France-Lanord et Le Fort (1988). LH : Moyen Pays Népalais, HHC : Dalle du Tibet, TSS : Séries Sédimentaires Téthysiennes, YTS : Suture de l'Indus-Tsangpo, THB : Batholite du Trans-Himalaya. **86**
Figure 4 : Carte géologique simplifiée de l'Himalaya (d'après Le Fort (1986)). **87**
Figure 5: Profil N-S de la chaîne himalayenne, avec un exemple de profil de rivière (Kali Gandaki) (Hurtrez et al., 1998). **88**
Figure 6 : Système hydrographique au Népal Central **89**
Figure 7 : $^{87}Sr/^{86}Sr$ en fonction de εNd(0) représentant les formations himalayennes et la répartition des sédiments du forage ODP Leg 116 **92**

Chapitre 4 : Erosion himalayenne : sources et flux d'Os et de Re

Figure 1: Carte de localisation des roches sources au Népal Central **99**
Figure 2 : Diagrammes isochrones internes d'Os des 3 échantillons à partir des minéraux séparés. **102**
Figure 3 : Localisation des sédiments de rivières échantillonnés au Népal Central **103**
Figure 4 : Localisation des sédiments de rivières au Bangladesh. **104**

Figures de l'article

Fig. 1 *: Map of the Ganga-Brahmaputra River system showing bedload sample locations and* $^{187}Os/^{188}Os$ *ratios (dots). Rectangle indicates map area of Fig. 2. MFT : Main Frontal Thrust, placing Mio-Pliocene Siwalik foreland basin sediments over the modern Gangetic Plain. MCT : Main Central Thrust, placing the HHC over the LH. STDZ : South Tibetan Detachment Zone, separating the TSS from the HHC.* ***107***
Fig. 2 *: Geological map of Narayani watershed showing bedload and bedrock sample locations and their* $^{187}Os/^{188}Os$ *ratios. Open squares represent bedrocks, and black dots represent river bedloads. TSS : Tethyan Sedimentary Series , HHC : High Himalayan Cristallines, LH : Lesser Himalaya, HHL : High Himalaya Leucogranite, LHN : Lesser Himalaya Nappe.* ***108***
Fig. 3 *: Os isotopic composition (*$^{187}Os/^{188}Os$*) of bedload and bedrock samples of the Himalayan Range and Bangladesh versus* ^{188}Os *abundance.* $^{187}Os/^{188}Os$ *ratios plot along two*

different trends : one at a roughly constant Os ratio (1.2) and the second towards radiogenic Os ratio with slightly increasing Os concentration. The Os ratios of bedloads at the outflow of the range, which are the most radiogenic, require the addition of LH black shales. Curves represent mixtures between LH black shales and an average of the High Himalaya ($^{187}Os/^{188}Os$=1.2 and [Os]=24 ppt). Curves (1), (2) and (3) were calculated using extreme and typical values of black shales from this study (Table 1 : (1) NL 2, (2) AP 807, (3) AP 757). An average contribution of 4% of black shales is required to explain the radiogenic Os ratios of bedloads collected at the outflow of the range (black line on the figure represents 5%). This proportion is not sensitive to the particular black shale chosen as the mixing end-member. ***115***

Fig. 4 *: Positive covariation of Total Organic Carbon (wt.%) with bulk osmium concentration (ppt) of river bedloads and bedrocks. Note the scale change at 1% TOC. b) is an expanded viaw of the rectangle in a).* ***116***

Fig. 5 *: ε_{Nd} vs $^{187}Os/^{188}Os$ of bedloads and bedrocks from Central Nepal and Bangladesh. Curve represents mixture between average HH eroded material ($^{187}Os/^{188}Os$=1.21 and [Os]=24 ppt ; eNd=-15 and [Nd]=30 ppm) and average LH sediments (white star). This average LH value represents a mixture of 99% non-radiogenic LH material ($^{187}Os/^{188}Os$=1.17, [Os]=13 pg/g and ε_{Nd}=-25, [Nd]=30 ppm) and 1% LH black shale NL 2 (εNd =-25.5 and [Nd]=29 ppm ; $^{187}Os/^{188}Os$=5.75 and [Os]=505 ppt) (Os in Table 1). The vertical lines represent the proportion of LH material required by the Nd isotopes. This graph demonstrates that the LH component must contain much more than 1% black shale in order to match the data.* ***116***

Fig. 6 *: SiO_2 versus [Os] and [Re] (pg/g). The intersection of the dashed lines represents the estimated average Os (35 ppt) and Re (570 ppt) abundances of suspended river load assuming a SiO_2 content of 55% [25].* ***117***

Figure 5 : Variation de la concentration en Os en fonction de la proportion en carbonates des TSS+LH (a) et variation de $^{187}Os/^{188}Os$ de sédiments de rivière en fonction de leur teneur en carbonates du LH (b) des sédiments de rivières traversant le LH. La proportion de carbonates du LH a été calculée à partir des données isotopiques de Sr de la fraction carbonatée des sédiments. Nous avons supposé un mélange de carbonates des TSS ($^{87}Sr/^{86}Sr$=0.720 et [Sr]=700 ppm) et de carbonates du LH (($^{87}Sr/^{86}Sr$=0.730 et [Sr]=120 ppm)), d'après les données de Galy et al. (1999). **122**

Figure 6 : Localisation des différentes roches carbonatées dans les trois formations himalayennes. **124**

Figure 7: Localisation des échantillons de roches carbonatées et de schistes noirs dans la mine de Lari (altitude 4130 m). **125**

Figure 8 : Variation de la composition isotopique d'Os en fonction de la concentration d' ^{188}Os (ppt) pour les carbonates et les schistes noirs du LH. **127**

Figure 9 : Teneur en Re et Os des différents carbonates himalayens **129**

Figure 10 : Diagramme de type isochrone d'Os pour les carbonates des trois principales formations himalayennes. **129**

Figure 11 : Composition isotopique d'Os et de Sr des roches carbonatées du Népal Central. **131**

Chapitre 5 : Les sols et l'altération à basse température

Figure 1 : Carte de localisation des sols au Népal Central. **142**
Figure 2 : Variation de la teneur en carbone organique des sols himalayens en fonction de la profondeur. **145**
Figure 3 : Variation de la composition isotopique d'Os, de la concentration en Os et Re des différentes sols en fonction de la profondeur. **148**

Chapitre 6 : Le système Re-Os dans le Cône du Bengale

Figure 1 : Illustration du profil sédimentaire du Cône du Bengale, avec la localisation du forage ODP 116 dans la partie distale du Golfe du Bengale, d'après Curray (1994). **155**
Figure 2 : Schéma du Cône du Bengale, avec la localisation du Leg ODP 116 (Bouquillon et al., 1990). **156**
Figure 3 : Représentation de la partie nord de la Baie du Bengale, avec le canyon appelé "Swatch of No Ground" sur la plate-forme continentale (d'après Kudrass, 1996). **157**
Figure 4 : Histogrammes des compositions isotopiques de Sr ($^{87}Sr/^{86}Sr$) et Nd (εNd) pour les unités géologiques himalayennes, ainsi que les sédiments du Leg ODP 116, de sols et sédiments du Gange (d'après les données de France-Lanord et al. (1993) et Colin et al., (1999). HHC: Dalle du Tibet, TSS: Séries Sédimentaires Téthysiennes, LH: Moyen Pays et γHH: leucogranite du Haut Himalaya. **160**
Figure 5 : Profil selon l'âge de la profondeur, de l'assemblage argileux, de la granulométrie et de la proportion de carbone organique des sédiments du Leg ODP 116 **161**
Figure 6 : Composition isotopique d'Os de lessivages et de roches totales de sédiments provenant du Leg ODP 116 (d'après Reisberg et al. (1997)). **164**

Figures de l'article
Figure 1 *: Schematic map of sample locations from the Sonne cruise 93 in the Bengal Fan. Triangles represent the different cores of samples analysed in this study. Dots indicate the position of the Leg DSDP 218 and Leg ODP 116 cores. Rectangle indicates map area of Fig.1b. BGP samples from the Ganga and Brahmaputra were analysed for Os, Sr and Nd in previous studies [Galy, 1999; Pierson-Wickmann et al., 2000].* ***169***
Figure 2 *: Os, Sr and Nd isotopic compositions of marine sediments from the Sonne cruise 93. Sr and Nd were determined on silicate fractions of sediments and Os on bulk sediments. MD 77 data from [Colin et al., 1999].* ***175***
Figure 3 *: Os isotopic composition ($^{187}Os/^{188}Os$) of Sonne sediments versus the ^{188}Os abundance. The $^{187}Os/^{188}Os$ ratios of bulk and leachate sediments are comprised between those of Ganga and Brahmaputra river bedloads. Note that the Os concentration of bulk Fan sediment is sometimes much higher than that of continental bedloads. The sediments with the highest Os ratio have also the lowest Os concentration.* ***176***
Figure 4 *: Al_2O_3 (%) versus SiO_2 (%). The field of SO93 sediments is similar to that of Leg ODP 116 sediments and suspended load from the Ganga-Brahmaputra river system.* ***178***

Liste des tableaux

Chapitre 1 : Le système Re-Os

Tableau 1 : Fiche signalétique du Re et de l'Os **32**
Tableau 2 : Abondance isotopique du Re **33**
Tableau 3 : Abondance isotopique de l'Os **34**
Tableau 4 : Tableau récapitulatif des données de différents réservoirs d'après Shirey et Walker (1998). **38**

Chapitre 2 : Les procédures analytiques

Tableau 1: Blancs d'Os et de Re des différents acides utilisés **56**
Tableau 2: Composition isotopique du traceur isotopique de 190Os utilisé lors de cette étude. **57**
Tableau 3 : Composition isotopique du spike de Re utilisé pour cette étude. **57**
Tableau 4 : Etapes des colonnes anioniques pour la purification de Re **63**
Tableau 5 : Concentration et composition isotopique de différents échantillons dupliqués par la méthode de Paris et /ou par Carius tube **68**

Chapitre 3 : L'Himalaya et son érosion

Tableau 1: Estimations des flux annuels d'eau et de sédiments pour les trois principales rivières au Bangladesh **90**
Tableau 2 : Composition isotopique moyenne de Rb-Sr, Sm-Nd des 5 formations du bassin du Gange-Brahmapoutre, d'après Galy (1999). **91**

Chapitre 4 : Erosion himalayenne : sources et flux d'Os et de Re

Tableau 1 : Composition isotopique d'Os et concentrations en Os et Re des minéraux séparés de gneiss de la HHC. **100**
Tableaux de l'article
Table 1 : *Os isotopic compositions and Os and Re concentrations of bedrocks from Central Nepal* ***109***
Table 2 : *Os isotopic compositions and Os and Re concentrations of bulk sediments from Central Nepal* ***110***
Table 3 : *Os isotopic compositions and Os and Re concentrations of bulk sediments from Bangladesh* ***111***
Table 4 : *Comparison of leachate and bulk Os of bedload samples* ***111***

Tableau 2 : Composition isotopique en Sr des carbonates du LH et des TSS au Népal Central (d'après Galy et al. (1999)) **123**
Tableau 3 : Composition isotopique d'Os et concentrations d'Os et de Re de roches carbonatées et de schistes noirs du LH, analysés en roche totale. **126**
Tableau 4 : Simulation de mélange entre un sédiment issu de la haute chaîne avant son entrée dans le LH, avec des carbonates et des schistes noirs du LH. **133**
Tableau 5 : Rapport molaire Os/Sr calculé et concentration en Os issue de la dissolution des carbonates AP 207, AP 811, AP 865 et AP 867. **135**
Tableau 6 : Données d'Os sur les eaux de rivières à partir de [Sharma et al. (1999), Levasseur et al. (1998, 1999). **136**

Chapitre 5 : Les sols et l'altération à basse température

Tableau 1 : Liste des sols analysés pour le Re et l'Os **143**
Tableau 2 : Composition chimique en éléments majeurs des sols étudiés au Népal Central (en roche totale). **143**
Tableau 3: Compositions isotopiques en Sr et Nd de la fraction silicatée des sols du Népal Central **146**
Tableau 4 : Concentrations en Re et Os, et composition isotopique d'Os de sols échantillonnés au Népal Central **149**
Tableau 5 : Echantillon MO 370 – Schiste noir du LH **150**
Tableau 6 : Schistes noirs du LH : GA 7 et GA 8 **151**

Chapitre 5 : Les sols et l'altération à basse température

Table 1 : *Sr, Nd and Os isotopic data from marine sediments from the Sonne SO 93 sediments* ***173***

Conclusion générale

Tableau 1 : Données des flux pour le Gange, le Brahmapoutre et les rivières restantes **195**

Pourquoi étudier le système Re-Os en Himalaya ?

Les effets de la tectonique sur le climat ont été abordés depuis près d'un siècle par Chamberlin (1899), qui a proposé une relation entre les périodes de glaciations et celles de surrection de chaînes montagneuses, à travers un lien entre l'érosion-altération des silicates et la diminution de la pression partielle de CO_2 (P_{CO2}) dans l'atmosphère.

Le dioxyde de carbone (CO_2) atmosphérique joue un rôle très important dans la régulation du climat terrestre. La compréhension des relations entre le climat, l'érosion et le CO_2 atmosphérique est primordiale. Le CO_2 rentre dans l'atmosphère par dégazage volcanique et par érosion de la matière organique. A l'inverse, il est immobilisé lors de la formation de carbonates à partir de Ca et Mg apportés par l'érosion de silicates de Ca et Mg et par enfouissement de la matière organique (Holland, 1978). L'étude des relations complexes entre le climat, le CO_2 atmosphérique et les flux d'érosion est nécessaire pour connaître les processus naturels qui régulent le climat à long terme. Toutes ces relations ont des implications à l'échelle globale. Pour cela, il faut disposer de traceurs spécifiques du cycle global. Des efforts ont donc été menés pour développer de tels traceurs, en particulier des traceurs de l'érosion continentale enregistrés par les océans (Sr, Ge/Si, P ou Os).

Le traceur le plus couramment utilisé est le rapport $^{87}Sr/^{86}Sr$ de l'océan (Figure 1). Il est principalement influencé par l'érosion des silicates et des carbonates, la dissolution de carbonates marins et les circulations hydrothermales (Palmer et Edmond, 1989). Les variations de $^{87}Sr/^{86}Sr$ au cours du temps ont été interprétées pour examiner les relations entre la tectonique, les processus d'érosion et le climat (Derry et France-Lanord, 1997 ; Galy *et al.*, 1999 ; Hodell *et al.*, 1990 ; Palmer et Edmond, 1992 ; Raymo et Ruddiman, 1992 ; Richter *et al.*, 1992). Les études détaillées de rivières himalayennes ont permis de montrer que l'érosion de l'Himalaya est bien responsable de l'augmentation actuelle des rapports $^{87}Sr/^{86}Sr$ (Krishnaswami *et al.*, 1992 ; Palmer et Edmond, 1992). Cet effet est cependant plus lié au caractère exceptionnellement radiogénique de l'Himalaya qu'au flux d'altération des silicates (Galy, 1999), ce qui rend le Sr délicat à utiliser pour tracer l'érosion au Néogène.

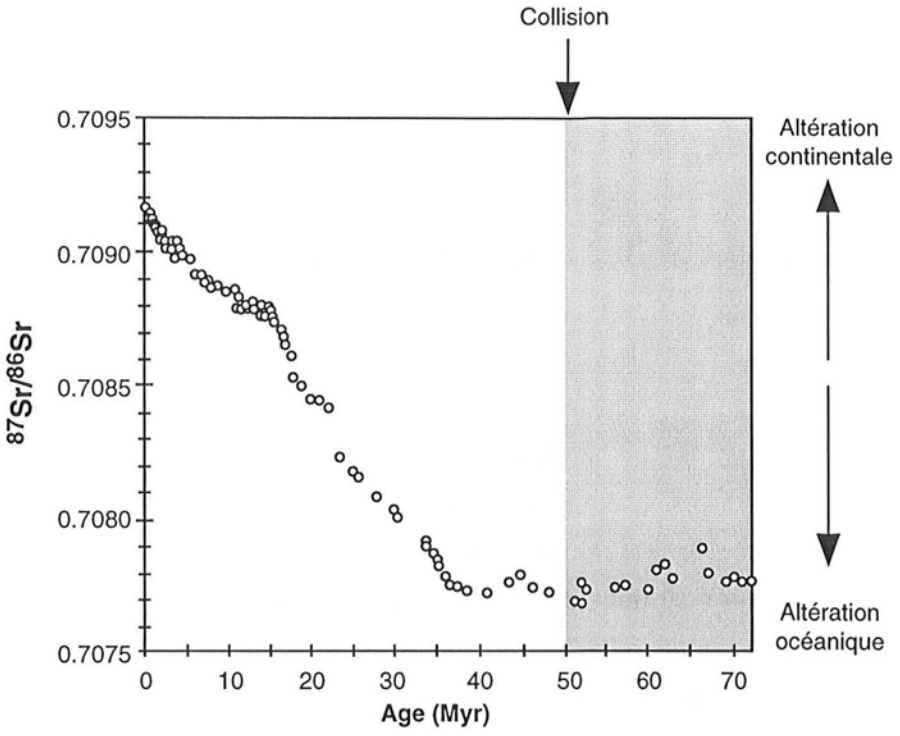

Figure 1 : Variation de la composition isotopique de Sr dans les océans durant les 70 derniers millions d'années (d'après Palmer et Elderfield (1985))

Le rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de l'eau de mer (Figure 2) a aussi révélé de grandes variations durant le Cénozoïque, suggérant qu'il serait un traceur potentiel de l'érosion continentale. Par analogie à l'évolution de $^{87}Sr/^{86}Sr$ de l'eau de mer, l'érosion continentale associée à la mise en place de la chaîne himalayenne a été la première hypothèse émise pour expliquer cette évolution. De plus, l'importance potentielle du flux d'Os radiogénique aux océans provenant des schistes noirs a été soulignée (Pegram *et al.*, 1992 ; Ravizza, 1993). Peu d'informations sur l'Os et le Re dans les carbonates sont disponibles. D'habitude, l'érosion de cette source est considérée comme n'ayant que peu de contrôle sur l'enregistrement du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ dans les océans (Reusch *et al.*, 1998), mais une étude récente (Levasseur, 1999) montre que son poids sur le flux d'Os dissous est considérable.

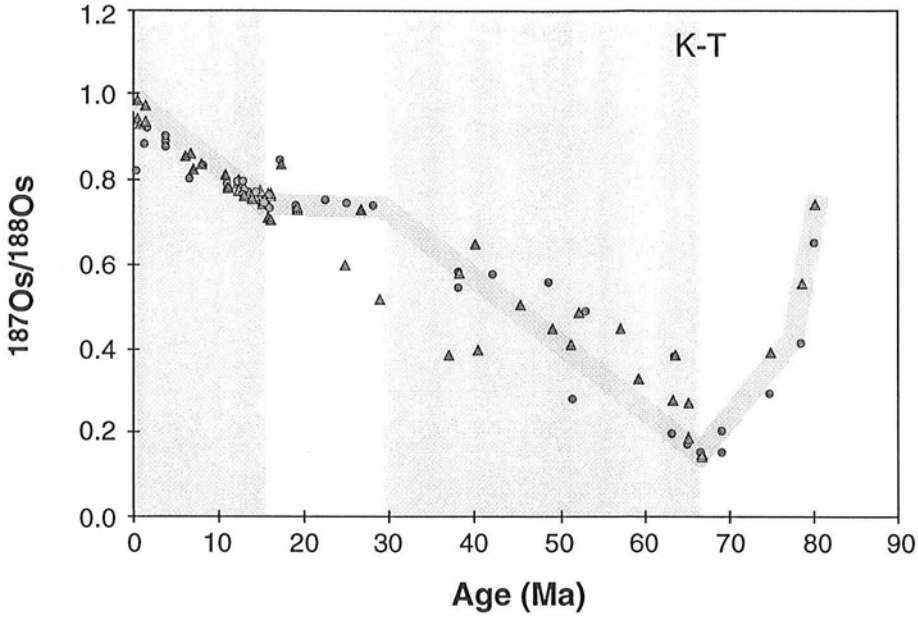

Figure 2 : Variation de la composition isotopique d'Os dans les océans au cours des 80 derniers Ma (d'après Peucker-Ehrenbrink et al. (1995)).

Les sources potentielles de Sr et d'Os radiogéniques dans les océans étant distinctes, le message enregistré par les rapports $^{87}Sr/^{86}Sr$ et $^{187}Os/^{188}Os$ dans les océans peut nous apporter des informations complémentaires, comme par exemple sur le cycle du carbone organique et inorganique. La comparaison directe des rapports océaniques $^{187}Os/^{188}Os$ et $^{87}Sr/^{86}Sr$ indique que même s'ils deviennent tous deux plus radiogéniques, ils ne sont pas toujours corrélés : un découplage entre ces deux rapports existe durant le Cénozoïque (Figure 3). Ainsi, la composition isotopique d'Os des océans pourra fournir des informations supplémentaires et complémentaires à celles des autres traceurs de l'érosion continentale.

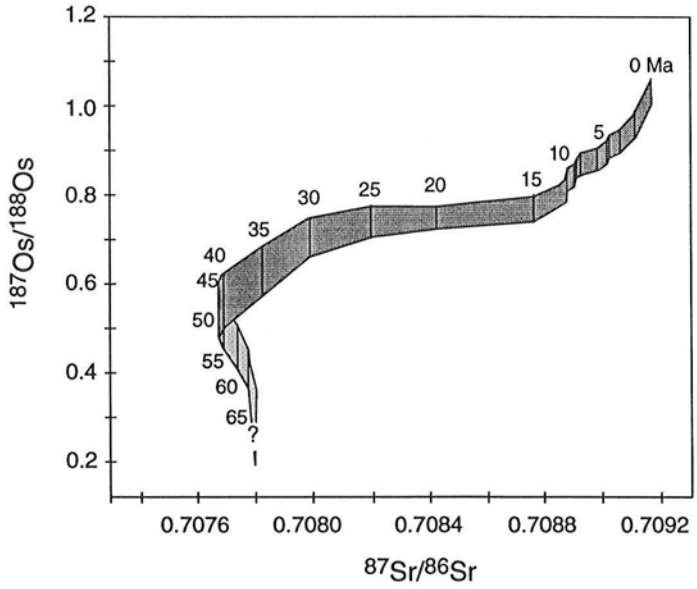

Figure 3 : Comparaison des rapports isotopiques d'Os et de Sr dans les océans (d'après Peucker-Ehrenbrink et al. (1995)).

Les temps de résidence du Sr ($2x10^6$ ans ; Palmer et Edmond, 1989) et de l'Os (10^4-10^5 ans ; Levasseur *et al.*, 1998 ; Oxburgh, 1998 ; Peucker-Ehrenbrink et Ravizza, 1996 ; Richter et Turekian, 1993 ; Sharma *et al.*, 1997) dans l'eau de mer sont assez différents. Celui du Sr permet de déterminer des oscillations du rapport isotopique sur une période du million d'années, tandis que celui de l'Os permet d'atteindre des variations sur de courtes périodes.

L'hypothèse himalayenne a été un point de départ pour rechercher des sources d'Os en Himalaya. Ces sources doivent être très importantes et/ou très radiogéniques pour influencer fortement l'Os océanique total. Les schistes noirs existants dans le bassin versant du Gange et Brahmapoutre étaient l'hypothèse la plus évidente et la première émise (Pegram *et al.*, 1992 ; Ravizza, 1993). D'ailleurs, Pegram *et al.* (1994) ont mesuré des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ de lessivage de sédiments du Gange, au niveau de Patna et Varanasi en Inde ayant respectivement des valeurs de 1.86 et 2.03. Singh *et al.* (1999) ont identifié les schistes noirs du LH comme étant une source d'Os radiogénique importante pendant l'érosion himalayenne. En effet, l'érosion chimique de telles roches peut libérer de l'Os radiogénique, plus radiogénique que dans la croûte continentale, car en général ce sont des roches anciennes riches en Re (Ravizza et Turekian, 1989).

Un contrôle complet du bilan océanique de l'Os par l'érosion himalayenne est cependant largement débattu. Etant donné l'impact supposé qu'a cette érosion sur l'Os et le Re, elle devrait aussi avoir un effet sur d'autres éléments qui partagent les mêmes propriétés chimiques et géochimiques que le Re et l'Os, comme l'U, le Mo, le P. Or, comme l'ont suggéré Pegram *et al.* (1992), les flux d'U et de P devraient aussi augmenter ces derniers 20 Ma, or cela n'a pas été observé. D'après Burton *et al.* (1999), aucune preuve n'existe pour une source d'Os radiogénique dans l'Océan Indien. Le bilan des apports d'Os dissous aux océans dressé par Levasseur *et al.* (1999) implique que les rivières himalayennes n'interviennent que pour 2% du budget global d'Os, ce qui différencie alors l'Os du Sr. Une autre hypothèse avancée pour expliquer le découplage existant entre les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ et $^{87}Sr/^{86}Sr$ de l'eau de mer durant le Miocène Moyen est la collision entre l'arc de la Nouvelle Guinée (avec des roches volcaniques appauvries en ^{87}Sr) et la marge de l'Australie (avec sédiments riches en ^{187}Os et des rapports de Sr intermédiaires), provoquant l'émergence de l'Indonésie (Reusch *et al.*, 1998). Cette nouvelle source de sédiments exposée à l'érosion a pu libérer de l'Os radiogénique dans les océans en quantité importante.

La problématique à l'origine de cette thèse est la croissance importante du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de l'eau de mer au cours du Cénozoïque (Figure 2). Les inconnues liées à ce système restent nombreuses, comme le comportement du Re et de l'Os au cours de l'altération et de l'érosion, les phases porteuses du Re et de l'Os dans les environnements continentaux. En premier lieu, pour apporter de nouveaux éléments de réflexion, il convient de s'intéresser aux mécanismes liés à l'érosion qui déterminent le flux d'Os dissous des rivières. Nous avons donc réalisé une étude de détail sur le bassin himalayen à partir du matériel particulaire. Nous avons étudié ce matériel depuis les zones sources jusqu'à l'exutoire du bassin avec les sédiments déposés dans le Cône du Bengale. Le choix de ce bassin a été déterminé par l'existence de formations radiogéniques en Himalaya (Pegram *et al.*, 1994), et par la diversité des conditions climatiques d'érosion que l'on rencontre en Himalaya. Cette étude s'inscrit dans le cadre d'un programme géochimique plus complet sur l'érosion himalayenne (Galy, 1999 ; Rose *et al.*, 2000). Ces recherches ont été menées grâce au soutien des programmes nationaux PROSE et PNSE.

Le manuscrit de cette thèse comporte six chapitres distincts portant sur une introduction générale du système Re-Os (Chapitre 1), sur le système Re-Os durant l'érosion continentale dans la chaîne himalayenne (Chapitres 4 et 5) et le rôle du flux particulaire dans l'océan à partir de données Re-Os (Chapitre 6).

Le premier chapitre est une introduction générale du système Re-Os. Le deuxième chapitre aborde les procédures analytiques. La composition isotopique d'Os des roches continentales est encore assez mal connue, essentiellement à cause des difficultés analytiques liées à la faible concentration en Os et en Re des échantillons continentaux. La première partie du travail de thèse a été la mise en place au CRPG d'une nouvelle méthode d'extraction de Re et d'Os, précédemment développée par Birck *et al.* (1997) à Paris, et de la comparer avec la méthode préalablement utilisée dite de Carius Tube (Shirey et Walker, 1995). Cette nouvelle méthode a permis de réduire les blancs analytiques de manière conséquente et donc de diminuer la taille des échantillons traités.

Le premier objectif scientifique de cette thèse a été d'étudier l'apport d'Os et de Re à l'océan par les rivières, plus précisément par la charge particulaire des rivières, et d'identifier les sources d'Os radiogénique parmi les formations himalayennes, à l'aide de roches sources et de sédiments de charge de fond des rivières. Le terrain d'étude est le bassin de la Narayani au Népal Central et celui du Gange-Brahmapoutre permettant d'avoir une vue plus globale. Le chapitre 3 présente le terrain d'étude et un bilan succinct de la géologie du Népal Central et de l'érosion liée à l'orogenèse himalayenne. Le chapitre 4 expose l'étude approfondie

menée sur des sédiments et des roches sources échantillonnés au Népal Central et au Bangladesh. Les principales données sont présentées sous forme d'un article en anglais publié dans la revue *Earth and Planetary Science Letters*. L'étude de ces échantillons permet de déterminer une source radiogénique localisée dans le Bas Himalaya : les schistes noirs. Mais ces schistes noirs ne sont pas la seule source d'Os radiogénique du Bas Himalaya. En effet, une étude plus poussée de carbonates impurs du Bas Himalaya montre qu'ils sont une source importante d'Os radiogénique supplémentaire. Ils doivent donc être pris en compte, au même titre que les schistes noirs, dans l'établissement d'un bilan d'Os dans la phase solide, mais aussi dans la phase dissoute. Le Chapitre 5 se focalise sur l'altération basse température avec l'analyse isotopique d'Os de sols. Les premières réflexions suggèrent qu'il n'y a aucune variation dans la concentration en Os et Re, et du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ avec la profondeur. Mais une perte d'Os et de Re a pu se produire dans les premiers stades de l'altération pendant le passage de la roche saine au saprolite.

Le Chapitre 6 se consacre à l'étude de sédiments marins échantillonnés dans le Cône du Bengale dans sa partie proximale avec des carottages par piston de SO 93. L'étude de sédiments provenant des forages de SO 93 couvrant les derniers cycles glaciaires montre que la distribution géographique dans la Baie du Bengale des compositions isotopiques d'Os, de Sr et de Nd reflète des sources potentielles de sédiments différentes. Le chenal principal 'Swatch of No Ground' ou 'Canyon Sans Fond' reste le drain principal des apports purement himalayens dans le Cône du Bengale. Des sources latérales, comme le Sri Lanka ou la Chaîne Indo-Birmane doivent être prises en compte pour l'établissement d'un bilan sédimentaire et isotopique des apports dans la Baie du Bengale. Grâce à ces données, le rôle du flux particulaire provenant des différents bassins continentaux sources sera abordé.

Chapitre 1
Le système Re-Os

Introduction générale au système Re-Os

Ce premier chapitre consiste en un état des lieux des connaissances acquises sur le système Re-Os. Les notions chimiques et géochimiques de l'osmium et du rhénium permettront d'aborder l'utilisation du couple Re-Os comme traceur géochimique de différents processus ayant lieu dans les divers réservoirs terrestres, comme la croûte continentale ou l'eau de mer. Les hypothèses émises pour expliquer la variation de la composition isotopique d'Os dans les océans durant le Cénozoïque seront exposées et ainsi formeront une introduction à l'étude qui suit.

I Notions essentielles sur le rhénium et l'osmium

I.A D'un point de vue chimique

Le rhénium et l'osmium sont deux métaux voisins de la série de transition de la table des éléments de Mendeleïev. Ces éléments forment essentiellement des alliages, des chalcogénures tels que des sulfures, des séléniures, des tellurures...

L'***osmium*** (Os) a été découvert en 1804 par Tennant. Il a pour numéro atomique 76 et il est un membre du groupe des platinoïdes, qui contient Os, Ru, Rh, Pd, Ir et Pt. L'Os (Tableau 1) possède des états d'oxydation allant de 0 à +8. Mais dans la nature les plus communs sont les états 0, +3 et +4 (Morgan, 1997a). L'Os forme des composés binaires avec O, S, Cl, F : par exemple $Os_{II}S_2$, OsO_2. L'Os sous forme de tétroxyde OsO_4 est soluble et volatile à basse température (point d'ébullition : 129.7°C). L'Os n'existe pas en espèce cationique libre dans une solution.

Tableau 1 : Fiche signalétique du Re et de l'Os

	Re	Os
Numéro atomique	75	76
Poids atomique	186.207	190.2
Point de fusion	3180°C	3027°C
Electronégativité	1.9	2.2
Degré d'oxydation	7, 6, 4, 2, -1	2, 3, 4, 6, 8
Rayon atomique (Å)	1.28	1.26
Rayon ionique (Å)	0.56	1.35
Potentiel d'ionisation (V)	7.9	8.7

Le ***rhénium*** (Re) (Tableau 1) a été découvert en 1925 par Ida et Walter Noddack. Son numéro atomique est 75. Il est congénère du manganèse (Mn), mais sa géochimie est proche de celle du molybdène (Mo). Le Re et le Mo ont des rayons covalents similaires (1.28 Å, 1.30 Å), et ils ont quasiment le même rayon ionique 0.56 Å (Re^{VII}) et 0.62 Å (Mo^{VI}). Le Re possède des états d'oxydation allant de –1 à +7, mais dans la nature, les états +4 et +7 prédominent (Morgan, 1997b). Il forme un métal hexagonal dans l'état

élémentaire et des composés binaires avec O, S, Cl et F dans des hauts états d'oxydation : $Re_{IV}S_2$, Re_2O_7 (ayant un point d'ébullition à 270°C). La différence de température d'ébullition des oxydes de Re et d'Os est utilisée pour la séparation de ces deux éléments. Comme l'Os, le Re n'est pas trouvé à l'état cationique libre en solution aqueuse.

I.B D'un point de vue géochimique

I.B.1 Les isotopes

Le ***rhénium*** est un métal réfractaire possédant deux isotopes naturels (Tableau 2, Figure 1).

Tableau 2 : Abondance isotopique du Re

Isotopes	Abondance relative (%)
^{185}Re	37.398±0.016
^{187}Re	62.602±0.016

poids atomique de 186.20679 ± 0.00031 (Gramlich *et al.*, 1973).

Le principal intérêt du Re est que son isotope le plus abondant, ^{187}Re, est radioactif ; il décroît en un élément stable ^{187}Os par émission d'une particule β^- :

$$^{187}\mathrm{Re} \longrightarrow {}^{187}Os + \beta^- + \gamma + Q \qquad \text{(Naldrett et Libby, 1948)}$$

avec une demi-vie extrêmement longue de 42.3 Ga, soit une constante de désintégration λ=(1.64±0.05) x 10^{-11} an^{-1} (Lindler *et al.*, 1989). Cette demi-vie est quasiment similaire à celle du ^{87}Rb (48.8 Ga). Plus récemment, une nouvelle valeur a été déterminée (Shen et Papanastassiou, 1996 ; Smoliar *et al.*, 1996) : λ=1.666 x 10^{-11} an^{-1}, donnant une demi-vie de 41.6 Ga. Elle sera utilisée pour la suite des calculs.

De fortes concentrations de Re ont été trouvées dans des molybdénites (MoS_2) (Luck, 1982 ; McCandless *et al.*, 1993). En général, il se concentre dans divers sulfures de Cu et dans des produits d'oxydation de la molybdénite. Les minéraux porteurs du Re dans les roches mantelliques et crustales sont encore mal connus. Il est certain que les sulfures jouent un rôle important, mais les phases silicatées peuvent contenir des quantités importantes de Re (Burton *et al.*, 1998 ; Righter et Hauri, 1998). Enfin, le Re a un comportement modérément incompatible pendant la fusion partielle du manteau.

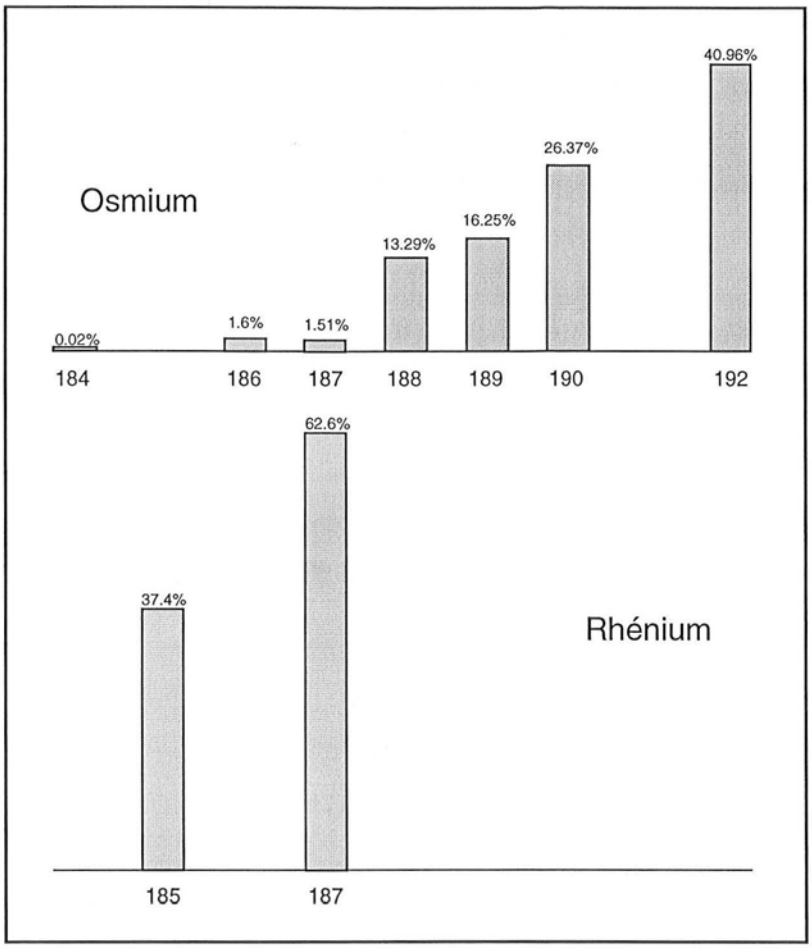

Figure 1: Abondances relatives des isotopes d'Os et de Re.

L'***osmium*** possède 7 isotopes stables naturels (Tableau 3) :

Tableau 3 : Abondance isotopique de l'Os

Isotopes	Abondance relative (%)
^{184}Os	0.023
^{186}Os	1.6
^{187}Os	1.510
^{188}Os	13.286
^{189}Os	16.251
^{190}Os	26.369
^{192}Os	40.957

poids atomique de 190.2386 (Faure, 1986). Il faut noter que ^{187}Os et ^{186}Os sont partiellement radiogéniques.

L'Os et les autres platinoïdes se trouvent dans des minéraux spécifiques, comme la Laurite ((Os, Ru)S_2), l'Iridosmine (Os, Ir), l'Osmiridium (Ir, Os). D'une manière plus générale, ils se trouvent dans les sulfures et les minéraux de roches silicatées ultrabasiques.

La décroissance radioactive, par émission d'une particule β^-, de ^{187}Re en ^{187}Os dans les réservoirs ayant des rapports Re/Os différents au cours d'une longue période engendre des échantillons naturels ayant des compositions isotopiques d'Os variables. Ainsi, l'équation de décroissance, normalisée à ^{188}Os (équation 1), est la suivante :

$$\left(\frac{^{187}Os}{^{188}Os}\right) = \left(\frac{^{187}Os}{^{188}Os}\right)_0 + \left(\frac{^{187}\mathrm{Re}}{^{188}Os}\right)(e^{\lambda t} - 1) \qquad \textit{(Équation 1)}$$

où
- λ, la constante de décroissance de ^{187}Re (an^{-1}),
- t, le temps écoulé depuis la fermeture du système (an),
- (^{187}Os/^{188}Os) et (^{187}Re/^{188}Os) sont les rapports atomiques actuels mesurés dans l'échantillon,
- (^{187}Os/^{188}Os)$_0$ est le rapport isotopique d'Os du système au moment de sa fermeture. La fermeture du système est le moment après lequel aucun Os ou Re n'a été introduit ou retiré dans le système.

L'^{187}Os n'est pas le seul isotope d'Os radiogénique. L'^{186}Os peut aussi résulter de la désintégration α du ^{190}Pt (MacFarlane et Kohman, 1961). Le couple Pt-Os est un système en plein essor scientifique. Pour l'instant, il est surtout utilisé pour étudier et dater des matériaux riches en platinoïdes, comme des météorites ou des minerais (Morgan *et al.*, 1996 ; Walker *et al.*, 1997) ou encore étudier des matériaux crustaux comme des nodules de manganèse ou des sédiments marins (Walker *et al.*, 1999). Il est aussi utilisé pour tracer la contribution potentielle du noyau dans les sources de roches basaltiques (Brandon *et al.*, 1998).

I.B.2 Le système Re-Os

Le système Re-Os est un système isotopique à part entière. Il peut être utilisé en géochronologie ou pour déterminer l'origine des différents réservoirs chimiques et géochimiques des planètes en utilisant la décroissance du ^{187}Re en ^{187}Os au cours du temps. Il diffère des autres traceurs radiogéniques, comme Rb-Sr, Sm-Nd ou U-Th-Pb, puisqu'il est constitué de deux éléments réfractaires sidérophiles et chalcophiles (préférentiellement concentrés dans les phases sulfurées (Barnes *et al.*, 1985)), alors que les autres systèmes sont composés d'éléments lithophiles (préférentiellement concentrés dans les phases silicatées). Une autre caractéristique propre à ce système est le caractère compatible de l'élément fils (Os) et le caractère modérément incompatible de l'élément père (Re) lors de la fusion partielle mantellique. Ainsi, l'Os reste dans le résidu de fusion, tandis que le Re se concentre donc dans le liquide magmatique (Morgan et Lovering, 1967 ; Walker *et al.*, 1989). La conséquence directe est le découplage entre le Re et l'Os dans la croûte terrestre, qui est très appauvrie en Os relativement au manteau et légèrement enrichie en Re, engendrant ainsi des rapports Re/Os importants dans la croûte. Par exemple, Esser et Turekian (1993) ont déterminé un rapport $^{187}Re/^{188}Os$ moyen pour la croûte continentale d'environ 48. Les roches crustales, qu'elles soient continentales ou océaniques, produisent des rapports isotopiques d'Os très radiogéniques avec le temps. Par contre, les roches mantelliques sont concentrées en Os et conservent ainsi des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ peu radiogéniques (0.11-0.135 environ) (Hart et Ravizza, 1996 ; Hauri *et al.*, 1996 ; Martin *et al.*, 1994 ; Morgan, 1986). Grâce à ce contraste existant entre le manteau et la croûte, les isotopes d'Os sont d'excellents traceurs de source.

Ainsi, ce système peut apporter des réponses supplémentaires et complémentaires à celles des autres systèmes de radio-isotopes de longue vie (Rb-Sr, Sm-Nd ou U-Th-Pb). Le système Re-Os peut être utilisé pour des datations, pour contraindre des âges comme celui du manteau lithosphérique sous-continental (Carlson et Irving, 1994 ; Walker *et al.*, 1989), des groupes de météorites (Horan *et al.*, 1992), pour examiner le recyclage de la croûte océanique dans le manteau (Hauri et Hart, 1993), pour déterminer l'origine de PGE dans des gisements (Walker *et al.*, 1991), et pour contraindre le flux de matériel extra-terrestre et continental dans les océans (Esser et Turekian, 1988).

Les datations peuvent être effectuées soit en traçant des isochrones (équation 1), soit en déterminant des âges modèles sur des échantillons individuels (équation 2, Figure 2).

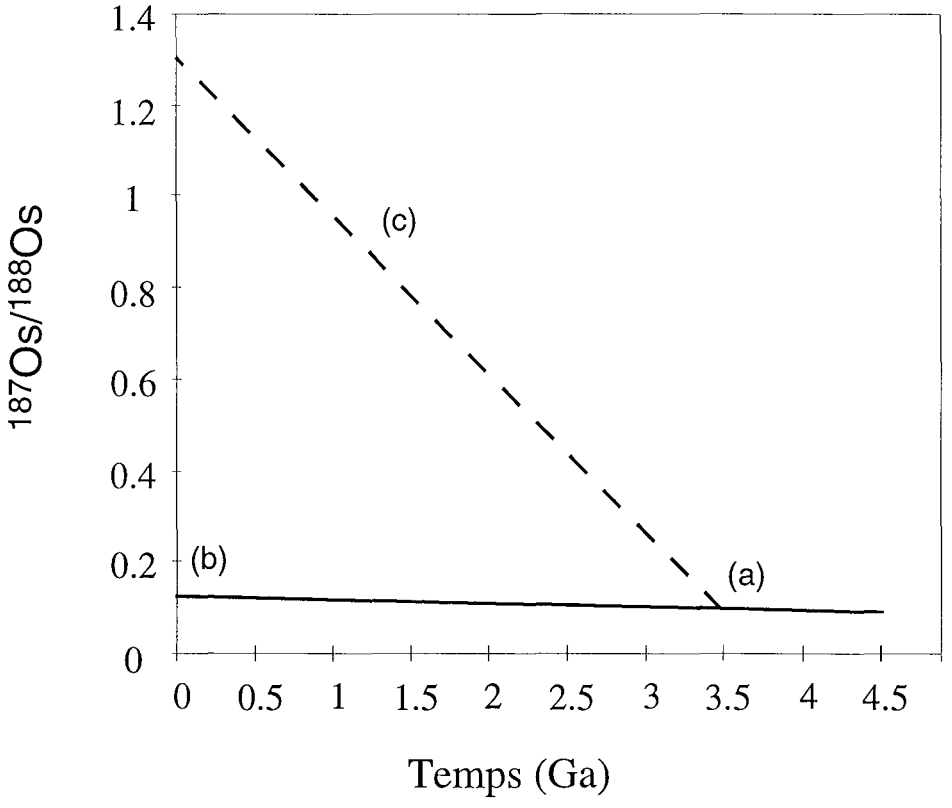

Figure 2 : Calcul d'un âge modèle d'une roche crustale. La ligne continue représente l'évolution chondritique du manteau avec un rapport initial $^{187}Os/^{188}Os$ de 0.096 et un rapport $^{187}Re/^{188}Os$ de 0.402. La ligne en pointillé représente l'évolution d'une roche crustale ayant un rapport $^{187}Re/^{188}Os$ de 19.3 et un âge modèle d'extraction à partir du manteau de 3.5 Ga.

L'âge modèle T_{Os} d'un échantillon est directement déterminé comme suit :

$$T_{Os} = 1/\lambda_{\mathrm{Re}} \times \ln\left\{\left[\frac{\left(^{187}Os/^{188}Os_{chon} - {}^{187}Os/^{188}Os_{éch.}\right)}{\left(^{187}\mathrm{Re}/^{188}Os_{chon} - {}^{187}\mathrm{Re}/^{188}Os_{éch.}\right)}\right] + 1\right\} \quad \textit{(équation 2)}$$

avec λ_{Re}=1.666x10^{-11} an^{-1} (Smoliar *et al.*, 1996)

T_{os} = âge modèle

$(^{187}Os/^{188}Os)_{chon}$=0.127

$(^{187}Re/^{188}Os)_{chon}$=0.40186 (Walker *et al.*, 1989)

II L'osmium et le rhénium dans les différents réservoirs

Les connaissances du système Re-Os ont permis d'analyser toutes sortes de matériaux provenant de divers réservoirs. Ainsi, les principaux réservoirs terrestres : le noyau, le manteau et la croûte peuvent être distingués grâce à leurs concentrations en Re et en Os, à leur rapport Re/Os et à leur composition isotopique d'Os ($^{187}Os/^{188}Os$). Le Tableau 4 résume les concentrations en Os et en Re dans différents matériaux susceptibles d'être échantillonnés.

Tableau 4 : Tableau récapitulatif des données de différents réservoirs d'après Shirey et Walker (1998).

	Os (ppb)	Re (ppb)	$^{187}Re/^{188}Os$
Chondrite (Allende)	773.9	63.23	0.3935
Manteau fertile	2.8-3.4	0.25-0.30	0.401
Manteau appauvri	0.8-9	0.05-0.14	0.06-1
Komatiite	0.5-6	0.5-1.5	1-6
MORB	0.001-0.05	0.5-2	100-5000
OIB	0.01-0.5	0.1-1	20-3000
Croûte continentale moyenne	<1	0.05	50
Sédiments pélagiques		0.7-1.5	

II.A Le noyau et les météorites

Du fait du caractère sidérophile et chalcophile du Re et de l'Os, le noyau métallique terrestre est considéré comme le réservoir majeur d'Os et de Re sur Terre (Allègre et Luck, 1980). Tous les éléments sidérophiles se sont concentrés dans le noyau lors de sa formation. De ce fait, on pense que les météorites et le noyau ont les mêmes rapports Re/Os et $^{187}Os/^{188}Os$. Le Re et l'Os sont des éléments traces, à l'échelle du ppm (10^{-6} g/g) dans les météorites ferreuses et chondrites (Luck et Allègre, 1983 ; Luck *et al.*, 1980). Cette échelle de concentration se différencie bien de celle du manteau ou de la croûte : leur concentration atteint l'échelle du ppb (10^{-9} g/g) ou du ppt (10^{-12} g/g).

Les analyses de météorites de fer ont permis de tracer des isochrones et ainsi de déterminer les rapports $^{187}Re/^{188}Os$ et $^{187}Os/^{188}Os$ initiaux du système solaire (Birck et Allègre, 1998 ; Luck et Allègre, 1983 ; Luck *et al.*, 1980 ; Shen et Papanastassiou, 1996),

à savoir $^{187}Re/^{188}Os$=0.402 et $^{187}Os/^{188}Os$=0.097. Les valeurs chondritiques sont prises en référence pour les échantillons mantelliques.

II.B Le manteau et les météorites

Les roches mantelliques et les météorites chondritiques ont des rapports Re/Os ($\approx$0.1) et $^{187}Os/^{188}Os$ (0.12-0.13) similaires. Mais les concentrations en Os et en Re dans les roches mantelliques diffèrent de deux ordres de grandeur par rapport à celles des météorites (Tableau 4). Néanmoins, les teneurs observées sont plus élevées que celles attendues après la formation du noyau. Cela signifie que le principal contrôle de la concentration en Os et en Re du manteau est en fait l'extraction des éléments sidérophiles du noyau. Cette extraction a été suivie de l'accrétion de matériel chondritique à la surface de la Terre (Morgan, 1985). La Figure 2 illustre l'évolution du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ du manteau et d'un échantillon crustal typique. La droite d'évolution du manteau terrestre montre une évolution chondritique en système fermé.

Les concentrations en Re et en Os dans les roches mantelliques et les produits de fusion, comme les basaltes et les roches continentales, indiquent que l'Os a un comportement fortement compatible, tandis que le Re est modérément incompatible lors de la fusion partielle du manteau. Les rapports isotopiques variables dans les produits mantelliques suggèrent donc que les roches ignées peuvent être issues d'un recyclage ou d'une refusion mantellique à partir d'hétérogénéités isotopiques dans le manteau (Hauri et Hart, 1993 ; Martin, 1991 ; Reisberg *et al.*, 1993 ; Walker *et al.*, 1991).

Les liquides basaltiques sont légèrement enrichis en Re et très appauvris en Os comparés aux produits parents représentés par les péridotites. C'est pourquoi les premières études sur le système Re-Os ont surtout porté sur des roches ultrabasiques, ainsi que sur des minéralisations. Par la suite, l'évolution des techniques d'analyse et de séparation des éléments a permis l'étude de roches plus pauvres, comme celle des basaltes.

II.C La croûte

II.C.1 La croûte continentale

La connaissance de la composition de la croûte continentale inférieure et supérieure est importante pour comprendre la formation et l'évolution de la croûte dans son ensemble. Les isotopes d'Os sont utilisés comme traceurs de phénomènes liés à la croûte continentale car un enrichissement en ^{187}Os est attendu dans la croûte, du fait de rapports Re/Os élevés, pouvant montrer par la suite une contamination crustale dans des magmas mantelliques.

II.C.1.a La croûte continentale supérieure

La croûte continentale supérieure est différenciée par rapport au manteau. Elle est enrichie en Re (Re/Os élevé), du fait du caractère plus compatible de l'Os lors de la fusion partielle. La concentration en Re de la croûte continentale supérieure est estimée à environ 500 ppt (Colodner *et al.*, 1993 ; Taylor et McLennan, 1985), soit un ordre de grandeur plus élevé que celle d'Os. Ceci engendre donc des rapports plus radiogéniques dans la croûte que dans le manteau par effet de la décroissance de ^{187}Re en ^{187}Os dans une croûte âgée. L'Os dérivé de la croûte continentale se distingue facilement de celui dérivé des autres réservoirs par sa signature radiogénique : la composition isotopique d'Os peut varier d'un ordre de grandeur ou plus. Jusqu'à présent, des estimations de la composition isotopique d'Os de la croûte continentale donnent un rapport ^{187}Os/^{188}Os de 1.2-1.3, pour un concentration en Os de 50 ppt (Esser, 1991 ; Esser et Turekian, 1993). L'érosion continentale permet d'aborder la composition isotopique de la croûte continentale car elle échantillonne et moyenne la contribution des différentes lithologies. Les sédiments marins ou continentaux permettent d'obtenir cette information. Cette composition isotopique de la croûte n'est pas totalement homogène comme l'ont suggéré Peucker-Ehrenbrink et Ravizza (1996). Certaines lithologies, volumétriquement peu importantes, peuvent contrôler le budget et la composition isotopique d'Os des sédiments. Les sédiments riches en matière organique, développés en milieu réducteur, préconcentrent les métaux de transition et les sulfures (Koide *et al.*, 1987 ; Ravizza et Turekian, 1989 ; Ravizza et Turekian, 1990). Des valeurs très radiogéniques existent dans des roches comme les schistes noirs, qui sont riches en Re, engendrant par la suite de l'Os radiogénique. Le lien entre l'Os, le Re et les schistes noirs implique une relation étroite avec la matière organique (Ravizza *et al.*, 1991).

Le Re et l'Os peuvent être fractionnés par des processus d'altération qui engendrent des comportements différents pour ces deux éléments. Il est reconnu que le Re est facilement mobilisé par l'action de l'altération chimique due à l'intervention d'eaux météoriques (Anbar *et al.*, 1992 ; Birck et Allègre, 1994).

A part les composantes naturelles de la croûte continentale, la composante anthropique, essentiellement dérivée des mines et des industries du secteur médical (Smith *et al.*, 1974) doit aussi être prise en compte. Elle possède une signature non radiogénique, similaire à celle de la composante mantellique (Dunlap et Flegal, 1997 ; Hart et Kinloch, 1989). L'apparition d'Os anthropique dans des sédiments continentaux tend à diminuer le rapport $^{187}Os/^{188}Os$ par rapport aux valeurs crustales radiogéniques typiques. Parfois, la concentration en Os des sédiments peut être multipliée par un facteur 10 à 40 (Ravizza et Bothner, 1996). Cette composante anthropogénique est enrichie dans les sédiments de surface par rapport aux sédiments plus profonds.

Dans certains cas, une signature non-radiogénique peut être aussi due à la présence de matériel météoritique (comme des poussières cosmiques), qui a un rapport isotopique chondritique caractéristique et une concentration en Os 10^3 fois plus élevée que celle de son hôte. Ainsi, il faut prendre en compte leur flux dans les sédiments, car l'Os extra-terrestre peut être une source majeure d'Os non-radiogénique.

Le comportement du Re est différent de celui de l'Os, puisqu'il semble être très mobile dans les environnements de surface. Dans des conditions oxydantes, le Re entrera facilement en solution sous la forme ReO_4^- ; la conséquence directe étant l'appauvrissement en Re des produits résiduels (Koide *et al.*, 1986). Dans des sédiments pélagiques, sa concentration sera plutôt faible comparée à celle de la croûte continentale moyenne, puisqu'elle n'excède guère 100 ppt. Dans des conditions anoxiques, le Re sera plus facilement concentré. Sa concentration pourra facilement atteindre le ppb, comme dans des dépôts sulfurés ou des phosphorites.

II.C.1.b La croûte continentale inférieure

La croûte continentale inférieure montre des concentrations moyennes en Os comparables à celles de la croûte continentale supérieure, allant jusqu'à 100 ppt (Esparança *et al.*, 1997 ; Saal *et al.*, 1998). Les concentrations de Re sont par contre plus faibles (50-500 ppt), expliquant ainsi le rapport isotopique d'Os moins radiogénique relativement à la

croûte continentale supérieure. Mais les données sur ce réservoir sont encore trop peu nombreuses à ce jour pour avoir des conclusion générales.

II.C.2 La croûte océanique

La croûte océanique est beaucoup moins radiogénique que la croûte continentale ; ceci est expliqué par son plus jeune âge. Au moment de sa formation, elle possède une signature quasiment mantellique. Mais ce rapport augmente rapidement avec le temps, grâce à l'altération hydrothermale et au rapport Re/Os élevé des basaltes. Les rapports élevés des basaltes, ainsi que les rapports faibles des péridotites sont le résultat d'un fractionnement Re/Os important lors de la formation de la croûte océanique. Il existe en outre des différences de rapports isotopiques entre et parmi les différents produits magmatiques, tels que les OIBs ou les MORBs. Les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ des OIBs sont relativement radiogéniques et indiquent éventuellement la présence de croûte océanique subductée dans la source des laves (Hauri et Hart, 1993). La concentration en Os des basaltes est faible. Cependant, l'Os semble se concentrer dans les sulfures (Ravizza *et al.*, 1996 ; Roy-Barman *et al.*, 1998), confirmant ainsi le caractère chalcophile de l'Os et du Re (Roy-Barman *et al.*, 1998).

III L'osmium marin : enregistrement temporel des sources

L'eau de mer reste encore une énigme dans le système Re-Os. La compréhension de ce grand réservoir permettra de mieux connaître certains processus tels que l'érosion continentale, l'altération hydrothermale ayant cours dans les océans... Avant tout, il faut pouvoir l'analyser.

III.A Les échantillons

L'analyse de la composition de l'eau de mer s'est faite en deux temps : 1) d'une manière indirecte avec des échantillons solides, 2) d'une manière directe avec de l'eau de mer actuelle. Les échantillons analysés dans les précédentes études sont les suivants :

- des nodules de Mn (Luck et Turekian, 1983 ; Palmer *et al.*, 1988 ; Palmer et Turekian, 1986 ; Turekian et Luck, 1984). Ils concentrent les éléments dissous dans l'eau de mer et enregistrent leur composition isotopique.

- des croûtes d'oxydes de Mn (Burton *et al.*, 1996 ; Burton *et al.*, 1999 ; Oxburgh, 1998 ; Ravizza *et al.*, 1996).

- des sédiments biogéniques, riches en matière organique, développés en milieu réducteur (Ravizza et Turekian, 1990 ; Ravizza et Turekian, 1992). Ces sédiments préconcentrent l'Os hydrogénétique (Koide *et al.*, 1991 ; Ravizza *et al.*, 1991).

- des sédiments métallifères (Oxburgh, 1998 ; Peucker-Ehrenbrink *et al.*, 1995 ; Ravizza et McMurtry, 1993 ; Reusch *et al.*, 1998),

- des argiles pélagiques (Pegram *et al.*, 1992 ; Turekian et Pegram, 1997),

- des sédiments riches en carbonates (Oxburgh, 1998).

- des coraux (Levasseur *et al.*, 1999). Mais ils ne semblent pas restituer la signature de l'eau de mer directement. La composante dominante est plutôt contrôlée par les micrométéorites.

L'analyse de certains échantillons d'âge variable permet d'observer des changements temporels à l'échelle du million d'années et du millier d'années (Burton *et al.*, 1996 ; Burton *et al.*, 1999 ; Oxburgh, 1998). Cette évolution sera le sujet du paragraphe III.C.

L'analyse de tels sédiments nécessite certaines conditions, qu'il faut prendre en compte:

- le taux de sédimentation. Un taux de sédimentation élevé permet de minimiser l'influence de l'Os cosmique, qui est non radiogénique et largement plus concentré que dans les sédiments. Si le taux de sédimentation est faible, une phase non-radiogénique et non-hydrogénétique pourra affecter très largement le lessivage de l'échantillon et par conséquent la signature des sédiments étudiés (Peucker-Ehrenbrink *et al.*, 1995).

- la nature de l'Os contenu dans ces sédiments. Il est préférable d'utiliser des sédiments ayant une faible fraction détritique pour n'avoir que le signal hydrogénétique.

La composition isotopique d'Os ($^{187}Os/^{188}Os$) de l'eau de mer est quasiment homogène d'un océan à un autre (Levasseur *et al.*, 1998a ; Palmer *et al.*, 1988 ; Ravizza et Turekian, 1992 ; Sharma *et al.*, 1997), variant de 1.03 à 1.06 selon les études. Cette homogénéité apparente suppose un temps de résidence d'Os dans l'eau de mer assez long (Palmer *et al.*, 1988), variant entre 4 et 60 ka (Burton *et al.*, 1999 ; Levasseur *et al.*, 1998a

; Oxburgh, 1998 ; Peucker-Ehrenbrink et Ravizza, 1996 ; Sharma *et al.*, 1997). Ce temps de résidence reste faible comparé à celui du Sr (Hodell *et al.*, 1990 ; Palmer et Edmond, 1992 ; Richter et Turekian, 1993). Cela induit que la composition isotopique d'Os peut répondre aux fluctuations à court terme des entrées dans les océans (Richter et Turekian, 1993), par exemple durant les périodes glaciaires et interglaciaires (Oxburgh, 1998). Ce système peut offrir un enregistrement très sensible à l'érosion chimique continentale (Burton *et al.*, 1999). Mais même si le rapport isotopique d'Os semble plutôt homogène, il existe des variations locales, reflétant des entrées continentales et des circulations de masses d'eau dans les océans (Burton *et al.*, 1999).

En plus du rapport isotopique, la concentration en Os a été déterminée : [Os]=10.86pg/l (Levasseur *et al.*, 1998b) et elle ne varie pas en profondeur. D'après ces données, Levasseur *et al.* (1998b) supposent que l'Os a un comportement conservatif dans les océans. Dans l'eau de mer, l'Os semble préférentiellement s'absorber sur les phases MnO_2 (Burton *et al.*, 1999 ; Palmer *et al.*, 1988).

III.B Les sources

L'Os marin est un mélange d'Os dissous provenant de plusieurs sources :

- de l'érosion continentale, avec des rapports Re/Os et $^{187}Os/^{188}Os$ élevés (Esser et Turekian, 1993 ; Pegram *et al.*, 1994 ; Peucker-Ehrenbrink et Ravizza, 1996),
- de l'altération hydrothermale de la croûte océanique, avec une composition isotopique non radiogénique ($^{187}Os/^{188}Os \approx 0.12$) (Palmer et Turekian, 1986 ; Turekian et Luck, 1984), comme des péridotites abyssales ou des basaltes océaniques,
- de la dissolution de matériel météoritique ayant un rapport similaire à celui de la croûte océanique ($^{187}Os/^{188}Os \approx 0.12$) (Esser et Turekian, 1988 ; Luck et Allègre, 1983 ; Luck *et al.*, 1980 ; Morgan, 1985 ; Walker *et al.*, 1989),

Les proportions des différentes sources intervenant dans le rapport isotopique de l'eau de mer ne sont pas encore bien définies. Le rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de l'eau de mer actuelle est de 1.06 (Levasseur *et al.*, 1998b ; Sharma *et al.*, 1997). Il implique que la source majeure d'Os dissous provient d'une source radiogénique apportée par l'érosion continentale (50-80 %), et l'Os restant (20-50 %) provient d'une source ayant un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ faible (Pegram *et al.*, 1994 ; Sharma *et al.*, 1997).

Une estimation du flux de continental donne environ 70 kg d'Os par an avec un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de 1.92 (Pegram *et al.*, 1994), tandis qu'une autre donne 48 kg d'Os par an avec un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de 2.7 (Peucker-Ehrenbrink et Ravizza, 1996).

Les puits principaux d'Os dans l'eau de mer sont des environnements de dépôts de sédiments riches en matière organique, qui seront, une fois exhumés sur les continents, des sources très importantes pour le Re et l'Os, les autres puits importants sont les sédiments métallifères et les oxydes de Mn.

III.C Les variations du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ dans les océans au cours du temps

Une courbe de variation de la composition isotopique d'Os au cours du temps, sur 65 Ma, a été déterminée (Figure 3).Elle a été obtenue à partir de l'analyse globale de sédiments marins riches en une composante hydrogénétique ou en lessivant des nodules ou croûtes de Mn pour retirer l'Os hydrogénétique.

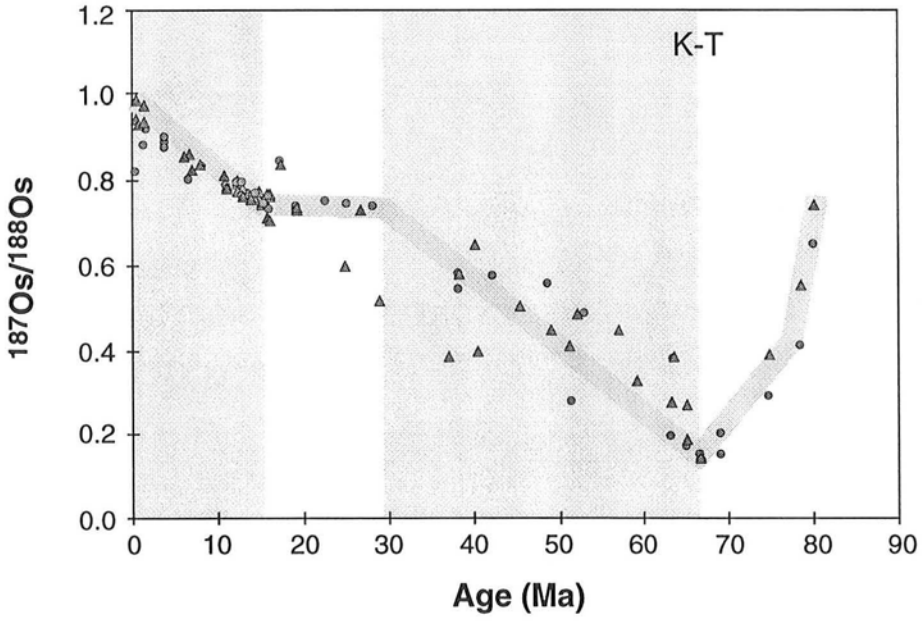

Figure 3 : Variation de la composition isotopique d'Os dans l'eau de mer au cours du temps. Courbe d'après Peucker-Ehrenbrink et al. (1995). Les triangles représentent des lessivages de sédiments, tandis que les disques représentent des analyses en roche totale.

Deux caractéristiques évidentes sont observées sur la courbe présentée dans la Figure 3 : 1) une décroissance nette et rapide de $^{187}Os/^{188}Os$ avant 65 Ma,

2) une croissance plus douce de $^{187}Os/^{188}Os$ après cette période jusqu'à l'actuel pendant le Cénozoïque.

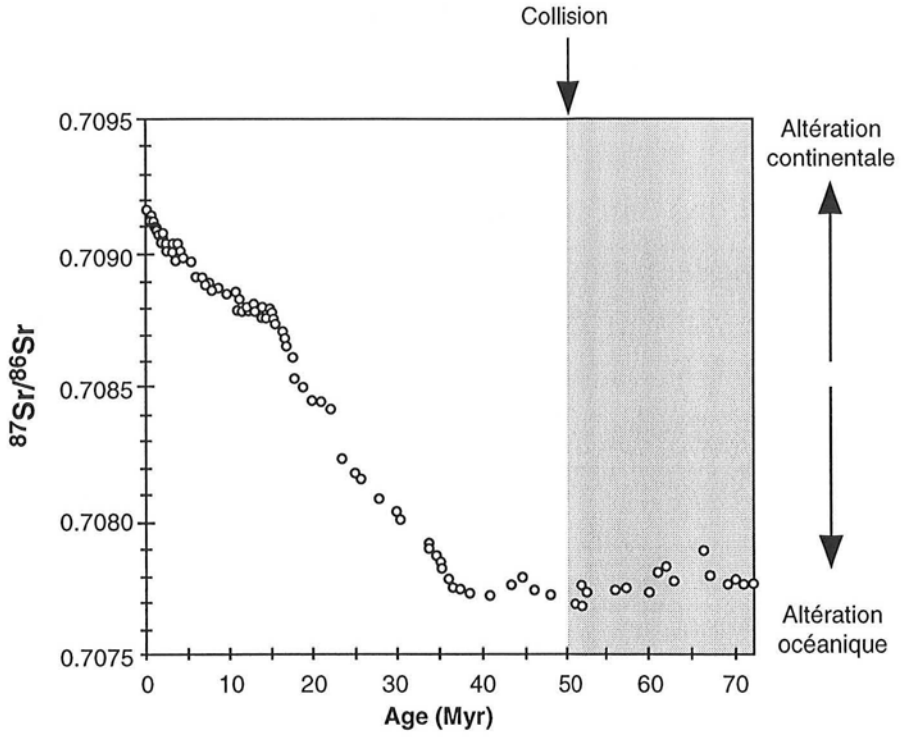

Figure 4 : Variation de la composition isotopique de Sr dissous dans les océans sur une période de 70 Ma, d'après Palmer et Elderfield (1985). La zone grisée représente la période avant la collision entre l'Inde et l'Asie.

III.C.1 La décroissance de $^{187}Os/^{188}Os$

Le rapport isotopique d'Os ($^{187}Os/^{188}Os$=0.2) à la limite K-T a été déterminé par Luck et Turekian (Luck et Turekian, 1983). Cette faible valeur suggère l'intervention d'une composante mantellique ou météoritique. Cet impact est aussi localisé par une anomalie en Ir (Kyte *et al.*, 1993). La décroissance brutale de $^{187}Os/^{188}Os$ avant la limite K-T n'est encore expliquée.

III.C.2 La croissance de $^{187}Os/^{188}Os$

Cette croissance a lieu sur 65 Ma. Elle n'est pas monotone, certaines périodes montrent une stabilisation de la croissance, par exemple entre 28 et 16 Ma. La croissance du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ durant le Cénozoïque ne semble pas être due à la diminution de l'apport de particules cosmiques, puisque le flux de poussières cosmiques est supposé constant pendant les derniers 80 Ma (Peucker-Ehrenbrink, 1996). Afin d'expliquer ces variations isotopiques, cette courbe est souvent comparée à celle du Sr sur la même période (Figure 4). Une comparaison directe entre $^{187}Os/^{188}Os$ et $^{87}Sr/^{86}Sr$ est montrée sur la Figure 5.

La relation existant entre les isotopes de Sr et d'Os suggère que ces deux éléments sont contrôlés par des processus d'érosion continentale (Turekian et Pegram, 1997) ou d'altération de croûte océanique. La contribution des météorites sur l'enregistrement du Sr dans l'eau de mer a eu peu d'impact, étant donné que les météorites sont pauvres en Sr.

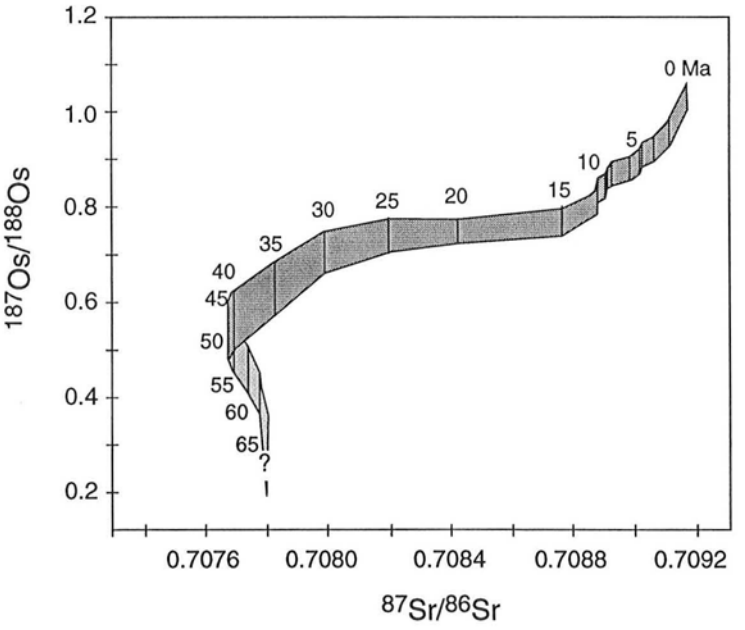

Figure 5 : $^{187}Os/^{188}Os$ en fonction de $^{87}Sr/^{86}Sr$ dans l'eau de mer sur les derniers 65 Ma, d'après Peucker-Ehrenbrink et al. (1995).

Trois périodes majeures peuvent être distinguées sur la Figure 5.

De 65 Ma à 35 Ma, aucune variation de $^{87}Sr/^{86}Sr$ n'est observée, tandis que $^{187}Os/^{188}Os$ varie de 0.23 à 0.66. Les faibles valeurs de $^{87}Sr/^{86}Sr$ sont attribuées à l'altération hydrothermale de basaltes. La variation de $^{187}Os/^{188}Os$ peut être due à un impact de météorite à la limite Crétacé-Tertiaire ou à la variation dans l'apport d'Os non radiogénique par altération de roches ultramafiques riches en Os au niveau des marges océaniques (Turekian et Pegram, 1997). Il est certain que l'impact météoritique serait une bonne explication pour la diminution du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ à 65 Ma., parce qu'il affecterait largement $^{187}Os/^{188}Os$, mais pas $^{87}Sr/^{86}Sr$. Par contre, il est moins évident de comprendre pourquoi le rapport a mis si longtemps à reprendre la valeur antérieure à l'impact météoritique si l'on considère un temps de résidence compris entre 4 et 60 ka.

De 35 à 17 Ma, les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ et $^{87}Sr/^{86}Sr$ augmentent simultanément. La faible croissance de $^{187}Os/^{188}Os$ pourrait être expliquée par l'apport de matériel continental affecté par du matériel issu de l'impact météoritique qui entre seulement dans le réservoir océanique, ou par la forte production de croûte océanique à cette époque (Peucker-Ehrenbrink *et al.*, 1995). La relation entre l'Os et le Sr suggère une érosion continentale croissante d'une source d'Os et de Sr plus radiogénique : une source potentielle étant l'érosion glaciaire de l'Antarctique (Pegram *et al.*, 1992 ; Turekian et Pegram, 1997).

De 17 Ma jusqu'à aujourd'hui, $^{187}Os/^{188}Os$ a augmenté d'une manière plus importante que $^{87}Sr/^{86}Sr$. Cette croissance est attribuée soit à l'érosion continentale liée à la collision entre la marge passive australienne et l'arc de Nouvelle-Guinée (Reusch *et al.*, 1998), soit à l'érosion continentale plus importante de la chaîne himalayenne (Pegram *et al.*, 1994). En effet, le rapport radiogénique de lessivage de sédiments du Gange (Pegram *et al.*, 1994) suggère l'érosion de roches riches en matière organique et en Re, par conséquent riches en Os radiogénique (Pegram *et al.*, 1992 ; Ravizza, 1993 ; Ravizza et Turekian, 1992), comme d'anciens schistes noirs riches en Re (Turekian et Pegram, 1997).

L'érosion de schistes noirs riches en Re, ayant des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ très radiogéniques, peut être une source potentielle importante d'Os radiogénique aux rivières, puis aux océans (Ravizza, 1993). Ils peuvent ainsi jouer un rôle important dans la variation de $^{187}Os/^{188}Os$ de l'eau de mer. Cette lithologie a de fortes concentrations en Re et en Os, supérieures à celle de la croûte continentale moyenne (Ravizza et Turekian, 1989). Le caractère réduit et la présence de sulfures rendent vulnérable cette lithologie à l'érosion rapide dans des conditions acides. Ravizza et Esser (1993) ont relié le cycle géochimique de l'Os et de Re et celui de la matière organique.

IV Le rhénium marin

En surface, le Re se trouve essentiellement concentré dans des sédiments riches en matière organique sous une forme réduite. Ces sédiments représentent un puits très important du Re marin (40 %) (Colodner *et al.*, 1993), par exemple en Mer Noire (Crusius *et al.*, 1996 ; Ravizza *et al.*, 1991). Les 60 % restants se trouvent dans des sédiments en zone suboxique et dans les circulations hydrothermales (Colodner *et al.*, 1993). Le Re marin a une géochimie similaire à celle d'U et de Mo.

Tout comme l'Os marin, le Re marin peut subir des apports anthropiques, provenant de la combustion de charbon qui contient de fortes concentrations de Re.

Dans l'eau de mer, il se trouve en quantité relativement importante, puisque l'oxyanion ReO_4^- est très soluble (Brookins, 1986 ; Bruland, 1983 ; Colodner *et al.*, 1993). Il a aussi un comportement conservatif (Anbar *et al.*, 1992 ; Koide *et al.*, 1987) et un temps de résidence assez long, de 750000 ans (Colodner *et al.*, 1993), largement supérieur à celui de l'Os. La concentration moyenne en Re dans l'eau de mer est de 8 ng/kg (Anbar *et al.*, 1992 ; Colodner *et al.*, 1993).

Chapitre 2
Procédures analytiques

Les procédures analytiques

La difficulté première des analyses d'Os et de Re réside dans le fait que les échantillons analysés sont peu concentrés en ces deux éléments. Les concentrations rentrent dans une gamme allant de quelques ppt à quelques centaines de ppt, en général inférieures à 50 ppt. Ces concentrations nécessitent donc une quantité importante d'échantillon (quelques grammes), ainsi qu'une méthode d'extraction-purification de Re et d'Os très efficace et très propre (rendements élevés et blancs très faibles). Les mesures de la concentration en Os et Re se font par dilution isotopique. La séparation de ces deux éléments est nécessaire car le ^{187}Re est isobarique avec l'^{187}Os.

Ce chapitre apporte une description des différentes méthodes utilisées pour déterminer les concentrations de Re et d'Os, ainsi que la composition isotopique en Os de sédiments modernes et anciens, de roches sources, de sols. La préparation des échantillons, les méthodes de purification de Re et d'Os, les analyses par spectrométrie à thermo-ionisation sont une partie importante dans la détermination de composition isotopique d'éléments ultratraces dans les échantillons terrestres. Ainsi, la comparaison des différentes méthodes, la reproductibilité et la qualité des analyses, de standards et d'échantillons, ont été l'objectif premier durant le début de la thèse.

Des analyses de Rb-Sr, Sm-Nd et de carbone organique ont été effectuées sur les différents échantillons étudiés. Les méthodes seront abordées à la fin du chapitre.

Analyses d'Os et de Re

Les premières analyses effectuées sur des sédiments et des roches ont été faites en utilisant la méthode par Carius tube mise au point par Shirey et Walker (1995). Cette méthode a donné des blancs de chimie beaucoup plus faibles que la fusion NiS, essayée initialement. Ainsi cette méthode a nécessité une faible correction de blanc de chimie. Puis la méthode mise au point par Birck *et al.* (1997) a été adoptée, car elle semble plus appropriée aux échantillons étudiés au vu des faibles blancs sur chimie totale obtenus par rapport à ceux des méthodes précédentes.

I. Chimie d'Os et de Re : principes de base

I.A. L'osmium

L'Os est un métal noble. Il possède 8 degrés d'oxydation. Les plus courants sont les degrés 0 (dans les alliages de métaux Os-Ir-Ru), IV ($Os(Cl)_6^{2-}$), et VIII (OsO_4). A l'état tétravalent (degré IV), il peut être sous forme d'hexabromo-osmate ($OsBr_6^{2-}$) ou d'hexachloro-osmate ($OsCl_6^{2-}$), qui sont des composés solubles et très stables en milieu acide. Cette propriété sera utilisée lors de la séparation et de la purification chimique. OsO_4 est obtenu par action d'un oxydant puissant, tel que HNO_3 ou CrO_3, sur toute autre forme d'Os moins oxydée. Il est volatil à basse température. Son point de fusion est à 30°C et son point d'ébullition est à 129.7°C à pression atmosphérique. Une telle oxydation permet donc de se ramener à une seule espèce (l'espèce la plus oxydée OsO_4), assurant ainsi l'homogénéisation isotopique entre l'échantillon et le traceur pour la dilution isotopique.

I.B. Le rhénium

Le Re est aussi un métal noble. Il possède quant à lui 7 degrés d'oxydation. Sa forme la plus oxydée (VII) est la plus courante et la plus stable : l'ion perrhanate (ReO_4^-). Il est obtenu par l'action d'un oxydant comme l'acide nitrique (HNO_3) sur du Re se trouvant sous une forme réduite. Par contre, sous cette forme, le Re n'est pas volatil à température ambiante, comme l'est l'Os.

II. Préparation des échantillons et du matériel

Actuellement, pour déterminer des concentrations d'éléments comme Re et Os, la méthode la plus précise utilisée est la dilution isotopique par une mesure faite sur un spectromètre de masse à thermoionisation en mode négatif (N-TIMS) (Creaser *et al.*, 1991 ; Völkening *et al.*, 1991). Bien évidemment, la condition *sine qua none* pour avoir une mesure juste et précise est un parfait équilibre entre l'élément (Os ou Re) de l'échantillon et celui du traceur, ainsi qu'une bonne séparation des deux éléments avant de les mesurer isotopiquement au spectromètre de masse. Une séparation rigoureuse de ces deux éléments de la matrice solide ou liquide est nécessaire. Elle se fait à l'aide de la chimie en salle propre (« salle blanche »).

Différentes méthodes ont été testées et utilisées durant cette thèse. Tout d'abord, le lessivage à H_2O_2-H_2SO_4 (Pegram *et al.*, 1994), la méthode dite par Carius Tube (Shirey et Walker, 1995), puis la méthode développée (Birck *et al.*, 1997) ou méthode dite de Paris. Quelques tests avec la fusion NiS ont été effectués au préalable.

II.A. La préparation des échantillons

Avant de commencer la chimie, les échantillons à analyser doivent être préparés soigneusement. Selon les échantillons étudiés, le mode de préparation diffère quelque peu.

II.A.1 Les sédiments modernes, les sédiments marins, les sols

Tous les échantillons ont été séchés entre 60°C et 70°C pendant 24 heures environ. Les sédiments séchés ont été ensuite séparés en deux fractions équivalentes par 'quartage'. Une des deux fractions a été utilisée pour des analyses chimiques en roche totale, l'autre fraction pour des séparations granulométriques. La première fraction a été porphyrisée dans des mortiers en agate et les échantillons ont été stockés dans des poudriers en plastique jusqu'à leur utilisation. Afin de savoir si la poudre était bien homogène, certains échantillons ont été dupliqués en chimie pour vérifier s'il y avait un effet « pépite ». Les résultats seront présentés dans la suite du chapitre. Quant aux sols, ils ont été tamisés à 1mm pour ôter les galets qui sont présents de manière assez hétérogène dans le sol, ceci afin d'éviter de fausser les résultats de quelques éléments.

II.A.2 Les roches sources

Les roches ont été broyées et porphyrisées dans des mortiers en agate. A l'identique des échantillons meubles, les poudres de roches ont aussi été stockées dans des poudriers en plastique. Le peu d'informations disponibles sur l'Os nous conduit à le rechercher dans toutes les phases pour

comprendre son comportement. Ainsi, un tri minéralogique sur des gneiss de la Dalle du Tibet a été réalisé par liqueur dense. Pour la plupart des échantillons, une analyse chimique complète d'éléments majeurs et traces au S.A.R.M. (C.R.P.G.) a été faite et présentée en Annexe 2.

II.B. Préparation des réactifs

La séparation et la purification de l'Os et du Re se font grâce à des acides minéraux et organiques. Dans les différentes méthodes utilisées, les principaux acides sont identiques. Ces acides sont l'acide fluorhydrique (HF) utilisé pour dissoudre les phases silicatées, l'acide nitrique (HNO_3) pour dissoudre les phases silicatées et oxyder la matière organique, l'acide bromhydrique (HBr) pour assurer la réduction d'Os dans une forme non-volatile. Le chrome (Cr^{VI}) est utilisé comme oxydant puissant. Le brome sous forme de Br_2 capture l'Os alors sous forme oxydée (cf. Tableau 1). Chaque réactif doit être le plus propre possible : ils sont donc purifiés, afin d'éviter une contamination des échantillons peu concentrés.

Tableau 1: Blancs d'Os et de Re des différents acides utilisés

Acide - solution	[Os] pg/g	$^{187}Os/^{188}Os$	[Re] pg/g
H_2O	0.0001	0.263	<1
CrO_3 dans HNO_3	0.012	0.717	≈10
HBr 9N bi-distillé	0.003	0.207	
HF commercial	0.0038	0.351	<1
HNO_3 purifié	0.062	0.355	<1
Br_2 bidistillé	0.006	0.345	
Filament Pt	0.00007	0.75	
Blanc total de procédure de 'Paris' pour 3 g d'échant.	0.30±0.15 pg	0.61±0.25	30±5 pg

L'HBr est bidistillé dans un distillateur en téflon. Les acides minéraux (HCl et HNO_3) sont purifiés dans un distillateur en Quartex. HNO_3 distillé est purifié une deuxième fois dans un distillateur pourvu d'un flux d'azote pour ôter les traces d'Os. La solution de Cr^{VI} est faite à partir d'une poudre de Cr mélangée à de l'HNO_3 purifié. Une fois la solution faite, elle est encore purifiée pour ôter l'OsO_4 dans un distillateur avec un flux d'azote. Cependant, cette purification n'ôte pas toutes les traces de Re du Cr. Ces traces peuvent être parfois très importantes, mais elles

très variables selon les lots de Cr utilisés. La seule solution est donc de tester chaque lot de CrO_3 avant de l'utiliser.

II.C. Les traceurs isotopiques (spikes)[1]

Pour déterminer la concentration en Os et en Re des échantillons, la dilution isotopique est une méthode fiable et très précise. Cette méthode implique l'addition d'un traceur isotopique, le but étant d'obtenir un équilibre parfait entre l'Os et le Re provenant du traceur et celui de l'échantillon. Pour l'Os, le traceur isotopique est enrichi en ^{190}Os, tandis que pour le Re, il est enrichi en ^{185}Re. Le traceur d'Os est en solution dans HCl 6N, sous forme $OsCl_6^-$. Celui de Re est en solution dans HNO_3 1N, sous une forme stable dans cet acide ReO_4^-. Ces deux traceurs sont conservés dans des bouteilles en téflon.

Le Tableau 2 et le Tableau 3 donnent respectivement la composition isotopique des traceurs d'Os et de Re utilisés durant de cette thèse. Ces compositions ont été déterminées par N-TIMS, de la même façon que pour un échantillon. Les différents spikes utilisés ont des concentrations de 0.885 ppb pour l'Os et 5.24 ppb et 15.052 ppb pour le Re.

Tableau 2: Composition isotopique du traceur isotopique de ^{190}Os utilisé lors de cette étude.

Isotopes	Analyse du 4-9-1991	Analyse du 18-5-99
^{184}Os	0 .000 %	0.001 %
^{186}Os	0.024 %	0.024 %
^{187}Os	0.024 %	0.022 %
^{188}Os	0.516 %	0.464 %
^{189}Os	0.871 %	0.876 %
^{190}Os	96.581 %	96.793 %
^{192}Os	1.984 %	1.810 %

Tableau 3 : Composition isotopique du spike de Re utilisé pour cette étude.

Isotopes	Abondance (%)
^{187}Re	5.6
^{185}Re	94.4

[1] Les traceurs isotopiques ou spikes sont des solutions artificiellement enrichies en un élément ou isotope.

III. Les méthodes d'extraction utilisées

Le but de toute chimie concernant l'Os et le Re est d'obtenir ces éléments sous un même degré d'oxydation avant la séparation des éléments. Dans un échantillon, ces deux éléments peuvent se trouver sous différents degrés d'oxydation. Toutes les méthodes permettant d'analyser l'Os et le Re utilisent le fait que l'Os sous la forme la plus oxydée (OsO_4) est volatil à 129.7°C, pouvant ainsi être facilement extrait pendant la distillation ou la microdistillation. La méthode de Paris utilise le fait que OsO_4 a une grande affinité avec le brome (Br_2). L'inconvénient est qu'il est très volatil pendant l'évaporation. OsO_4 est aussi très soluble dans HBr, dans lequel l'Os se transforme en $OsBr_6^-$. L'oxydation de l'Os et du Re d'un échantillon (sous forme de OsO_4 et ReO_3) et d'un traceur isotopique permettra l'homogénéisation isotopique.

III.A. Méthode par Carius tube (Shirey et Walker, 1995)

III.A.1 Principe de la méthode

La méthode dite par Carius tube, basée sur celle développée par Shirey et Walker (1995), fut la première utilisée durant cette thèse. Pour l'analyse de sédiments et de roches himalayennes caractérisés par de faibles concentrations en Re et Os, cette méthode permet d'atteindre des blancs plus faibles que ceux de la fusion NiS (testée auparavant). Les blancs de la méthode de la fusion de NiS peuvent atteindre de faibles valeurs si les lots de réactifs (surtout ceux du Ni) sont propres, mais nous n'avons pas trouvé de tels lots. D'autre part, il est très difficile d'analyser le Re par fusion, car le Re se sépare très mal dans la bille de sulfure formée. Ainsi, l'équilibre isotopique est souvent inachevé entre le spike et l'échantillon.

La méthode de Carius tube est basée sur la digestion d'un échantillon dans un tube en verre fermé, développée par Carius en 1865. Le tube en verre borosilicaté utilisé dans cette méthode est représenté sur la Figure 1. Le volume de ce tube est à peu près 30 cm^3.

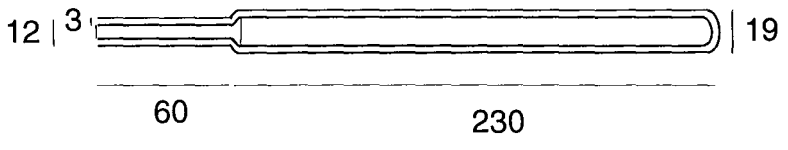

Figure 1 : Schéma d'un Carius tube (dimensions en mm)

Cette méthode consiste à attaquer et à oxyder un échantillon à l'aide d'eau régale (HCl : HNO_3 (2:1)). Elle peut être utilisée pour divers échantillons : roche totale, sulfures, oxydes et silicates après pré-digestion en HF. La réaction se fait dans un tube scellé chauffé à 240°C pendant au moins 12 heures. Dans notre étude, cette attaque permet donc libérer le Re et l'Os contenus dans ces échantillons. Lors de cette réaction, le Re et l'Os se retrouvent alors dans leur plus haute valence, ce qui permet l'équilibre entre le spike et l'échantillon lors de l'utilisation de la dilution isotopique. La séparation d'Os est effectuée par une double distillation utilisant de l'acide sulfurique ; celle du Re est fait par chromatographie échangeuse anionique. L'illustration de la méthode est représentée sur la Figure 2.

III.A.2 Méthode

III.A.2.a. L'attaque de l'échantillon

L'analyse d'un échantillon commence par une attaque acide de l'échantillon et du traceur d'Os et de Re, qui se fait dans un bécher en téflon (Savillex®) de 60 ou 120 ml. Au départ, une pesée rigoureuse de l'échantillon et des traceurs de ^{190}Os et ^{185}Re est nécessaire pour l'analyse par dilution isotopique. Puis, l'attaque acide se fait en plusieurs étapes :

(1) on ajoute 6 cc HCl 10 N, 6 cc HF et 4.5 cc d'éthanol à la poudre 'spikée'. Le bécher fermé est placé dans une étuve à 110°C pendant au moins 12 heures. Après le refroidissement de celui-ci, la solution est évaporée sur une plaque chauffante à environ 70°C.

(2) 6 cc de HCl 12 N sont ajoutés au gâteau obtenu après séchage. Cette étape permet d'ôter toute trace de HF résiduel. Le bécher fermé est alors remis à l'étuve à 110°C pendant encore 12 heures. La solution est séchée comme précédemment.

(3) Avant la charge de l'échantillon dans le Carius tube, le gâteau obtenu est dissous avec 4 cc de HCl 12 N pour permettre son introduction dans le tube.

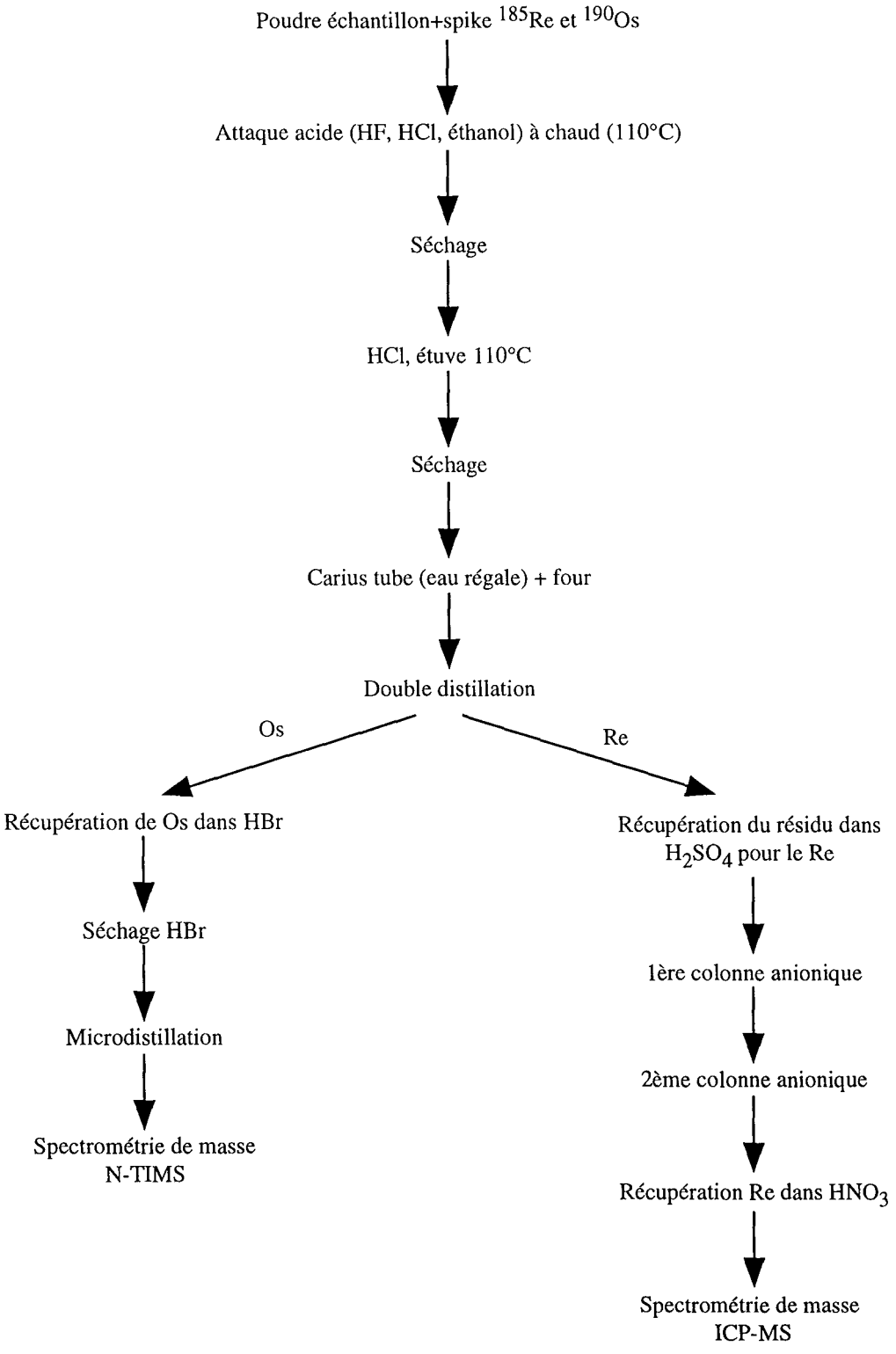

Figure 2 : Organigramme de la méthode par Carius tube selon Shirey et Walker (1995).

III.A.2.b. Carius tube

Les tubes ont été nettoyés avec une solution de Cr^{VI} dans H_2SO_4, puis avec un mélange HNO_3:H_2O sur une plaque chauffante pendant quelques jours. Ils restent dans leur bain d'acide jusqu'à leur utilisation. Ils sont ensuite rincés abondamment à l'eau bi-distillée, puis placés à l'étuve pour être séchés.

La charge de l'échantillon dans le tube se fait à froid dans un mélange éthanol/azote liquide à –110°C. L'échantillon dissous dans HCl est introduit dans le tube à l'aide d'un entonnoir en verre borosilicaté préalablement lavé dans un mélange HNO_3:H_2O, puis avec H_2O. 2 cc nitrique sont ajoutés afin d'obtenir de l'eau régale. Le col du tube est nettoyé à l'eau bidistillée. Le mélange éthanol/azote permet de réduire le pression de vapeur des réactifs et de garder piégés le Re et l'Os que les réactifs ont commencé à oxyder. Une pompe à vide manuelle est utilisée pour diminuer la pression dans le tube, créée par des gaz non condensables atmosphériques. Ceci facilite le scellage du tube et réduit les risques d'explosion du tube lors de son chauffage. Ensuite, le mélange éthanol/azote est remplacé par de l'azote liquide pur, afin de procéder au scellage du tube. Cet échange est important pour éviter des risques d'incendie liés à l'utilisation de l'éthanol. Lorsque le tube est scellé, le col du tube est alors recuit dans un petit four adapté à 560°C pendant une heure, puis refroidi progressivement jusqu'à la température ambiante. Le tube est ensuite placé à l'intérieur d'une capsule en inox dans un autre four, chauffé à 240°C pendant au moins 12 heures. Cette étape permet l'oxydation du Re et de l'Os et une bonne homogénéisation de l'échantillon avec les traceurs isotopiques d'Os et Re.

III.A.2.c. Ouverture du tube

Lorsque le tube est refroidi, il est plongé dans de l'azote liquide, et une entaille est faite sur le haut du tube à l'aide d'un couteau à verre. Il est alors ouvert à l'aide d'une pointe de verre chauffée au rouge créant ainsi un choc thermique. Le tube se casse facilement, et le contenu est extrait lorsque celui-ci est dégelé et remis dans le bécher en téflon de départ pour la suite de la chimie.

III.A.2.d. Distillation

La distillation se fait dans une vaisselle en verre borosilicaté placée sur un chauffe ballon. Comme toute vaisselle utilisée pour ces analyses, le distillateur est lavé à chaud dans un mélange HNO_3:H_2O afin d'oxyder et de vaporiser l'Os résiduel, puis rincé abondamment à l'eau bidistillée. Après la distillation, cette vaisselle est lavée à l'eau bidistillée, puis en HNO_3:H_2O. Cette distillation se fait en deux étapes : une première pour séparer le Re de l'Os, la seconde permettant de concentrer l'Os dans HBr. La distillation est similaire à celle utilisée par Shirey et Walker (1995).

III.A.2.d.1 Première étape

Le contenu du tube est versé dans le ballon du tube et de l'acide sulfurique (H_2SO_4 5N ; 30 cc) est ajouté. H_2SO_4 permet d'accroître le point d'ébullition de la solution, ceci afin de limiter la quantité de liquide distillant avec OsO_4. Auparavant, l'Os a déjà été complètement oxydé par l'eau régale dans le Carius tube. De la NaOH 6N (6 cc) est ajoutée dans le ballon récupérateur et refroidie dans de l'eau glacée. Le Re reste dans la solution de départ. Cette étape se fait à environ 130°C, supérieur à la température d'évaporation de l'Os, pendant environ 2 heures. Pour faciliter le passage de l'Os dans le condensateur, un flux d'azote gazeux est émis. A la fin de cette étape, la solution de départ ne contient presque plus d'Os et doit être purifiée pour extraire Re à l'aide de colonnes échangeuses d'anions.

III.A.2.d.2 Deuxième étape

Le ballon de départ est rincé abondamment à l'eau bidistillée pour la suite de la distillation. La solution de NaOH ayant récupéré l'Os lors de la première partie est transférée dans le ballon de départ. Une solution de Cr^{VI} (3 cc) et de H_2SO_4 20N (12 cc) y est ajoutée, permettant ainsi une oxydation complète de l'Os. Le ballon de récupération contient de l'HBr 9N (2cc) pour recueillir l'Os. Une nette augmentation de volume est observée, diminuant ainsi la normalité de l'acide. Afin de garder la capacité réductrice de l'HBr, la normalité de l'acide doit être >3N. Il faut alors éviter de récupérer plus du double du volume de départ. La température est à peu près la même que pour l'étape précédente (environ 130°C), et dure environ 1 heure.

La solution de HBr contenant l'Os, transvasée dans un petit bécher en téflon, est placée à l'étuve (100°C) pendant une nuit afin de réduire l'Os en une espèce non volatile ($OsBr_6^-$). La solution est ensuite séchée afin de procéder à la microdistillation selon Roy Barman (1993) (cf. § III.B.2.d).

III.A.2.e. Colonnes de Re

La solution résiduelle contenant le Re est purifiée à travers deux colonnes échangeuses d'anions (Tableau 4). Elle est préalablement centrifugée pour ôter tous les précipités. Le surnageant est passé à travers 1 ml de résine anionique (AG-1X8, 200-400 mesh) et élué. Un deuxième passage sur colonne est nécessaire pour une purification quasi-totale. A l'issue de ces passages, le Re peut être analysé, soit au N-TIMS, soit à l'ICP-MS.

Tableau 4 : Etapes des colonnes anioniques pour la purification de Re

1ère colonne	2ème colonne
Résine : 1 cc	Résine : 0.25 cc
H_2O : rinçage de la colonne	H_2O : rinçage de la colonne
HNO_3 0.8N (2.5 cc)	HNO_3 8N
HNO_3 4N (25 cc)	HNO_3 0.1N
H_2SO_4 2.5N (5 cc)	Echantillon dissous dans HNO_3 0.1N
H_2SO_4 5N (2.5 cc)	HNO_3 0.1N
Charge de l'échantillon	HNO_3 0.1N
HCl 1N (2.5 cc)	HNO_3 0.1N
HCl 1N (7.5 cc)	HNO_3 0.1N
HNO_3 0.8N (2.5 cc)	
Elution HNO_3 4N (4 cc)	
Elution HNO_3 4N (10 cc)	Élution dans HNO_3 8N (5 cc)
Séchage	Séchage de la solution

III.B. 'La méthode de Paris' (Birck *et al.*, 1997)

III.B.1 Principe de la méthode

De conception différente de la méthode par Carius tube, la méthode de Paris utilise une extraction liquide-liquide, que ce soit pour l'Os (avec Br_2) ou le Re (liquide organique). Étant donné que OsO_4 est très soluble dans du brome liquide (Br_2), il peut se réduire en $Os(Br_6)^{2-}$ quand HBr est présent dans la solution (Birck et al., 1997). Le Re est en général sous la forme la plus oxydée (+VIII) ReO_4^-. La chimie totale d'extraction de l'Os et du Re est composée de 5 étapes distinctes.

Les échantillons analysés par cette méthode sont de nature variée : sédiments, roches, sols, avec des concentrations en Os avoisinant celle de la croûte continentale supérieure moyenne (<50 ppt). La méthode est schématisée sur la Figure 3.

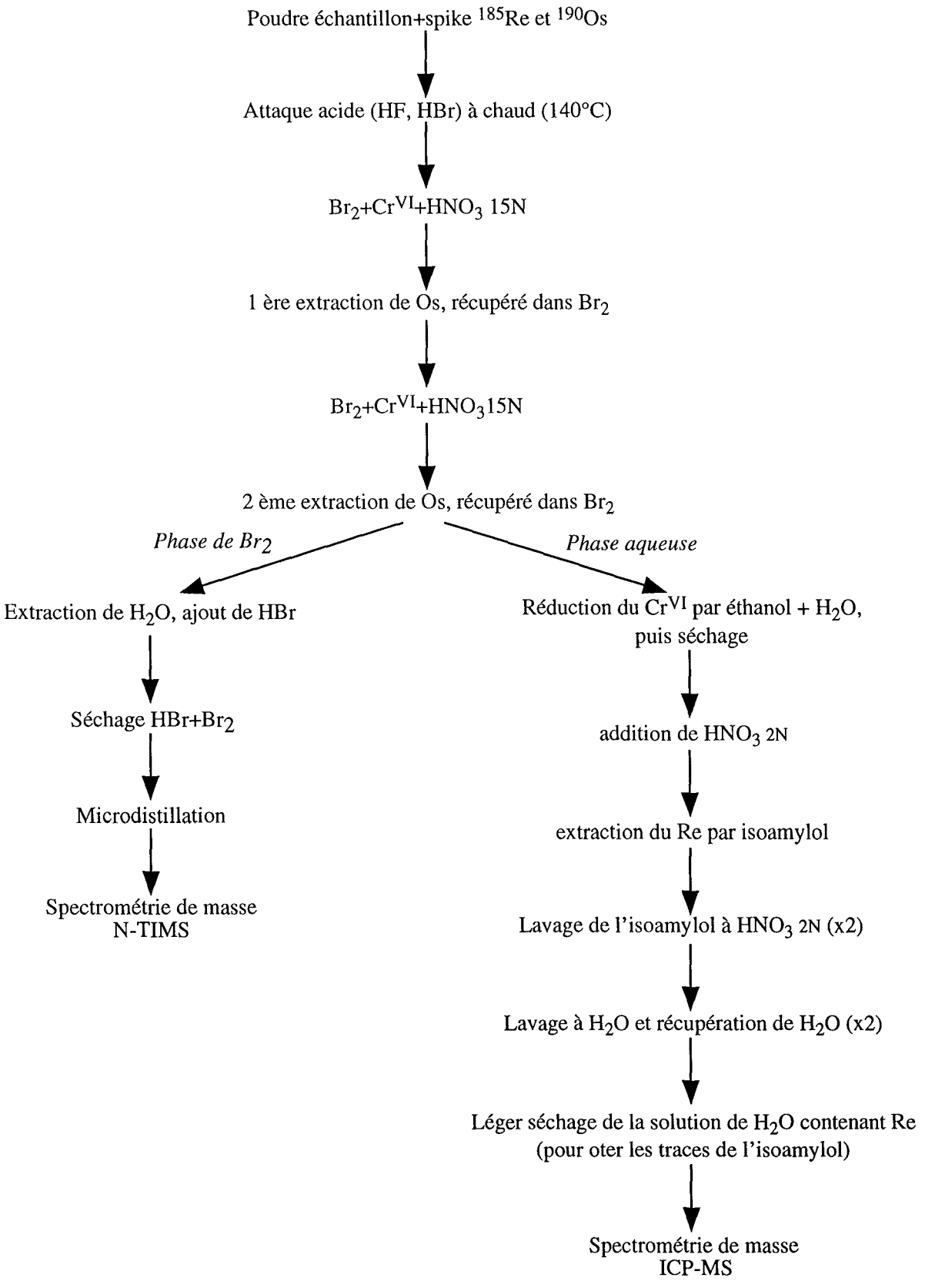

Figure 3 : Organigramme de la méthode de Paris

III.B.2 Étapes de la chimie de Paris (Figure 3)

III.B.2.a. L'attaque acide de l'échantillon

En général, la masse d'échantillon utilisée varie entre 1 et 3 grammes. L'attaque consiste à mélanger l'échantillon et les traceurs isotopiques de ^{190}Os et ^{185}Re pesés précisément dans un bécher de 60 cc ou 120 cc en téflon Savillex® PFA, et à ajouter de l'acide fluorhydrique (12 cc HF concentré) pour dissoudre toute la matrice silicatée. L'acide bromhydrique est aussi ajouté (1.5 cc HBr 9N) pour maintenir un milieu réducteur empêchant la formation de l'espèce volatile OsO_4. A cette étape, l'Os peut se trouver sous la forme $Os(Br)_6^{2-}$. Le bécher bien fermé est mis à l'étuve à 145°C pendant au moins 24 heures. Après ce passage à l'étuve, l'échantillon est refroidi et prêt pour l'étape suivante.

III.B.2.b. Préparation à l'extraction de l'osmium

1 cc de Br_2, 1.5 cc HNO_3 concentré et 2.5 cc d'une solution de CrO_3 (40%) dans HNO_3 8N sont rajoutés à l'attaque. La présence de Cr^{VI} permet l'oxydation de l'Os en OsO_4, ainsi que celle de HBr en Br_2. Le bécher est à nouveau fermé et mis sur une plaque chauffante à une température permettant l'ébullition du Br_2, à environ 80°C. Les béchers sont laissés environ 3 heures sur la plaque à partir de l'ébullition. Cette étape permet l'oxydation de l'Os dans son plus haut degré d'oxydation (OsO_4). L'ébullition de Br_2 permet la capture de l'Os de la solution aqueuse, tandis que le Re reste dans la phase aqueuse. Après ébullition, les échantillons sont refroidis dans un réfrigérateur. Un test positif au peroxyde d'hydrogène (légère ébullition et virage de couleur au violet) permet de savoir si le CrO_3 reste en excès dans la solution. Si le test est négatif (sans réaction), le milieu n'est pas assez oxydant et du Cr^{VI} doit être rajouté et l'étape d'ébullition doit être refaite.

III.B.2.c. Extraction de l'osmium

Le brome contenant l'Os est extrait de la solution et mis dans un bécher contenant de l'eau distillée pour éviter qu'il ne s'évapore. Puis 1 cc de Br_2 supplémentaire est ajouté à la solution. Le bécher est ensuite fermé et remis sur la plaque chauffante pour une nouvelle ébullition. Cette étape dure environ une heure. Le bécher est refroidi, puis le brome est pipeté et mis dans le bécher contenant déjà le brome de la première partie. L'eau recouvrant le brome est ôtée et jetée, et 0.5 cc de HBr 9N sont rajoutés pour éviter de perdre l'Os. La solution est ensuite évaporée, afin d'effectuer la microdistillation (III.B.2.d). L'Os se trouve alors sous la forme $OsBr_6^{2-}$.

III.B.2.d. La microdistillation (Roy Barman, 1993)

Le principe de la microdistillation est schématisé sur la Figure 4. Cette étape permet de séparer l'Os et les dernières traces de Re qui restent piégées dans le chrome. Lorsque la solution est totalement évaporée, elle est recouverte d'une goutte de solution de CrO_3 dans H_2SO_4 12N. Une demi-goutte (20 µl) de HBr distillé est mise dans le fond du bécher conique. Le bécher conique est fermé délicatement pour éviter la chute de la goutte de HBr. La présence de CrO_3 permet l'oxydation de $OsBr_6^{2-}$ en OsO_4 qui se concentre dans le goutte de HBr. Le bécher est entouré de papier aluminium permettant ainsi que la condensation contenant l'Os se réduise à la goutte de HBr. Il est posé sur une plaque chauffante à environ 80°C pendant 3 heures. Le bécher est ensuite ouvert et la goutte de HBr contenant l'Os est évaporée jusqu'à la microgoutte. L'Os est alors prêt pour l'analyse spectromètre de masse.

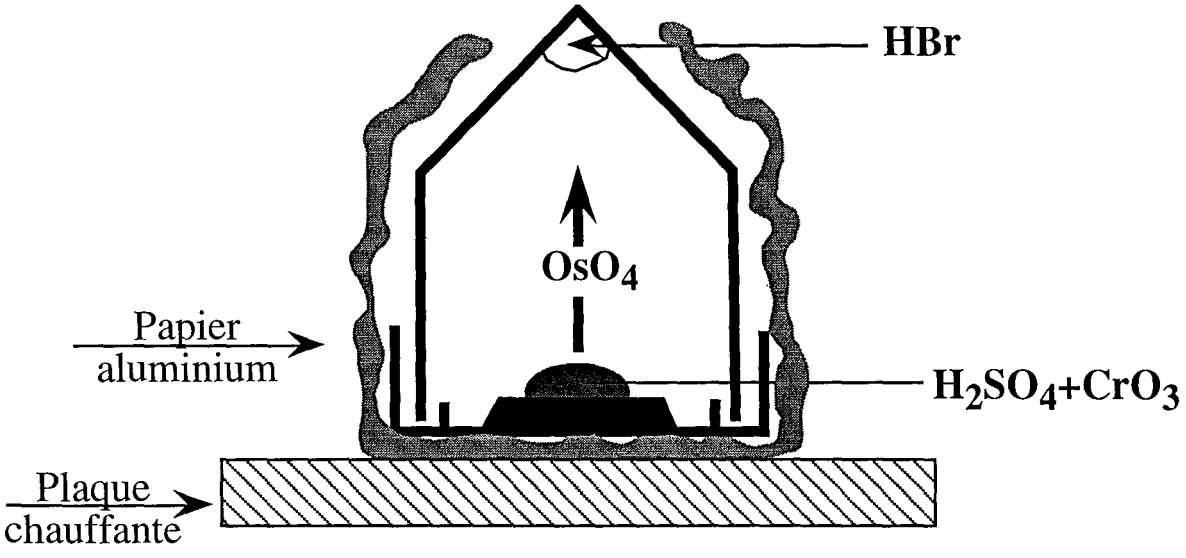

Figure 4 : Microdistillation selon la méthode de Roy Barman (1993)

III.B.2.e. Extraction et la purification du rhénium

La phase aqueuse laissée après l'extraction de l'Os contient le Re de l'échantillon. Etant donné que le chrome est sous forme oxydée, l'éthanol (0.5 cc) mélangé à de l'eau distillée est utilisé pour le réduire. La solution vire donc d'une couleur rouge à la couleur vert ou bleu (Cr^{3+}). La solution est alors évaporée totalement sur plaque chauffante. Le résidu est ensuite dissous dans 3 cc de HNO_3 2N et puis transféré dans un tube à centrifuger (n°1). 2 cc d'isoamylol (3-methyl-1-butanol) sont ajoutés dans ce tube. Le tube est secoué énergiquement et centrifugé. Le Re réparti largement dans la phase organique (le surnageant) est transféré dans un autre tube à centrifuger (n°2). L'isoamylol ainsi récupéré est nettoyé avec HNO_3 2N (deux fois avec 1 cc). L'acide

nitrique est à chaque fois jeté. Le Re est extrait de l'isoamylol en le lavant simplement avec de l'eau (deux fois avec 2 cc d'eau). L'eau est récupérée dans un bécher et elle est alors prête pour l'analyse au spectromètre de masse (N-TIMS ou ICP-MS).

III.C. Lessivage selon Pegram et al. (1992)

La technique de lessivage repose sur la méthode présentée par Pegram *et al.* (1994, 1992). C'est en fait un lavage de l'échantillon avec un mélange de H_2O_2-H_2SO_4 afin de séparer la composante lessivable, appelée dans ce cas composante 'hydrogenous' (dérivé de l'eau) (Kyte *et al.*, 1993). Cette technique permet de déterminer la composition isotopique en Os et la concentration en Os et Re de la fraction échangeable. La taille des échantillons analysés par cette méthode est identique à celle utilisée dans les autres méthodes, entre 1 et 3 grammes en général. A cette poudre d'échantillon sont ajoutés les traceurs de Re et d'Os, puis environ 15 cc de solution de lessivage ('leaching solution'), le tout dans un bécher en téflon. La solution de lessivage est composée de 20% H_2O_2 (30%), 78% de H_2O et 2% de H_2SO_4 concentré. L'échantillon en solution est passé aux ultrasons pendant environ 30 minutes, puis il est laissé au repos à température ambiante pendant une nuit. Après centrifugation de la solution, le surnageant est placé dans un ballon de distillation. Afin de décomposer H_2O_2 dans le ballon de départ, il est chauffé à une température modérée. Une partie de la solution (20%) servira par la suite à la séparation du Re par colonne échangeuse d'ions. La suite de la distillation se fait en deux parties. D'abord, après avoir rajouté du Cr, l'Os est distillé et récupéré dans H_2O_2 (5%). Ensuite, il est distillé à partir de H_2O_2 vers HBr.

IV. Comparaison des méthodes utilisées

La méthode utilisée dans cette étude est la méthode développée par Birck *et al.* (1997). Bien entendu, cette méthode récente a due être validée par rapport à la méthode déjà en routine dans le laboratoire, qui était la méthode dite par Carius Tube.

IV.A. Reproductibilité

Les analyses d'Os sont bien reproductibles par la méthode de Paris comme le montre le tableau ci-dessus. La plupart des échantillons voit leur composition isotopique et leur concentration en Os varier entre 0 et 2.5% pour la composition isotopique et entre 0.4 et 4% pour la concentration en Os, excepté deux échantillons ayant une différence d'environ 9% sur la composition. Cette

grande différence pourrait peut être avoir plusieurs explications possibles, soit analytiques (pollution par les réactifs), soit réelles (effet pépite). Les concentrations en Os sont reproductibles les unes par rapport aux autres suggérant ainsi un bon mélange entre l'échantillon et les traceurs isotopiques, avant toute perte potentielle d'Os.

Tableau 5: Concentration et composition isotopique de différents échantillons dupliqués par la méthode de Paris et /ou par Carius tube

Echantillon	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (ppt)	Méthode
NAG 20	0.929 ± 0.003	29.8	Paris
NAG 20	0.938 ± 0.003	29.7	Paris
NAG 48	3.776 ±0.023	20.4	C.T.
NAG 48	3.764 ± 0.018	20.2	Paris
TSS B.S.	0.689 ± 0.005	84.2	Paris
TSS B.S.	0.686 ± 0.003	87.2	Paris
LA 194	0.599 ± 0.002	196.6	Paris
LA 194	0.600 ± 0.002	194.8	Paris
NL 58	1.080 ± 0.004	52.3	Paris
NL 58	1.103 ± 0.002	52.9	Paris
NAG 44	2.651 ± 0.012	22.6	C.T.
NAG 44	2.913 ± 0.007	23.6	Paris
MO 109	1.346 ± 0.007	6.7	Paris
MO 109	1.314 ± 0.019	6.9	Paris
NAG 6	3.429±0.006	29.1	Paris
NAG 6	3.749±0.010	26.2	Paris
NL 1 #1	5.241±0.055	525.1	C.T.
NL 1 #2	5.230±0.017	527.7	Paris
NL 1 #3	5.253±0.022	466.8	Paris
NL 1 #4	5.241±0.012	463.2	Paris

Afin de tester la méthode de Paris sur un schiste noir, l'échantillon NL 1 a été analysé trois fois au total par la méthode de Paris et une fois par la méthode de Carius tube, sur une période de deux ans. NL 1#1 et NL 1#2 sont issus de la même poudre. NL 1#3 et NL 1#4 proviennent d'une autre poudre du même échantillon. Comme les résultats obtenus sur une même poudre, par deux méthodes différentes (#1 et #2), sont similaires, la méthode de Paris sera utilisable et utilisée pour l'analyse de schiste noir. Elle est aussi reproductible sur une même poudre (#3 et #4). La

différence de concentrations en Os des deux poudres tend à désigner plus un effet 'pépite' qu'un problème de procédure analytique.

IV.B. Rendements et blancs

Le blanc de la procédure correspond à une chimie sans échantillon. Il permet de connaître la quantité d'Os et de Re, ainsi que la signature isotopique d'Os, dans les réactifs utilisés. Les blancs atteints lors de l'utilisation de la méthode par Carius tube étaient d'environ 5 pg avec un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de 0.28, pour une chimie prenant 3-5 g d'échantillon. Comparés à ces derniers, les blancs obtenus par la méthode de Birck et al. (1997) sont plus faibles, donc plus appropriés aux échantillons analysés dans cette étude. Ces blancs sont restés faibles et tendent à diminuer dans le temps depuis 2 ans. Sur cette période, 16 blancs ont été analysés, passant de 0.45 à 0.10 pg. La moyenne de ces blancs sur cette période est 0.30±0.15 pg avec un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de 0.61±0.25. Les blancs de Re sont plus élevés et plus dispersés que ceux d'Os. Une moyenne de ces blancs, stables, est de 35± 16 pg. Il semble que la variabilité des blancs de Re soit fortement dépendante des lots de Cr^{VI} utilisé. Les blancs déterminent la masse d'échantillon à prendre pour l'analyse de Re et d'Os. Afin d'avoir un blanc d'Os inférieur à 1% par rapport à la concentration totale de l'échantillon, une masse arbitraire de 1 à 2 g minimum est requise, pour la plupart des échantillons.

Les rendements de la procédure chimique totale sont élevés. Ils varient entre 75 et 88 % pour l'Os, tandis que ceux du Re sont légèrement plus faibles, variant entre 60% et 75%.

V. La spectrométrie de masse

La spectrométrie de masse permet de mesurer des variations isotopiques naturelles liées à des fractionnements isotopiques ou à des enrichissements isotopiques suite à des décroissances radioactives. Elle permet aussi de mesurer des concentrations très précises par dilution isotopique.

V.A. Les mesures d'Os par thermo-ionisation

Un spectromètre de masse est constitué de différentes parties :

a) Une *source* d'ions où a lieu la formation des ions à partir d'un échantillon (dans une chambre d'ionisation). Pour les solides inorganiques, on utilise la thermo-ionisation. L'échantillon est déposé sur un filament qui est chauffé, entraînant la vaporisation et l'ionisation de

molécules, d'où la formation et l'émission d'ions. Dans le cas du système Os-Re, les échantillons sont déposés sur un filament de Pt. Après formation, les ions sont accélérés par une tension de 10 kV.

b) Un *analyseur* qui sépare les ions suivant le rapport M/Z : l'ion subit l'action simultanée de la force magnétique et de la force centrifuge,

c) Un *détecteur* qui donne l'intensité du faisceau ionique correspondant à chaque espèce. Les ions séparés par l'analyseur arrivent au collecteur où ils sont détectés. Les détecteurs peuvent être une *cage de Faraday* (collecteur simple prenant en compte le déplacement des ions dans un faisceau intense), ou un *multiplicateur d'électrons secondaires* (réagissant à l'impact des ions).

d) Une électronique pour alimenter les différents éléments,

e) Plusieurs systèmes de pompage.

f) un ordinateur pour l'acquisition automatique des données.

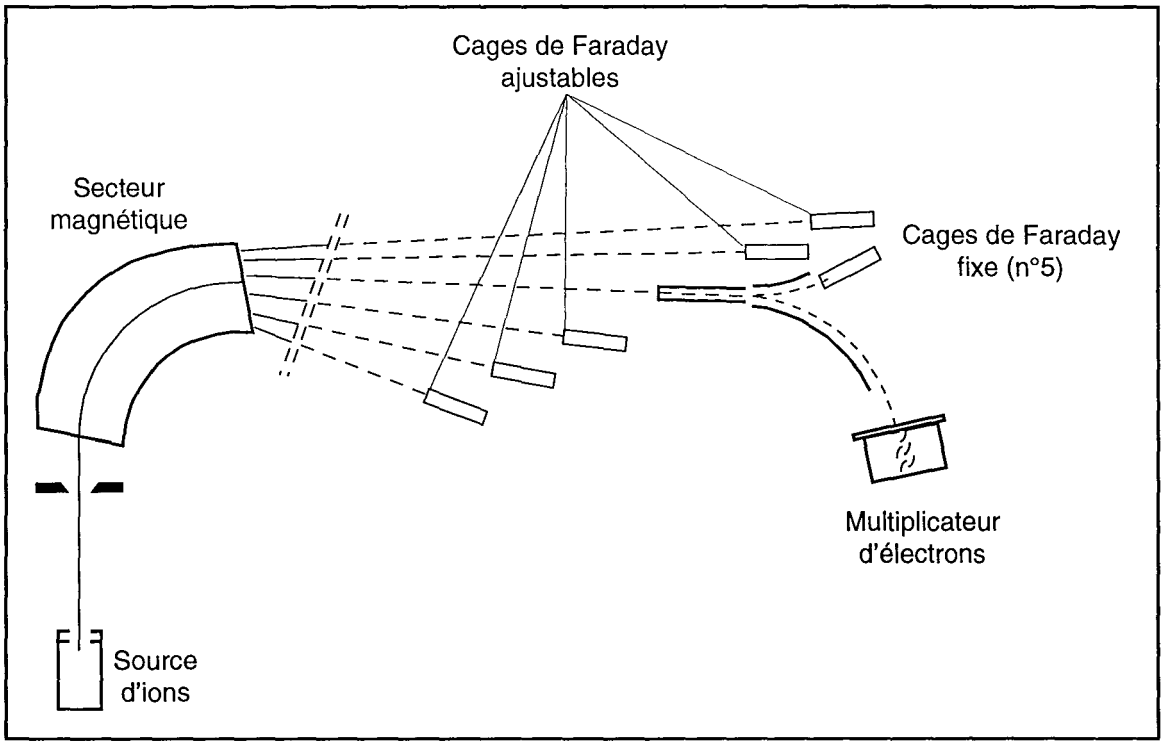

Figure 5 : Schéma du spectromètre de masse Finnigan MAT 262

Le Finnigan MAT 262 du CRPG (Figure 5, Figure 6) est muni d'un multiplicateur d'électrons et de 6 cages de Faraday en multi-collection, et est capable de mesurer des ions positifs ou négatifs. Pour le cas de l'Os et du Re, le spectromètre Finnigan MAT 262 sera utilisé en mode négatif, utilisant le multiplicateur d'électrons.

La méthode d'analyse par spectrométrie de masse est directement dérivée de Creaser *et al.* (1991) et Völkening *et al.* (1991). Etant donné le potentiel d'ionisation très élevé de l'Os métal (8.7 eV) et du Re (7.9 eV), les analyses par TIMS (Spectrométrie de masse à thermoionisation d'ions atomiques positifs) est impossible (Walker et Fassett, 1986). Il faut donc opter pour une mesure d'ions moléculaires négatifs. N-TIMS permet d'obtenir un meilleur rendement d'ionisation et donc une meilleure précision que toutes les méthodes (SIMS, RIMS, ICPMS) utilisant des ions positifs.

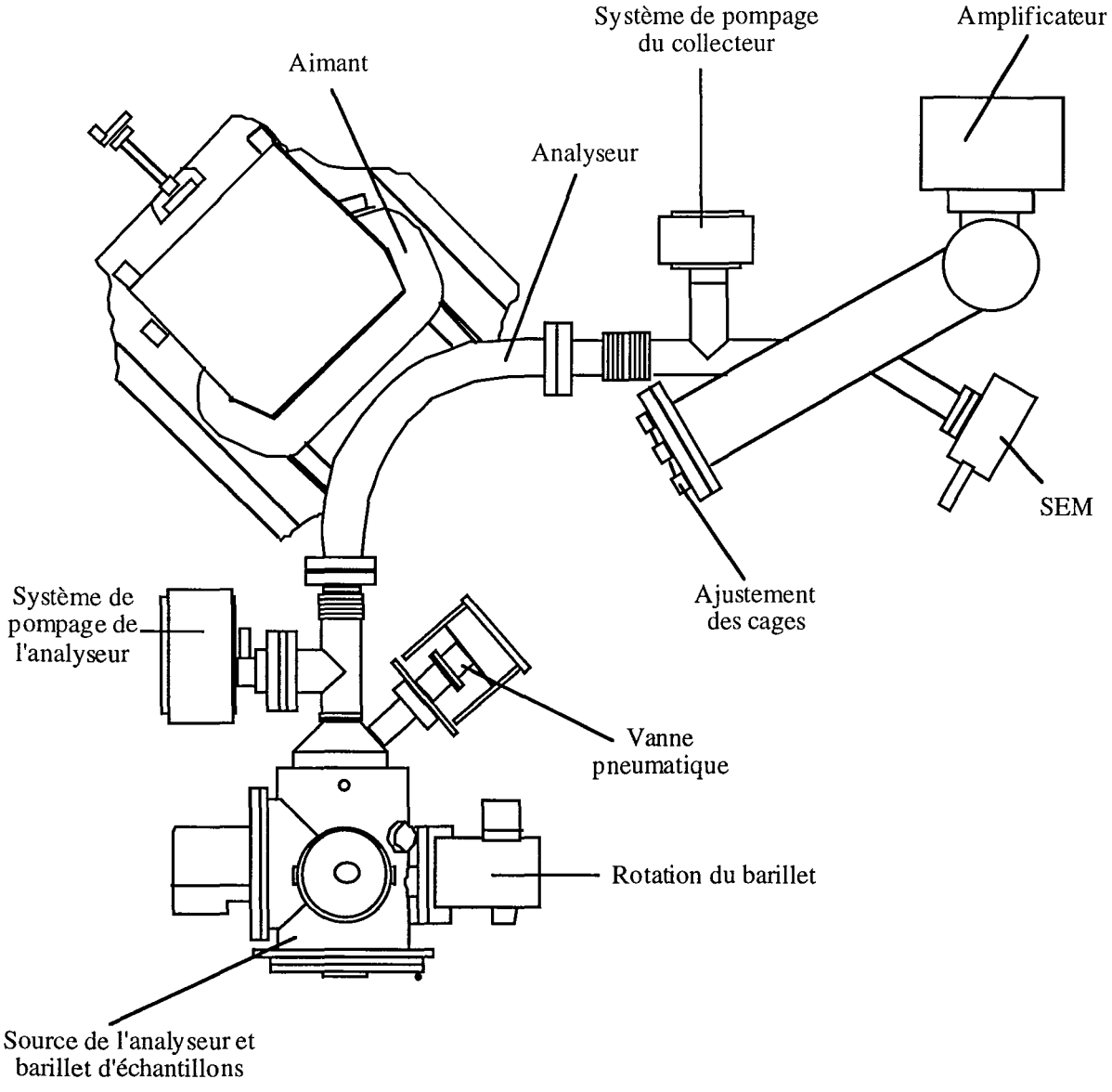

Figure 6 : Dessin du spectromètre de masse Finnigan MAT 262 (TIMS), d'après la documentation Finnigan.

V.A.1 Les mesures d'Os

Les dépôts d'Os se font sur des filaments de Pt très purs (99.999%, H. Cross Co.). La solution de HBr contenant l'Os à la suite de la microdistillation est directement déposée sur le filament préalablement dégazé sous vide (pour la méthode de Shirey et Walker (1995)) ou à l'air (à 2 A pendant 2 minutes), d'après les suggestions de Birck *et al.* (1997). Ce dépôt est ensuite recouvert par un sel de barium, en solution dans NaOH ou dans HNO_3. La présence de Ba réduit la fonction de travail des électrons du filament de Pt et promeut ainsi la production d'ions négatifs, ainsi que la formation des espèces oxydes (Creaser *et al.*, 1991). L'émission d'oxydes d'Os chargés négativement se fait entre 650 et 850°C (Creaser *et al.*, 1991). Le filament est alors placé sur le barillet en faisant attention qu'il soit bien placé dans la fente de la plaque et en position parallèle à cette même plaque afin qu'une plus grande partie des ions extraits aille directement dans le secteur électromagnétique.

Le filament est chauffé lentement jusqu'à une couleur rouge sombre. Afin d'améliorer le signal des ions, de l'oxygène est ajouté directement dans la source jusqu'à une pression de $2x10^{-7}$ torr dans celle-ci. Les espèces moléculaires dominantes pour le Re et l'Os sont respectivement ReO_4^- et OsO_3^-, tandis que OsO_4^- et ReO_3^- sont en plus faible proportion (Creaser *et al.*, 1991). Cette spéciation contrastée diminue énormément l'interférence isobarique entre $^{187}OsO_3$ et $^{187}ReO_3$.

Les rapports isotopiques d'Os ont été mesurés aux masses 240 ($^{192}OsO_3^-$), 238 ($^{190}OsO_3^-$), 237 ($^{189}OsO_3^-$), 236 ($^{188}OsO_3^-$), 235 ($^{187}OsO_3^-$) avec un bruit de fond mesuré entre les masses (233 et 234). Les masses 234 ($^{186}OsO_3^-$) et 232 ($^{184}OsO_3^-$) n'ont pas été mesurées. Par contre, la masse 233 est toujours mesurée lors d'une analyse afin de vérifier une interférence potentielle de ReO_3. Mais cette masse ne représente pas forcément l'interférence due au Re. Il est donc impossible de corriger la valeur du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ pour la contribution du Re. La solution la plus simple et la plus fiable est d'avoir un rapport $^{185}Os/^{188}Os$ mesuré le plus faible possible. Enfin, les rapports d'oxydes ont été corrigés du fractionnement de masse grâce au rapport $^{192}Os/^{188}Os$ (rapport de masse 240/236) qui est égal à 3.08271 en utilisant une loi puissance ; cette valeur est générée par la valeur mesurée par Nier (1937) et par la valeur précise de la composition isotopique d'oxygène (Nier, 1950 : $^{17}O/^{16}O$=0.0003708 et $^{18}O/^{16}O$=0.002085).

V.A.2 Les corrections apportées aux analyses

Les valeurs obtenues au spectromètre de masse doivent subir diverses corrections, au nombre de trois corrections successives.

(1) La première correction est celle des isotopes d'oxygène sur les isotopes d'Os. L'abondance de $^{186}Os^{16}O_3^-$ (masse 234) est estimée, mais pas mesurée, à partir de la masse 235

($^{186}Os^{16}O_2{}^{17}O^- + {}^{187}Os^{16}O_3^-$) et 236 ($^{186}Os^{16}O_2{}^{18}O^- + {}^{187}Os^{16}O_2{}^{17}O^- + {}^{188}Os^{16}O_3^-$). De plus, on suppose que le rapport naturel $^{188}Os/^{186}Os$ est de 8.30910 (Luck et Allègre, 1983). L'équation suivante permet d'estimer l'intensité de la masse 234 ($^{186}Os^{16}O_3^-$) :

$$^{186}Os^{16}O_3^- = \frac{(masse236)_M - (masse235)_M * 3 * \frac{^{17}O}{^{18}O}}{\left(\frac{^{188}Os}{^{186}Os}\right)_R + 3 * \frac{^{18}O}{^{16}O} - 9 * \left(\frac{^{17}O}{^{16}O}\right)^2}$$

où M représente les intensités mesurées aux masses 236 et 235 et R le rapport $^{188}Os/^{186}Os$ réel. Les valeurs des rapports $^{17}O/^{16}O$ et $^{18}O/^{16}O$ sont respectivement 0.0003708 et 0.002045 (valeurs données dans Creaser *et al.* (1991), d'après Nier (1950)). Les intensités des autres pics sont plus facilement corrigées. Les corrections des autres pics sont montrées dans les équations suivantes :

$$\left(^{187}Os^{16}O_3^-\right) = (masse235)_M - \left(^{186}Os^{16}O_3^-\right)_R * 3 * \frac{^{17}O}{^{16}O}$$

$$\left(^{188}Os^{16}O_3^-\right) = (masse236)_M - \left(^{187}Os^{16}O_3^-\right)_R * 3 * \frac{^{17}O}{^{16}O} - \left(^{186}Os^{16}O_3^-\right)_R * 3 * \frac{^{18}O}{^{16}O}$$

$$\left(^{189}Os^{16}O_3^-\right) = (masse237)_M - \left(^{188}Os^{16}O_3^-\right)_R * 3 * \frac{^{17}O}{^{16}O} - \left(^{187}Os^{16}O_3^-\right)_R * 3 * \frac{^{18}O}{^{16}O}$$

$$\left(^{190}Os^{16}O_3^-\right) = (masse238)_M - \left(^{189}Os^{16}O_3^-\right)_R * 3 * \frac{^{17}O}{^{16}O} - \left(^{188}Os^{16}O_3^-\right)_R * 3 * \frac{^{18}O}{^{16}O}$$

$$\left(^{192}Os^{16}O_3^-\right) = (masse240)_M - \left(^{190}Os^{16}O_3^-\right)_R * 3 * \frac{^{17}O}{^{16}O}$$

où M représente l'intensité mesurée et R l'intensité réelle. Les termes de deuxième ordre (*e.g.* Os $^{16}O^{18}O_2$, Os $^{16}O^{17}O^{18}O$, etc) sont ignorés à cause de leur faible importance.

(2) La deuxième correction est celle du fractionnement de masse. Une correction du fractionnement de masse est appliquée aux données d'Os en normalisant le rapport $^{192}Os/^{188}Os$ mesuré à 3.08271 (Luck et Allègre, 1983). Une loi puissance est utilisée pour effectuer cette correction aux rapports individuels à chaque mesure. L'équation suivante montre la loi puissance utilisée pour normaliser le rapport $^{187}Os/^{188}Os$.

$$\frac{\left(^{187}Os/^{188}Os\right)_M}{\left(^{187}Os/^{188}Os\right)_R} = \left[\frac{\left(^{192}Os/^{188}Os\right)_M}{\left(^{192}Os/^{188}Os\right)_R}\right]^{\left(\frac{187-188}{192-188}\right)}$$

où M est le rapport mesuré et R le rapport réel.

(3) La troisième correction est celle de la contribution du traceur isotopique. La solution du traceur isotopique d'Os est enrichie à plus de 96% en ^{190}Os. Mais les traces des autres isotopes causent des rapports isotopiques d'Os du mélange traceur-échantillon différent de la réalité. Les corrections de cet effet ont été faites en utilisant la composition du spike donnée dans le Tableau 2. Les concentrations d'Os ont été calculées à partir du rapport ^{192}Os/^{190}Os.

V.A.3 Les standards d'osmium

Les standards sont passés à chaque début de session de mesures d'Os pendant au moins 5 blocs de 10 mesures. Les concentrations de standards peuvent varier selon les échantillons à passer par la suite. En tous les cas, des standards de 1 ng d'Os sont toujours passés pour régler les pics. Par la suite des standards de 500 pg, 12 pg, 0.6 pg sont mesurés pour voir la stabilité des réglages et la reproductibilité interne des différents standards. Les standards sont préparés dans une solution de HCl 6N. Les dépôts se font comme pour les échantillons. Le rapport isotopique du standard d'Os a une valeur moyenne de 0.17384±0.00042 sur une période de 3 ans pour toutes les tailles de standard (Figure 7).

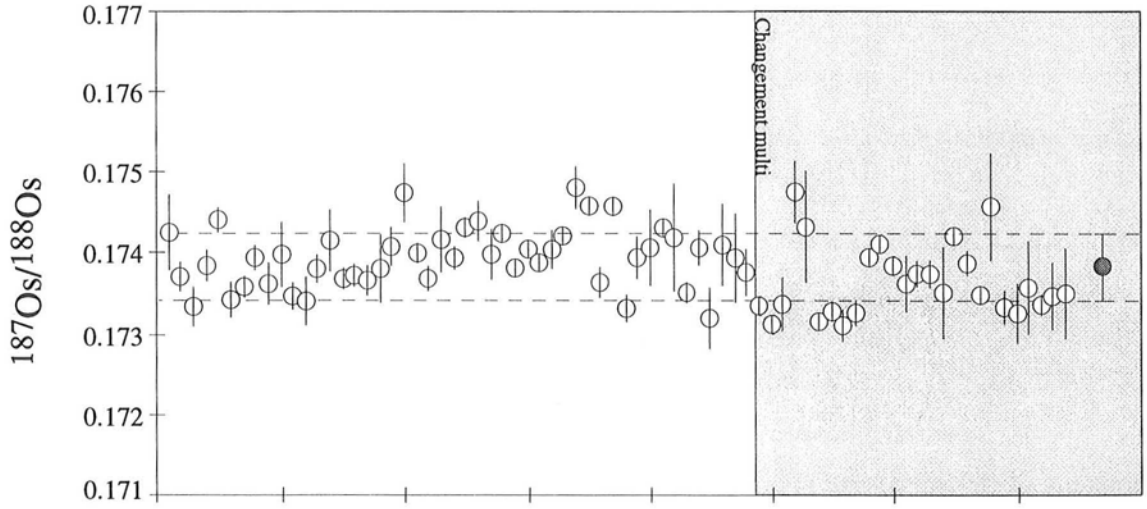

Figure 7 : Variation de ^{187}Os/^{188}Os du standard d'Os sur une période de 3 ans. Les barres d'erreur sur les rapports représentent $2\sigma_m$. Le rond gris représente la moyenne de tous les standards passés avec l'écart-type en barre d'erreur. Le domaine grisé montre les standards analysés après le changement du multiplicateur d'électrons (changement d'un multi Phillips à ETP).

V.B. Les analyses de Re par ICPMS

Les analyses de Re ont été faites sur le Finnigan MAT 262 au début de cette étude. Mais l'instabilité du rapport nous a conduit à l'analyser sur un ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) (Perkin Elmer, Elan 6000). Cette instabilité est à relier à l'utilisation de filaments de Re lors d'autres analyses isotopiques laissant une pollution dans la source du spectromètre risquant ainsi de fausser les résultats, ainsi que la présence de traces de Re dans les filaments de Pt. Les analyses par ICP-MS sont plus rapides, mais parfois moins précises. Le standard peut être variable d'une séance à l'autre, mais il reste stable durant la même séance (Figure 8).

Un ICP-MS est formé d'une partie ICP, qui tient lieu de source, et d'une partie spectrométrie de masse (quadrupôle). La partie ICP est constituée d'un système d'introduction des échantillons (le nébuliseur), d'une torche à plasma (ICP proprement dite), d'un générateur de hautes fréquences, et d'optiques de transfert. Ensuite, le spectromètre de masse sépare les éléments, générés par cette source. L'avantage premier d'un ICP-Ms est son grand pouvoir d'ionisation des éléments, de part la température élevée qui règne dans le plasma d'argon.

V.B.1 Les mesures de Re

L'échantillon est dans une solution aqueuse et il a été préalablement purifié en chimie. Il est introduit dans la torche grâce à une pompe péristaltique. La solution est ensuite transformée en aérosol par un nébuliseur, ce qui facilite le transport de l'échantillon dans la torche. Puis, il est entraîné dans la torche ICP par un flux d'argon où il est ionisé à plus de 6000°C à pression atmosphérique. Cette torche ICP est produite par l'interaction des hautes fréquences dans une bobine d'induction générées par un champ magnétique variable et des particules chargées. Le chauffage induit est de l'ordre de 6000 à 10000 K. L'échantillon sous forme d'aérosol est introduit le long d'un tunnel central où il est volatilisé, atomisé et ionisé. Le spectromètre de masse est matérialisé par une cellule quadrupôle, qui joue le rôle de séparateur des éléments selon le rapport masse/charge. Le détecteur est un multiplicateur d'électrons.

Afin d'obtenir les concentrations de Re par dilution isotopique, une solution enrichie en traceur en ^{185}Re est rajoutée. Les concentrations sont calculées à partir du rapport $^{187}Re/^{185}Re$. La procédure d'analyse est la même pour les échantillons et les standards. La plupart des analyses présentées dans cette étude ont été faites par ICP-MS. Le Re est mesuré sous forme Re^+, tandis que par N-TIMS, il est mesuré sous forme ReO_4^-. Afin de corriger du fractionnement instrumental des isotopes de Re, des standards de Re ont été analysés au début et à la fin de chaque session de

ICP-MS, ainsi que tous les quatre échantillons. Le rapport $^{187}Re/^{185}Re$ de ce standard est utilisé pour calculer un facteur de correction appliqué à toutes les mesures isotopiques de Re. Le facteur de correction est en fait un facteur de discrimination de masse (FDM), calculé à partir de la moyenne des valeurs journalières du standard. Il s'écrit sous la forme suivante :

$$FDM = 1.667/\left(^{187}\mathrm{Re}/^{185}\mathrm{Re}\right)_{std}$$

Le rapport $^{187}Re/^{185}Re$ de l'échantillon est multiplié par le facteur de discrimination de masse pour obtenir le rapport corrigé de l'échantillon utilisé dans l'équation de dilution isotopique pour calculer les concentrations de Re. Cette méthode de calcul est similaire à celle de Luck (1982). Chaque analyse comprend 81 mesures de $^{187}Re/^{185}Re$, à partir desquelles on obtient un rapport $^{187}Re/^{185}Re$ moyen. La précision de ces rapports, basée sur la statistique de comptage, varie entre 0.15% et 1.31% pour les rapports mesurés ($2\sigma_m$).

V.B.2 Reproductibilité des mesures des standards de Re

Les mesures présentées dans ce manuscrit ont été réalisées avec un ICP-MS, Perkin-Elmer, Elan 6000. Les mesures des rapports de standards varie entre 1.654 et 1.728 (Figure 8). La moyenne et l'écart type de la population (n=108, 1σ) sont respectivement 1.706 et 0.011. Le facteur de discrimination de masse moyen pour cette population de valeurs est 0.977±0.006. Pour comparaison, la valeur du standard déterminée par N-TIMS est de 1.675±0.005. La Figure 8 illustre la variation du rapport $^{187}Re/^{185}Re$ du standard de Re au cours des séances d'analyses. Le rapport du standard peut varier d'une séance à l'autre. Mais lors d'une même séance, la variation du rapport $^{187}Re/^{185}Re$ du standard, quelque soit la concentration de Re utilisée, est faible ; l'écart-type est inférieur à 0.5%.

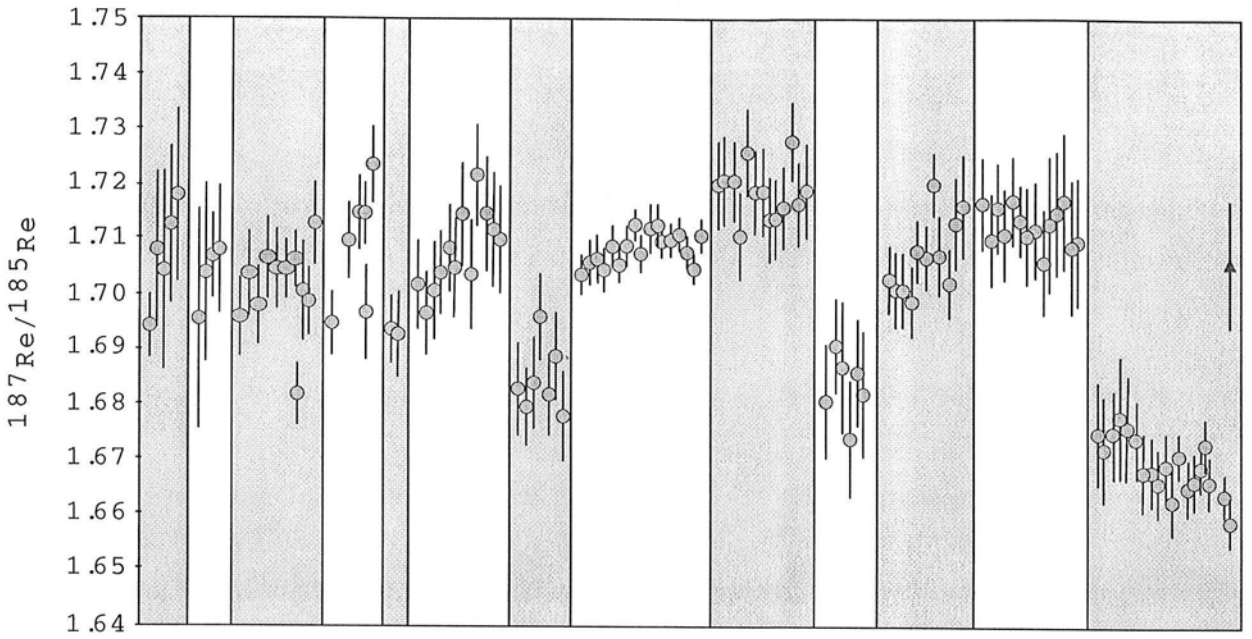

Figure 8 : Evolution du rapport $^{187}Re/^{185}Re$ du standard de Re au cours des 20 derniers mois, passé à l'ICP-MS., Perkin-Elmer Elan 6000.

Analyses de Rb-Sr et de Sm-Nd

La détermination de la composition isotopique de Sr et Nd se fait par spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS), en mode positif. Les concentrations en Sr, Nd, Sm et Rb sont déterminées par dilution isotopique. Les quatre éléments sont séparés à partir du même aliquote d'échantillon. Le protocole suivant a été utilisé pour la plupart des échantillons analysés isotopiquement.

a). La matière organique est ôtée par un passage de l'échantillon, dans un creuset de platine, au four à 600°C. Ensuite les échantillons sont décarbonatés afin d'avoir la signature terrigène du sédiment de rivière ou de mer. En effet, les carbonates de sédiments marins apporteront une signature marine à celui-ci et masquera alors la signature terrigène de cet échantillon. Cette étape consiste en une attaque à l'acide acétique 5% de l'échantillon et en un passage aux ultrasons pendant 30 à 40 minutes, puis deux lavages de l'échantillon avec de l'eau Milli-Q.

b). Les traceurs isotopiques (spikes) sont ajoutés aux échantillons : spike de ^{85}Rb, spike de ^{84}Sr et un spike double de ^{147}Sm-^{150}Nd. La dissolution de l'échantillon et des traceurs se fait dans un bécher en téflon avec de HF, HNO_3 et $HClO_4$ à chaud pendant 2 à 3 jours. Une seconde attaque se fait avec HCl 2.5N. L'échantillon est ensuite repris dans HCl 2.5N pour le passage sur les colonnes cationiques.

c). La séparation chimique se fait sur des résines échangeuses d'ions. Le Rb, le Sr et les Terres Rares légères sont séparés sur une résine anionique AG 50-X8 (100-200 mesh). Rb et Sr sont élués en HCl 2.5N, les Terres Rares en HNO_3 4.4N. Le Nd et Sm sont ensuite séparés de la fraction des Terres Rares sur de l'HDEHP absorbé sur des billes de téflon (Alibert *et al.*, 1983).

d).Les analyses isotopiques ont été effectuées sur un TIMS Finnigan MAT 262, mode positif, mode statique, en multicollection (6 cages de Faraday).

- pour le Sr : le dépôt de l'échantillon se fait sur un filament de W avec un activateur de TaF_5-H_3PO_4 (Birck, 1986). Les masse 84, 85, 86, 87 et 88 sont mesurées. La correction du fractionnement de masse est appliquée aux données de Sr en normalisant le rapport $^{86}Sr/^{88}Sr$ mesuré à 0.1194. Une loi puissance est utilisée pour effectuer cette correction aux rapports individuels à chaque mesure (Russell *et al.*, 1978). Le calcul de concentration est effectué grâce au spike de ^{84}Sr, ayant un rapport $^{84}Sr/^{88}Sr$ de 915.4 et en utilisant un rapport naturel de 0.0565. Le standard NBS 987 a une valeur de $^{87}Sr/^{86}Sr=0.710195\pm36$.

- pour le Sm et Nd : les analyses ont été effectuées sur un Finnigan MAT 262, en mode statique, émis sous forme Nd^+ et Sm^+. Un système de double filament a été utilisé pour l'analyse. Le dépôt sur un filament de Ta, avec de l'H_3PO_4, comme activateur et un filament de Re pour l'ionisation. Les masses 143, 144, 145, 146, 148 et 150 sont mesurées pour le Nd. Les masses 147, 148, 149, 150, 152 et 154 sont mesurées pour le Sm. Les rapports mesurés sont corrigés de la discrimination de masse en normalisant le rapport $^{146}Nd/^{144}Nd$ à 0.7219 (O'Nions *et al.*, 1977) et le rapport $^{149}Sm/^{152}Sm$ à 0.516848 et en corrigeant les autres rapports avec une loi puissance (Wasserburg *et al.*, 1981). Le standard JM a été utilisé et le rapport moyen est $^{143}Nd/^{144}Nd=0.511110\pm27$.

- pour le Rb : les analyses de Rb ont été effectuées sur un TIMS, différent de celui utilisé pour les analyses de Sr, Nd et Sm, un CAMECA-TSN 206. Les analyses pouvaient se faire soit sur un multiplicateur d'électrons, soit sur une cage de Faraday. Le dépôt est fait sur un filament de W, avec un activateur de TaF_5-H_3PO_4 (Birck, 1986).

Les blancs de chimie totale sont en moyenne de 300 pg pour Sr ($^{87}Sr/^{86}Sr\approx0.710$), de 150 pg pour Nd.

Analyses de carbone organique

Le carbone organique a été déterminé sur des roches sources, telles que des schistes noirs ou des gneiss, des sédiments de rivières du Népal Central ou du Bangladesh, et des sédiments marins. L'échantillon est d'abord décarbonaté avec de l'HCl 2N, et passé aux ultrasons. Il est ensuite rincé à l'eau distillée sur un filtre de silice et séché dans un étuve à environ 80°C. Le filtre est placé dans un tube de quartz, sous vide et chauffé à 950°C, avec un tampon CuO/Cu_2O. Le CO_2 est libéré et purifié à –120°C. La quantité de carbone organique est mesurée à l'aide d'un manomètre. Le CO_2 est ensuite analysé au spectromètre de masse. La méthode est identique à celle utilisée par France-Lanord et Derry (1994).

Un spectromètre à source gazeuse a été utilisé pour déterminer la composition isotopique du carbone organique des échantillons. Le carbone organique est analysé sous forme de CO_2. Les mesures se font par rapport à un standard (la référence). Le gaz de référence et le gaz échantillon sont alternativement analysés dans le spectromètre de masse. Les résultats sont exprimés sous forme de $\delta^{13}C$.

La forme générale de δ est : δ (‰)=($R_{échantillon}/R_{référence}$-1)x1000.

Le spectromètre utilisé est un VG 602D. Les analyses du CO_2 se font en deux acquisitions séparées pour les masses 44 et 45 dans un premier temps, puis les masses 44+45 et 46. Les $\delta^{13}C$ et $\delta^{18}O$ sont calculés à partir des δ44/45 et δ46/(44+45) suivant la méthode de Craig (1957), en intégrant la contribution de ^{17}O sur les masses 45 et 46.

Chapitre 3
L'Himalaya et son érosion

L'Himalaya et son érosion

L'érosion de la chaîne himalayenne a un impact important sur l'environnement. Elle a une influence déterminante sur certains bilans géochimiques tels que celui du Sr océanique (Galy *et al.*, 1999 ; Krishnaswami *et al.*, 1992) ou peut-être celui de l'Os (Pegram *et al.*, 1992 ; Turekian et Pegram, 1997). Son action globale sur le cycle du carbone reste actuellement largement discutée (France-Lanord et Derry, 1997 ; Galy et France-Lanord, 1999 ; McCauley et De Paolo, 1997 ; Raymo, 1991). Ce chapitre introduit tout d'abord la chaîne himalayenne d'un point de vue géologique, puis d'un point de vue géochimique avec un résumé des données isotopiques obtenues au cours de différentes études ultérieures. Ces données seront par la suite comparées à celles acquises au cours de cette thèse. L'érosion himalayenne engendrée par l'édification de la haute chaîne, ainsi que ses conséquences seront introduites.

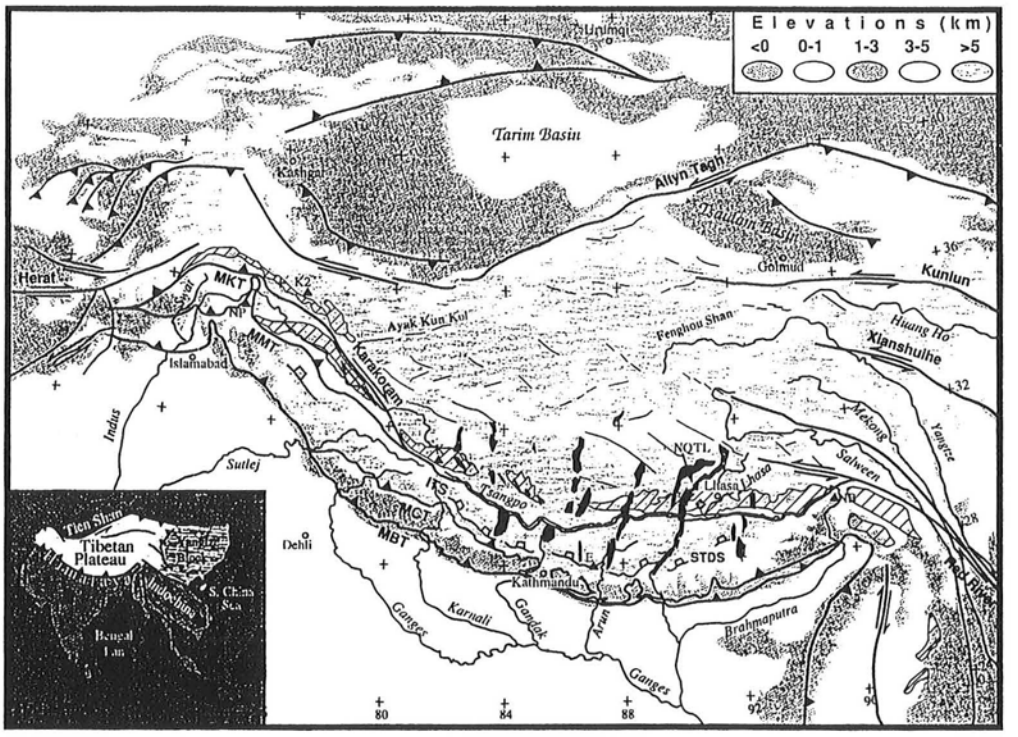

Figure 1 : Carte géologique du Plateau Tibétain et de la chaîne himalayenne (d'après Harrison et al. (1992)).

I. La Chaîne himalayenne

I.A. Géologie

Il y a 50 Ma environ, la collision entre l'Inde et le continent eurasiatique (Beck et authors, 1995 ; Le Fort, 1975) a structuré profondément la croûte terrestre sur plus de 3000 km de long, formant ainsi la chaîne himalayenne (Figure 2). La trace de cette collision continentale est la suture ophiolitique de l'Indus-Tsangpo au nord de la chaîne, séparant le bloc de Lhasa au nord et la chaîne himalayenne au sud.

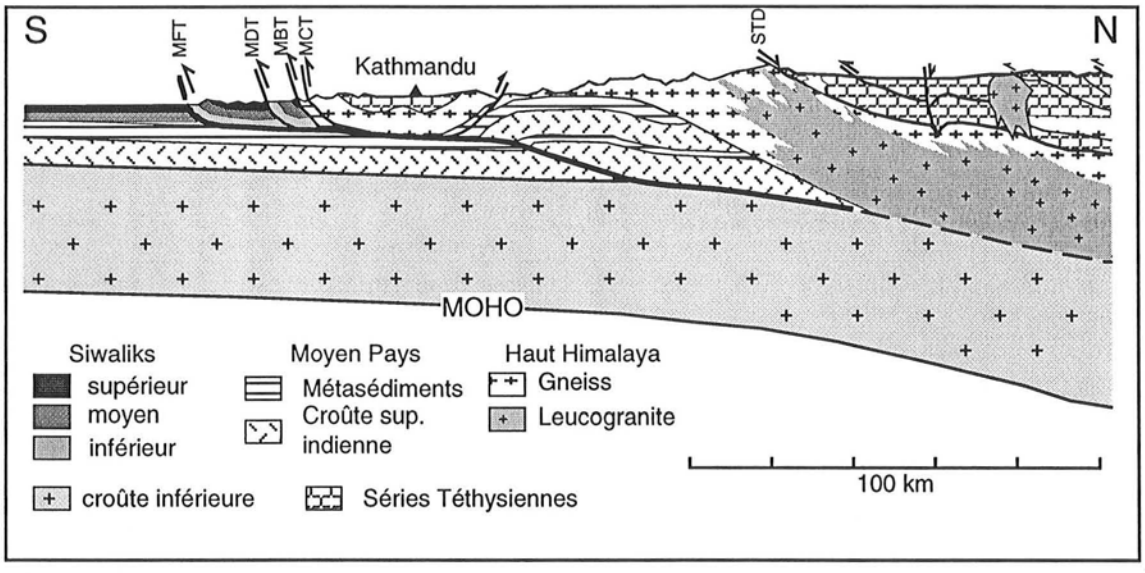

Figure 2 : Coupe géologique N-S de la chaîne himalayenne au Népal Central d'après Lavé et Avouac (2000).

La chaîne se divise en grandes unités structurales remarquablement constantes d'ouest en est se chevauchant les unes les autres selon de grands accidents, preuves du raccourcissement crustal ayant suivi la collision continentale. Ces accidents plongent vers le nord, comme le montre la coupe géologique de la Figure 2. Au sud de la suture de l'Indus-Tsangpo se trouve la chaîne proprement dite, où différentes formations se succèdent (Gansser, 1964 ; Le Fort, 1989) : les Séries Sédimentaires Téthysiennes (TSS) et le Socle Cristallin du Haut Himalaya ou Dalle du Tibet (HHC) forment la plupart de la haute chaîne. Cet ensemble chevauche vers le sud le long du MCT (Main Central Thrust), qui fonctionne depuis près de 20 Ma (Pêcher *et al.*, 1991), le Moyen Pays Népalais (LH), qui lui-même chevauche les formations des Siwaliks. Dans ce mémoire, nous utiliserons les acronymes anglais des grandes unités structurales : TSS pour les Séries Sédimentaires Téthysiennes, HHC pour la

Dalle du Tibet et LH pour le Moyen Pays Népalais. Le chevauchement du MCT a été accompagné d'un magmatisme crustal qui s'est traduit par la mise en place de deux ceintures granitiques dans le Haut Himalaya et dans la Nord Himalaya (Debon *et al.*, 1986 ; Le Fort, 1981).

Au sud de la chaîne se trouve la Plaine Indo-Gangétique qui s'étend sur l'Inde et le Bangladesh. Elle représente le bassin de collection de l'ensemble des rivières himalayennes affluant dans le Gange à l'ouest et dans le Brahmapoutre à l'est. Ces deux fleuves, parmi les plus grands au monde débouchent dans la Baie du Bengale au Bangladesh.

L'Himalaya du Népal Central se situe au centre de la chaîne. Elle a été l'objet de nombreuses études des équipes françaises depuis les années 60, que ce soit en cartographie (Bordet *et al.*, 1971 ; Colchen *et al.*, 1986), en pétrologie (Le Fort *et al.*, 1987 ; Pêcher, 1978), en géophysique (Bilham *et al.*, 1997 ; Pandey *et al.*, 1995) et récemment sur le système d'érosion (Galy et France-Lanord, 1999 ; Galy *et al.*, 1999 ; Rose *et al.*, 2000). Au Népal Central, toutes les formations y sont représentées ; ainsi du nord vers le sud, se succèdent (Figure 3, Figure 4) :

- les Séries Sédimentaires Téthysiennes (TSS= Tethyan Sedimentary Series),

Cette formation représente une importante couverture sédimentaire formée de dépôts de type marin épicontinental, essentiellement composés de carbonates, de grès, de schistes et de sédiments détritiques, allant de l'Ordovicien au Crétacé sans discontinuité. Cette formation correspond à une série sédimentaire de marge passive au sud et à un bassin d'avant-arc au nord. Des schistes noirs et des pyrites associées y ont été caractérisés, dans la formation de Thini, datant du permo-carbonifère ou dans la formation de Spiti (Bordet *et al.*, 1971). Les TSS reposent tectoniquement sur les gneiss du Cristallin du Haut Himalaya par l'intermédiaire de la Faille Normale Nord Himalayenne ou South Tibetan Detachment System (STDS). Les TSS sont localement intrudées par des massifs leucogranitiques comme celui du Manaslu. Ces granites proviennent de la fusion partielle de la HHC (Le Fort, 1981 ; Vidal *et al.*, 1982).

- La Dalle du Tibet ou Cristallin du Haut Himalaya (HHC=High Himalayan Crystallines),

Elle se situe structuralement sous les TSS et représente la formation principale de la chaîne. C'est un socle cristallin, ayant subi un métamorphisme de haut degré, subdivisé en

trois formations : 1) FI : constituée de paragneiss gréso-pélitiques grossiers à micas et de migmatites, 2) FII, composée de gneiss à minéraux calciques et de marbres, 3) FIII, représentant une succession de bandes de gneiss œillés. Toutes ces formations sont assez homogènes. L'âge des protolithes sédimentaires est mal connu, mais il est vraisemblablement anté-cambrien (Le Fort, 1986).

- Le Moyen Pays ou Bas Himalaya (LH=Lesser Himalaya),

Cette formation est délimitée entre deux grands accidents intra-lithosphériques, le MCT (Main Central Thrust) au Nord, qui la sépare du bloc du Haut Himalaya et le MBT (Main Boundary Thrust) au Sud, qui la fait chevaucher sur les séries des Siwaliks. Deux formations sont distinguées : 1) le Moyen Pays Supérieur (MPS) essentiellement composé de grès et de schistes parfois graphiteux avec quelques intercalations de marbres impurs (Pêcher, 1978).

2) le Moyen Pays Inférieur (MPI) qui est une formation épaisse et monotone, constituée de grès et de schistes fins, dont la minéralogie est composée de quartz, muscovite, chlorite et feldspath. Leur répartition est assez inégale et très variable.

Les formations du LH ont subi un bombement anticlinal exposant le MPS au nord au contact du MCT et au sud. Le LH est soumis au métamorphisme « inverse », c'est-à-dire que le degré de métamorphisme augmente vers les niveaux structuraux supérieurs. Il atteint l'isograde du disthène au contact du MCT. Les terrains sont d'âge Protérozoïque à Cambrien.

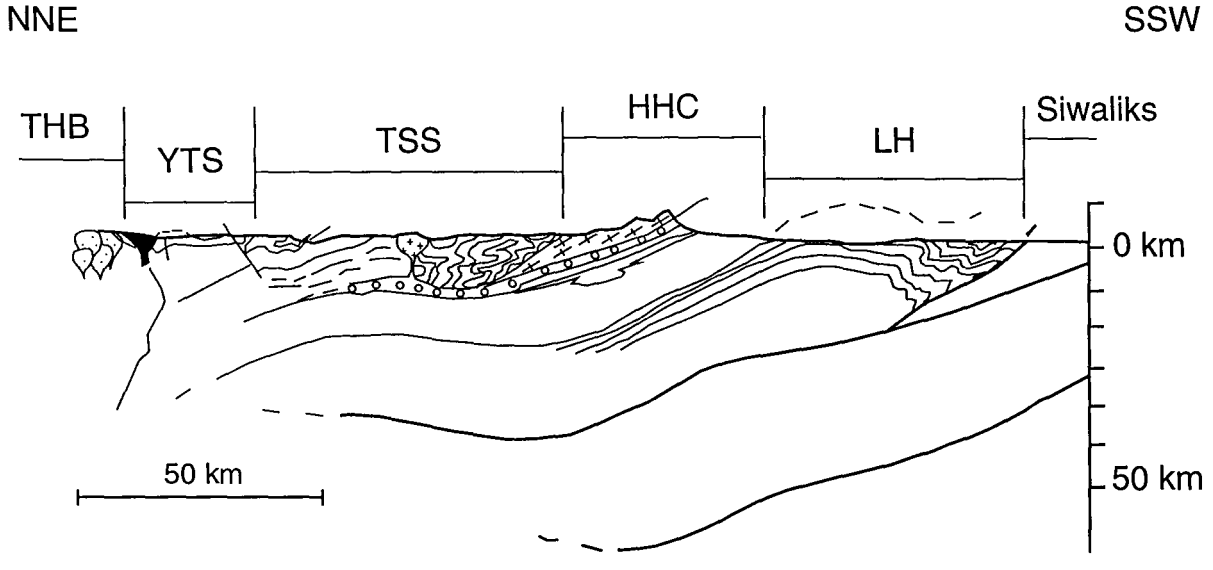

Figure 3 : Coupe géologique de la chaîne himalayenne au Népal Central d'après France-Lanord et Le Fort (1988). LH : Moyen Pays Népalais, HHC : Dalle du Tibet, TSS : Séries Sédimentaires Téthysiennes, YTS : Suture de l'Indus-Tsangpo, THB : Batholite du Trans-Himalaya.

- Les Siwaliks (Siw)

Ils sont constitués de molasses. Ils représentent l'incorporation de dépôts de bassin flexural d'avant-chaîne dans la tectonique chevauchante himalayenne, résultant de l'érosion Mio-Pliocène (Delcaillau, 1992). Cette formation est délimitée par deux accidents intra-crustaux : MFT (Main Frontal Thrust) au sud et le MBT (Main Boundary Thrust) au nord.

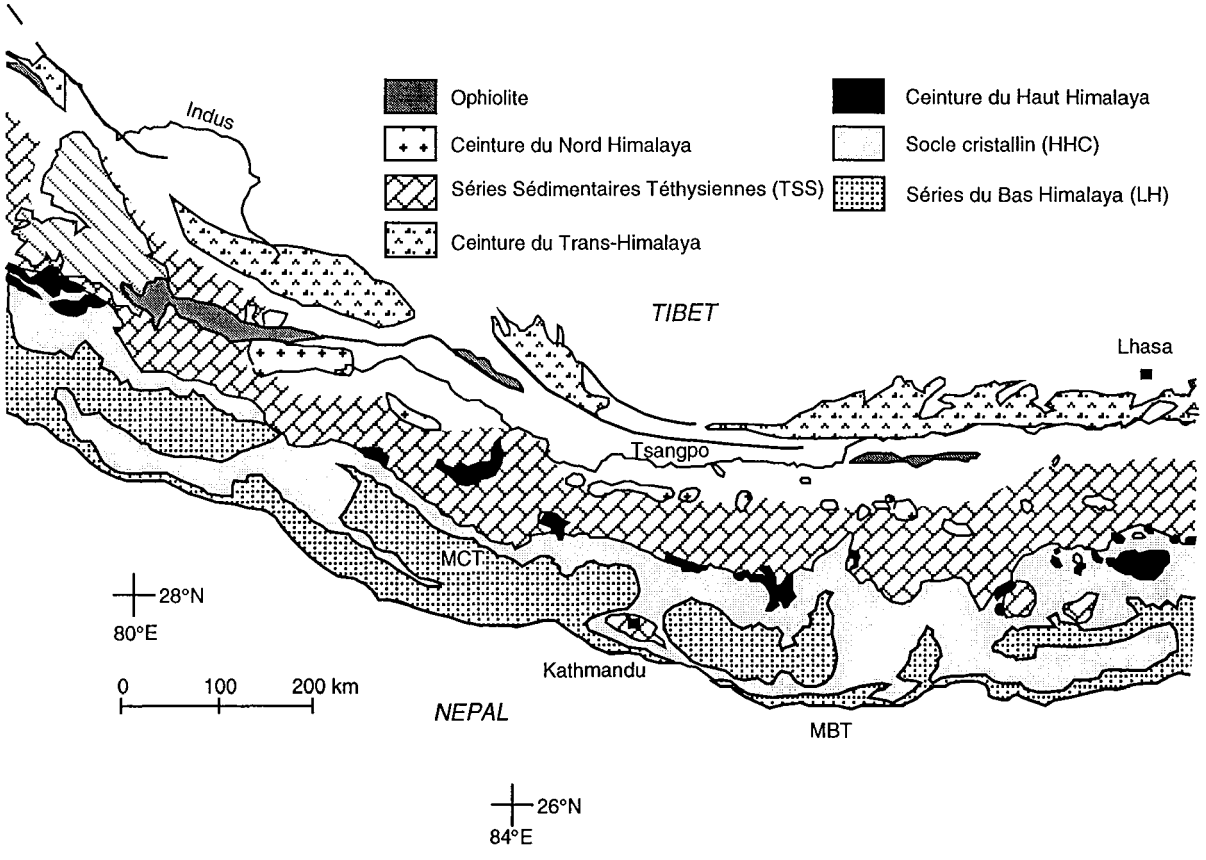

Figure 4 : Carte géologique simplifiée de l'Himalaya (d'après Le Fort (1986)).

I.B. Hydrographie

Le Gange et le Brahmapoutre, ainsi que tous les affluents qui les rejoignent, drainent environ 80% de la chaîne himalayenne. Les rivières himalayennes sont caractérisées par un écoulement du nord vers le sud et drainent ainsi successivement les TSS, la HHC, le LH, puis les Siwaliks avant d'entrer dans la Plaine Indo-Gangétique (Figure 5). Le Gange et le Brahmapoutre sont les plus importants au monde en terme de transport de sédiments et quatrièmes en terme de décharge d'eau (Milliman et Meade, 1983).

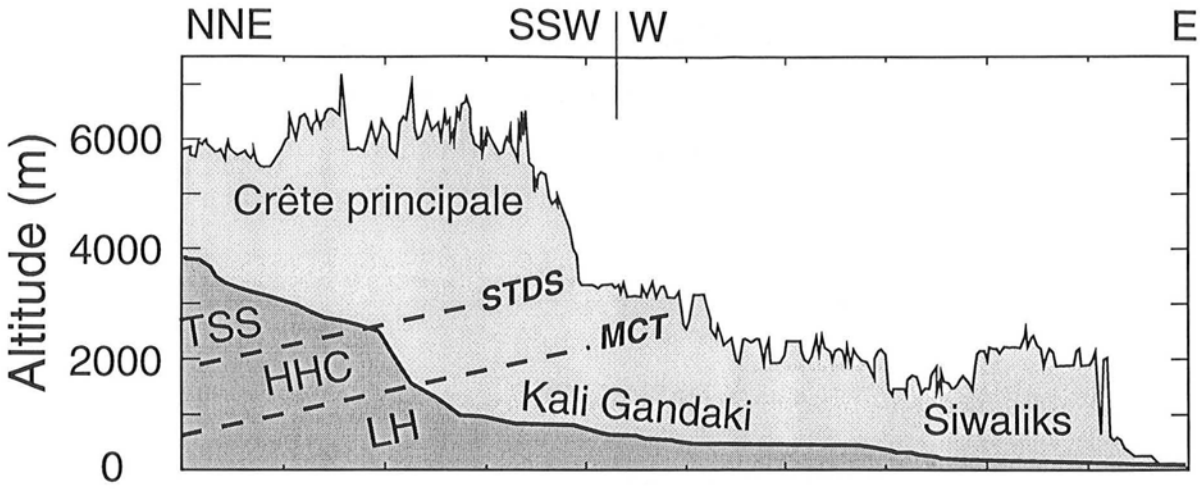

Figure 5: Profil N-S de la chaîne himalayenne, avec un exemple de profil de rivière (Kali Gandaki) (Hurtrez, 1998).

Au Népal Central, le bassin versant de la Narayani (Figure 6) se situe à moins d'une centaine de kilomètres à l'Ouest de la capitale, Katmandou. Les principales rivières du système hydrographique sont d'ouest en est : la Kali Gandaki, la Marsyandi, la Bhuri Gandaki et la Trisuli. Ces rivières sont transhimalayennes ; elles prennent leur source au Nord sur le Plateau Tibétain, puis elles traversent la haute chaîne dans des vallées N-S. Dans le Bas Himalaya, elles sont collectées selon un réseau de drainage E-W engendré par la surrection d'avant-chaîne. Seule la Narayani traverse finalement les Siwaliks pour rejoindre le Gange sous le nom de Gandak. Une des particularités de ce bassin est que la partie nord de la Kali Gandaki traverse le fossé d'effondrement de la Thakkhola, considéré comme un analogue d'érosion de la partie Sud du Tibet drainée par le Tsangpo avant de se jeter dans le Brahmapoutre. Ainsi l'échantillonnage de ces rivières est bien représentatif de la variété des lithologies himalayennes.

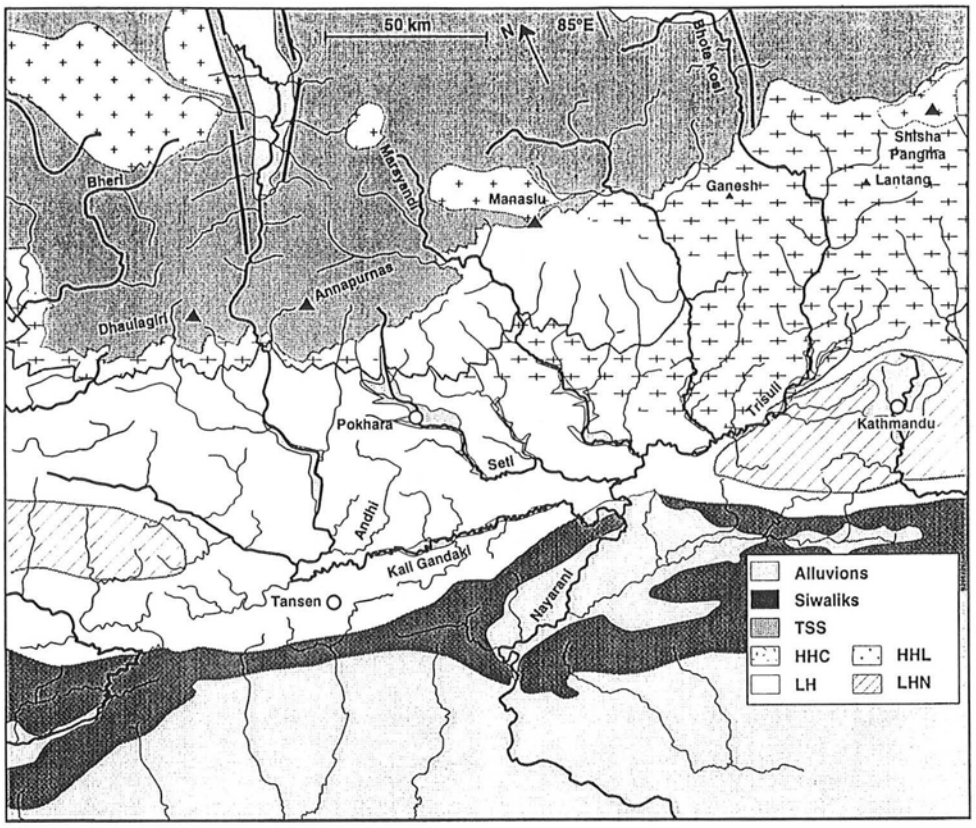

Figure 6 : Système hydrographique au Népal Central

La *Kali Gandaki* prend sa source à plus de 6000 m dans les TSS, dans la région de Lo Mantang, puis suit le fossé de la Thakkhola, au niveau d'un système de graben rempli par plus de 800 m de sédiments plio-quaternaires et par des conglomérats alternant localement avec quelques dépôts évaporitiques (Fort *et al.*, 1982). La Kali traverse la haute chaîne à moins de 3000 m d'altitude entre deux sommets à plus de 8000 m, Dhalaugiri et Annapurnas I séparés d'environ 30 km. La traversée de la HHC est réduite, de l'ordre de quelques dizaines de kilomètres. La plus grande partie du cours de la rivière draine les terrains du LH, jusqu'à la confluence avec la Trisuli 300 km en aval de sa source. La Kali Gandaki représente environ 36 % du débit de la Narayani et 4.2% de celui du Gange, au niveau de l'embouchure dans la Baie du Bengale.

La *Trisuli* prend également sa source dans les TSS, vers 5000 m d'altitude. Elle traverse la même succession de terrains (TSS, HHC et LH). Suivant son cours, elle collecte deux affluents trans-himalayens, plus importants et plus longs que ceux de la Kali Gandaki, la Bhuri Gandaki et la Marsyandi.

La *Narayani* débute à la confluence Kali Gandaki-Trisuli à la charnière LH-Siwaliks, puis elle s'écoule vers le sud dans la plaine du Gange sur 1000 km sous le nom de Gandak avant de rejoindre le cours principal du Gange. Des échantillons de la Narayani ont été prélevés juste après la confluence entre Kali Gandaki et Trisuli et de ce fait reflètent le mélange chimique de ces deux rivières. Le débit de la Narayani représente environ 12.8% du débit à l'embouchure du Gange.

Le *Gange* draine une superficie de 750000 km^2. Sa source se situe à environ 7000 m d'altitude au niveau du glacier du Gangotri. Le fleuve descend dans la plaine alluviale après la traversée des Siwaliks. De nombreux affluents rejoignent le Gange, comme au nord le Gomti, le Ghaghara et le Gondak et au sud le Yamuna et le Son.

Le *Brahmapoutre* prend sa source au niveau du glacier Chamyungdung à 5200 m d'altitude sur le Plateau Tibétain, très près des sources du Gange. Il s'écoule tout d'abord au Tibet parallèlement à la haute chaîne himalayenne qu'il traverse dans son extrémité orientale. Il reprend ensuite un cours Est-Ouest dans la Plaine d'Assam où il collecte quelques bassins transhimalayens.

Le Gange et le Brahmapoutre se rejoignent au Bangladesh, avant de se jeter dans le Golfe du Bengale. Au Bangladesh, trois grandes rivières se partagent la plaine d'inondation : le Gange, le Brahmapoutre et la Meghna, couvrant ainsi environ 40% du territoire du Bangladesh. Le delta est en fait composé de trois parties : le delta du Gange, le delta de la Meghna et du vieux Brahmapoutre à l'est et enfin le delta du Gange-Jamuna (Brahmapoutre actuel)-Meghna. Le Tableau 1 récapitule les différentes estimations des flux d'eau et de sédiments du Brahmapoutre, du Gange et de la Meghna au Bangaldesh.

Tableau 1: Estimations des flux annuels d'eau et de sédiments pour les trois principales rivières au Bangladesh (ISPAN, 1995)

Rivières	Décharge d'eau annuelle (m^3/s)	Estimations de la décharge annuelle de sédiments (10^{6}t/an)			
Brahmapoutre	19600	608	387	499	586
Gange	11000	479	212	196	549
Meghna	4800	13	-	-	-
Références		*Coleman (1969)*	*MPO (1987)*	*CBJET (1991)*	*RSP (1994)*

I.C. Géochimie

Les différentes formations de la chaîne himalayenne ont des caractéristiques géochimiques de Sr, de Nd ou d'O qui permettent de les distinguer. Ces caractéristiques permettent de déterminer l'origine des matériaux érodés (France-Lanord *et al.*, 1993) (Tableau 2). La composition isotopique de Nd est un traceur d'origine assez stable, tandis que les compositions isotopiques de Sr et d'O sont sensibles à la fois à l'altération et à l'origine.

Le LH et le Trans-Himalaya se distinguent facilement des autres formations par leurs signatures isotopiques de Sr et de Nd. Le LH est défini par une composition isotopique de ε_{Nd} de –25 environ (Galy, 1999 ; Parrish et Hodges, 1996), indiquant des âges modèles de 2.3-2.6 Ga. Cependant, de nouvelles données permettent d'étendre la gamme de valeurs de εNd du LH de –18 à –28 (Ahmad *et al.*, 2000). Les trois autres formations (TSS, HHC et Siw) sont moins différenciées.

Tableau 2 : Composition isotopique moyenne de Rb-Sr, Sm-Nd des 5 formations du bassin du Gange-Brahmapoutre, d'après Galy (1999).

Formation	$^{87}Sr/^{86}Sr$	[Rb] (ppm)	[Sr] (ppm)	ε_{Nd}	[Sm] (ppm)	[Nd] (ppm)
THB	0.706±0.001	129±24.6	390±60.1	-4.0±5.4	5.06±5.09	27.4±22.6
TSS	0.713±0.006	49±29	358±415	-10.8±3.6	5.58±1.71	28.0±8.4
HHC	0.753±0.008	191±23.5	134±16.1	-15.1±0.8	5.92±0.94	30.3±4.7
LH	0.867±0.072	215±32.5	115±32.8	-24.9±0.8	7.16±0.95	39.2±4.7
Siwaliks	0.738±0.018	86±61	55±51	-17.2±1.2	3.91±1.61	20.0±8.7

Ainsi en prélevant des sédiments à différents endroits sur le système de rivières du Gange-Brahmapoutre, la composition isotopique en Sr et en Nd pourra déterminer la source d'érosion/altération. Par exemple, la signature isotopique de matériel détritique provenant du Gange donne une valeur de εNd à –15.3 en moyenne (France-Lanord *et al.*, 1993 ; Goldstein *et al.*, 1984), indiquant une source dominée par la HHC. Les compositions isotopiques des différentes formations et celles du matériel détritique de rivières ou marins ont permis de déterminer la source majeure de matériel continental prélevé dans le Cône du Bengale. La

Figure 7 résume les gammes de variations de compositions des trois principales formations himalayennes. Les aires ainsi définies ont permis de déterminer que la source principale du matériel détritique sédimenté dans le Cône du Bengale était directement dérivé de la HHC (Derry et France-Lanord, 1996 ; Galy *et al.*, 1995).

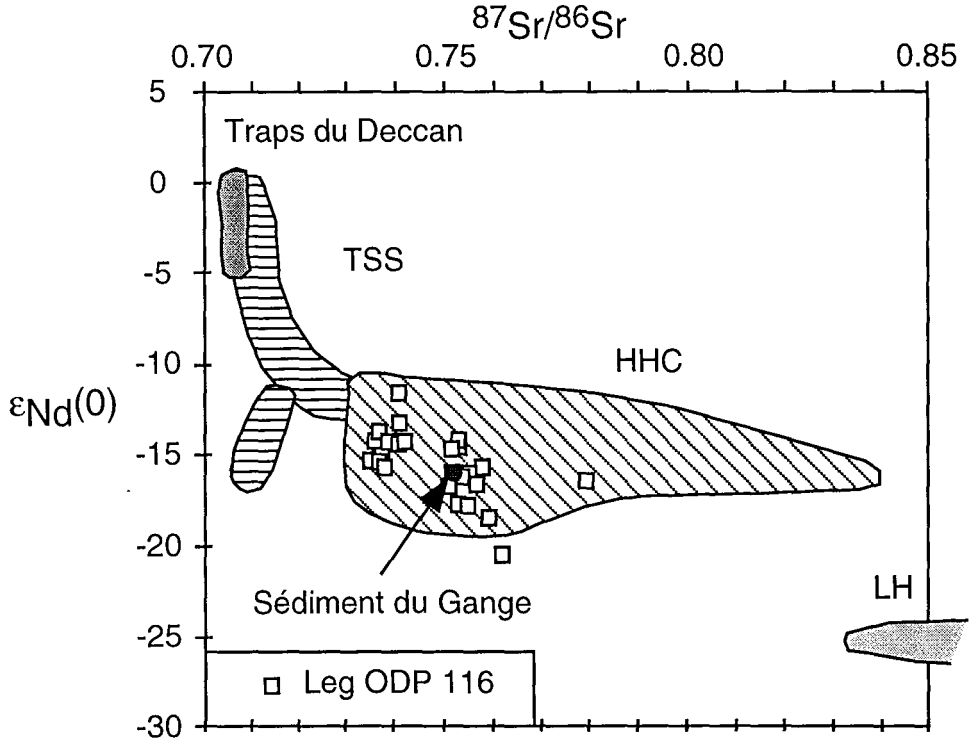

Figure 7 : $^{87}Sr/^{86}Sr$ en fonction de $\varepsilon_{Nd}(0)$ représentant les formations himalayennes et la répartition des sédiments du forage ODP Leg 116

Le Gange draine également les formations du Bouclier Indien au sud. Les formations géologiques et les affluents du continent Indien ont été peu déterminés en Re-Os, plus en Sr et Nd. Une étude récente d'une suite de roches basaltiques des Traps du Deccan (Allègre *et al.*, 1999) montre une signature Re-Os variée. Ces roches sont pauvres en Os et assez riches en Re par rapport aux roches himalayennes avec des rapports isotopiques variables pouvant être radiogéniques ou non. Ces rapports radiogéniques dans des roches d'origine mantellique sont liés aux rapports Re/Os élevés et à la décroissance radiogénique de ^{187}Re depuis 65 Ma.

II. La surrection de l'Himalaya et ses conséquences

La mise en place de l'Himalaya a engendré sa propre désagrégation par des processus d'érosion, ainsi qu'un changement important dans les circulations atmosphériques, en influençant la mousson par exemple. Les perturbations atmosphériques, qu'elles soient régionales ou globales, impliquent une relation directe entre le climat et la tectonique. L'érosion chimique et physique dans la chaîne himalayenne a pu contribuer à un changement climatique global tel que le refroidissement intervenu durant les 40 derniers Ma. Raymo et al. (Raymo, 1991 ; Raymo et Ruddiman, 1992), suivant l'hypothèse émise par Chamberlin (1899), ont suggéré que des taux d'érosion chimique importants associés à la surrection de chaînes de montagnes pouvaient engendrer une diminution du CO_2 atmosphérique entraînant ainsi un refroidissement global. La reprise des glaciations durant l'Oligocène serait ainsi associée à la surrection de l'ensemble Himalaya-Tibet et à son érosion. L'importance et la nature des changements dus à l'érosion himalayenne font l'objet d'un débat scientifique actif depuis une dizaine d'années.

L'étude du Sr marin montre une croissance du rapport $^{87}Sr/^{86}Sr$ dans les océans pendant le Cénozoïque (Richter *et al.*, 1992 ; Veizer, 1989), impliquant un apport de Sr radiogénique aux océans. Cette croissance a été utilisée comme traceur de l'intensité de l'érosion himalayenne (Richter *et al.*, 1992). En fait, les rivières himalayennes jouent un rôle déterminant dans le bilan total du Sr océanique, principalement en raison de leurs rapports $^{87}Sr/^{86}Sr$ très élevés (Galy *et al.*, 1999 ; Krishnaswami *et al.*, 1992 ; Palmer et Edmond, 1989). Cette signature isotopique inhabituelle tient (1) à l'âge ancien de la croûte himalayenne et à sa composition de métasédiments qui ont produit des roches très radiogéniques (de 0.78 à 1.4 pour le LH) et (2) au métamorphisme récent qui a redistribué le ^{87}Sr vers des phases facilement altérables telles que les feldspaths (Brouand, 1989 ; Edmond, 1992) ou les carbonates (Derry et France-Lanord, 1996 ; Quade *et al.*, 1997 ; Singh *et al.*, 1998). L'évolution du Sr océanique est donc largement déterminée par l'érosion de l'Himalaya. Cependant, elle n'indique pas une phase d'altération majeure des silicates (Galy *et al.*, 1999). Le flux d'alcalinité lié à l'altération des silicates du Gange-Brahmapoutre est de l'ordre de 2% du flux mondial, c'est-à-dire normal compte tenu de l'importance du bassin. Raymo et Ruddiman (1992), puis Richter *et al.* (1992) ont utilisé directement les flux de Sr de rivières sans prendre en compte le caractère atypique de la croûte himalayenne. La conséquence

directe est une surestimation des flux d'altération des silicates en Himalaya.

L'érosion himalayenne a par contre un effet très important en terme de flux particulaire. Environ $1x10^9$ t/an de particules sont transportées aux océans, ce qui représente une contribution majeure à l'échelle globale. Le taux d'enfouissement de la matière organique qui y est associée, est donc significatif. France-Lanord et Derry (1997) ont montré à partir de sédiments du Cône du Bengale que ces processus induisent une consommation de carbone 2 à 4 fois plus élevée que l'altération des silicates.

Erosion himalayenne : sources et flux d'Os et de Re

L'Os d'origine continentale représente l'apport le plus important aux océans d'Os dissous. Ce flux est estimé à environ 60-80% à partir de simples bilans de masse (Pegram *et al.*, 1992 ; Sharma *et al.*, 1997). Une estimation de la composition isotopique d'Os et de la concentration moyennes de l'Os continental a été tentée à partir de lœss, donnant respectivement les valeurs de 1.3 et 50 ppt (Esser et Turekian, 1993). Par analogie au Sr, la croissance de $^{187}Os/^{188}Os$ de l'eau de mer sur les 20 derniers Ma a été attribuée à la formation et l'érosion de la chaîne himalayenne (Pegram *et al.*, 1992 ; Turekian et Pegram, 1997). Les premières données d'Os obtenues sur des lessivages de sédiments du Gange montrent des signatures radiogéniques ($^{187}Os/^{188}Os$=1.85-2.04 ; Pegram *et al.* (1994)). Ces compositions isotopiques en Os suggèrent la présence de roches riches en Os et en Re dans le bassin drainé par le système hydrographique du Gange-Brahmapoutre (Pegram *et al.*, 1994). Jusqu'à présent, très peu d'analyses de Re-Os sur des échantillons himalayens sont disponibles. Singh *et al.* (1999) ont analysé des schistes noirs du LH montrant une large gamme de variation dans la composition isotopique d'Os (1.02-11.56), ainsi que dans la concentration en Os (0.05-13.5 ppb) et en Re (0.35-264 ppb). Par la suite, les premières analyses d'eau de rivières ont montré des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ radiogéniques pour le Gange (1.59-2.92 ; Levasseur *et al.* (1999) et Sharma *et al.* (1999)), et moins radiogéniques pour ceux du Brahmapoutre (1.07 ; Sharma *et al.* (1999)).

Afin d'identifier les sources d'Os et de Re en Himalaya, la composition isotopique d'Os a été déterminée sur des roches en place issues des trois grandes formations himalayennes (TSS, HHC, LH), et des sédiments de rivière dont le bassin versant peut comprendre une ou plusieurs formations. Les données obtenues sur les roches sources et les sédiments de rivière sont comparées. Le bilan d'érosion permet de tester les sources et les processus qui conditionnent la signature radiogénique des sédiments et des eaux himalayennes.

I. Echantillonnage

Les différentes campagnes d'échantillonnage, menées dans le cadre des programmes PROSE et PNSE, ont permis de collecter des roches en place et des sédiments de rivière. Ces échantillons proviennent principalement du bassin de la Narayani au Népal Central et du Gange et du Brahmapoutre au Bangladesh.

I.A. Les roches

Les roches en place permettent de caractériser isotopiquement les différentes formations himalayennes. Les roches analysées couvrent les lithologies rencontrées dans les trois grandes formations himalayennes au Népal Central (Figure 1). Les échantillons des TSS comprennent des grès, des schistes noirs, ou des marbres. Un échantillon du leucogranite du Manaslu a aussi été analysé. Les échantillons de la HHC sont des paragneiss de la Formation I et des gneiss et des marbres de la Formation II. Les roches du LH sont principalement des schistes et des grès. Une attention particulière a été portée sur les schistes noirs présents dans les formations du LH supérieur et sur les marbres associés. Les compositions chimiques en éléments majeurs et traces de certaines roches sont présentées en Annexe 2.

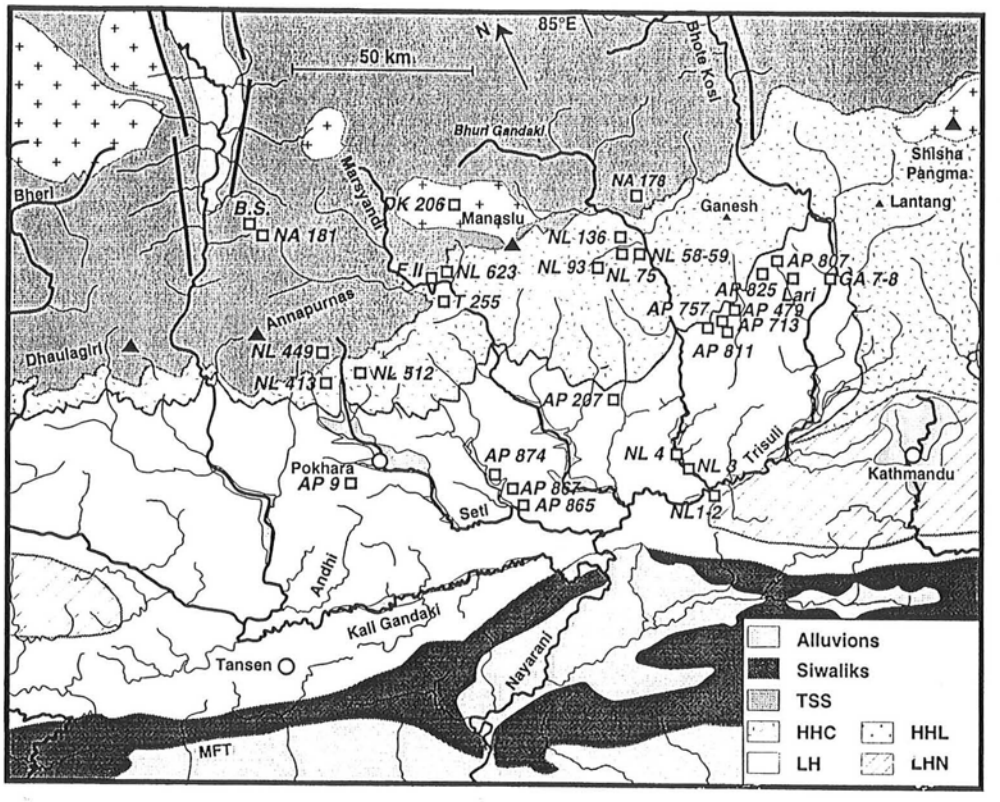

Figure 1: Carte de localisation des roches sources au Népal Central

L'analyse de minéraux séparés

Afin d'avoir une idée générale sur la distribution du Re et de l'Os dans ces roches métamorphiques, des minéraux séparés ont été analysés (Tableau 1). La distribution du Re et de l'Os dans les minéraux est importante pour l'étude des produits d'érosion. En effet, les sédiments subissent un tri minéralogique pendant leur transport, et l'altération touche certaines phases préférentiellement. Les minéraux séparés par liqueurs denses proviennent de gneiss de la HHC.

L'échantillon NL 146 a été séparé grossièrement à l'aide du séparateur Frantz et des propriétés magnétiques des minéraux. La fraction 'mafique' a été séparée à < 0.5 A. Les principaux minéraux de cette fraction sont la biotite, la chlorite, l'hornblende, ou le grenat. La fraction 'felsique' a été séparée à > 2 A. A cet ampérage, des minéraux très peu attirables sont séparés, comme la muscovite, les feldspaths, les carbonates (très peu présents dans ces échantillons de la HHC) ou le béryl.

Tableau 1 : Composition isotopique d'Os et concentrations en Os et Re des minéraux séparés de gneiss de la HHC.

Fraction	[Os] (ppt)	^{188}Os (ppt)	[Re] (ppt)	^{187}Os/^{188}Os	^{187}Re/^{188}Os
NL 146					
Roche totale	5	4	552	1.072	573
Fraction mafique (<0.5 A)	50	43	3689	1.193	401
Fraction felsique (>2 A)	24	20	189	1.331	41
Fraction intermédiaire	25	21	298	1.272	69
NL 58					
Roche totale	52	46	185	1.080	19
Plagioclase	61	53	576	1.105	51
Biotite	93	81	234	1.138	14
NL 413					
Roche totale	14	12	343	1.221	132
Muscovite	40	35	195	1.163	27
Grenat	89	78	146	1.076	9
Biotite	37	33	143	1.052	21

Pour l'échantillon NL 146, la roche totale possède une concentration en Os beaucoup plus faible que les fractions minéralogiques. La concentration en Re de la fraction mafique est très élevée. La phase la plus magnétique concentre plus l'Os et le Re, et la phase la moins magnétique a une concentration en Re nettement inférieure à la précédente d'un facteur 10 à 20. La différence de concentration en Os est nettement moins importante que celle de Re, variant d'un facteur 2. Apparemment, l'Os et surtout le Re sont contrôlés par des minéraux comme la biotite, le grenat. Le quartz ou le feldspath seront supposés moins grands concentrateurs d'éléments sidérophiles.

Le plagioclase et la biotite du gneiss NL 58 montrent des concentrations plus élevées, que celles de la roche totale, mais aussi que celles des sédiments issus de l'érosion de ces roches, qui ont une [Os] moyenne de 15-20 ppt. La biotite, considérée comme un minéral mafique, a une concentration en Os deux fois plus élevée que la roche totale. Le Re semble par contre être plus concentré dans le plagioclase, ce qui peut paraître étonnant étant donné le

caractère sidérophile du Re. NL 58 est en majorité composé de quartz, feldspaths et biotite. La présence de quartz pourrait expliquer les teneurs en Os et Re plus faibles dans la roche totale que dans les fractions séparées, par simple effet de dilution. La rapport $^{187}Os/^{188}Os$ des différentes phases varie entre 2 et 4 % les unes par rapport aux autres, indiquant une composition plus radiogénique avec la [Os] croissante.

Les minéraux de NL 413 (muscovite, grenat et biotite) montrent des concentrations en Os plus élevées que la roche totale. Tandis que pour les concentrations en Re, le comportement est inversé. La concentration en Os du grenat montre qu'il représente une phase hôte préférentielle pour l'Os, mais pas forcément pour le Re, ce qui est en contraste avec les résultats obtenus sur des roches basiques (Righter et Hauri, 1998). Les rapports isotopiques d'Os des minéraux sont moins radiogéniques que la roche totale nécessitant une fraction minérale ayant un rapport plus radiogénique.

La répartition de l'Os et du Re dans les phases majeures de ces trois roches ne montre pas de systématique. Elle peut être contrôlée par la présence de microphases en trace susceptibles de concentrer préférentiellement l'Os et le Re.

Les données isotopiques représentées dans un diagramme isochrone montrent qu'aucune isochrone interne n'est possible (Figure 2). Ces variations ne peuvent pas résulter de la décroissance radiogénique du Re sur une période de quelques dizaines de Ma. L'absence d'alignement isochrone suggère que l'Os et le Re ont été redistribués au cours du métamorphisme sans aboutir à une homogénéisation isotopique.

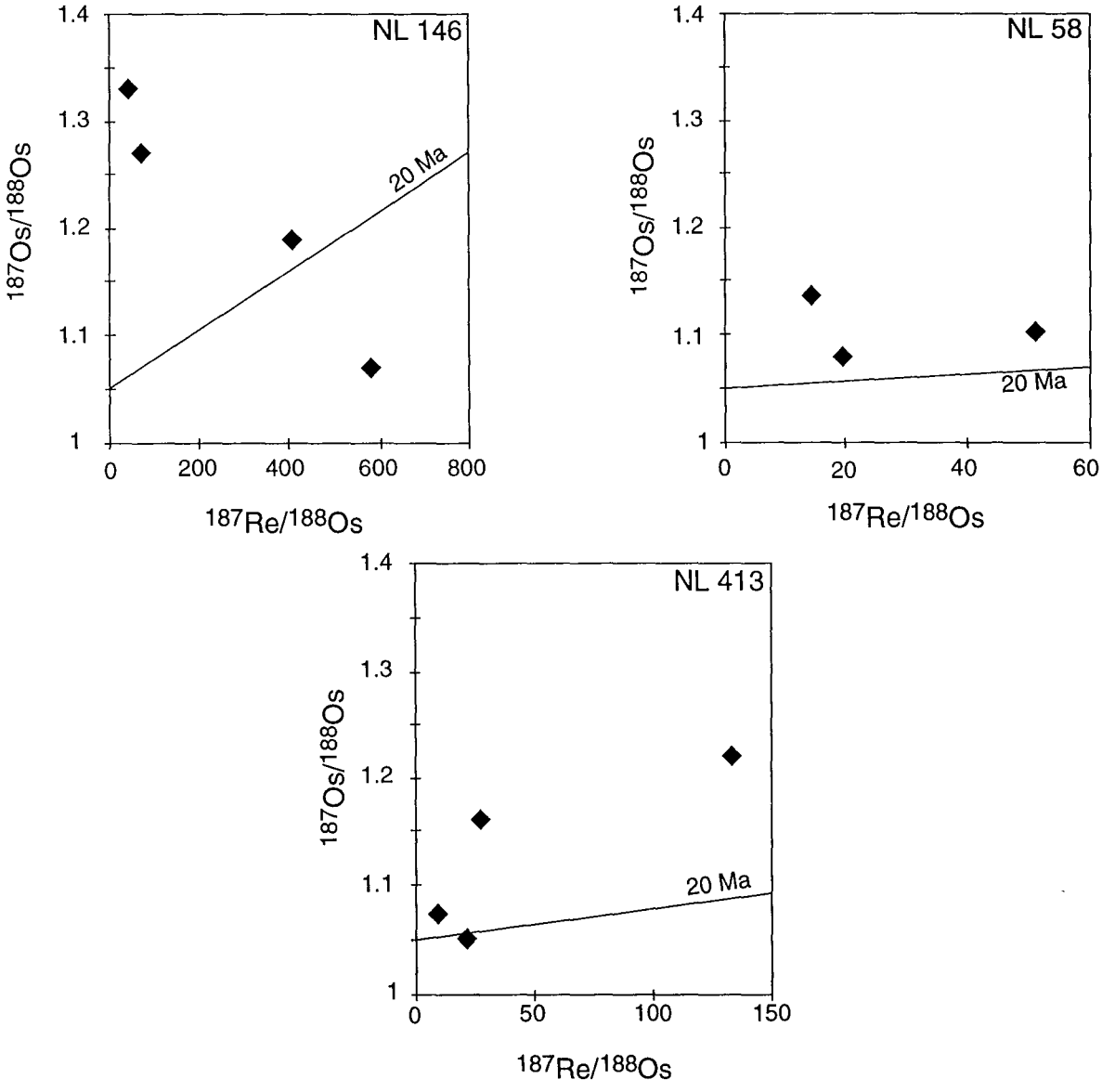

Figure 2 : Diagrammes isochrones internes d'Os des 3 échantillons à partir des minéraux séparés.

I.B. Les sédiments de rivières

Les sédiments de rivières (dans notre cas synonyme de charge de fond – bedload) sont utilisés pour déterminer le produit d'érosion moyen des bassins. Les sédiments provenant de petits bassins dits 'monolithologiques' apportent une caractérisation complémentaire sur la signature isotopique des formations sources. Ils peuvent alors être directement comparés aux données des roches sources. L'échantillonnage a été assez détaillé au Népal Central (Figure 3) et des prélèvements au Bangladesh (Figure 4) sur le Gange et le Brahmapoutre apportent des données à l'échelle de la chaîne complète. La majorité des sédiments ont été échantillonnés

pendant la saison sèche.

La minéralogie de ces charges de fond est assez constante d'un échantillon à l'autre. Elle est surtout dominée par le quartz, les feldspaths et les micas, la biotite et la muscovite. Les proportions de minéraux sont similaires pour les échantillons de rivières népalaises et du Gange et Brahmapoutre. La présence de calcite et dolomite dans les sédiments est une caractéristique des rivières himalayennes où l'altération n'est pas assez poussée pour arriver à dissoudre la totalité des carbonates érodés (Galy, 1999). Nous n'observons cependant pas de carbonates dans les sédiments du Brahmapoutre. Les compositions chimiques en éléments majeurs et traces des sédiments de rivières sont présentées en Annexe 2.

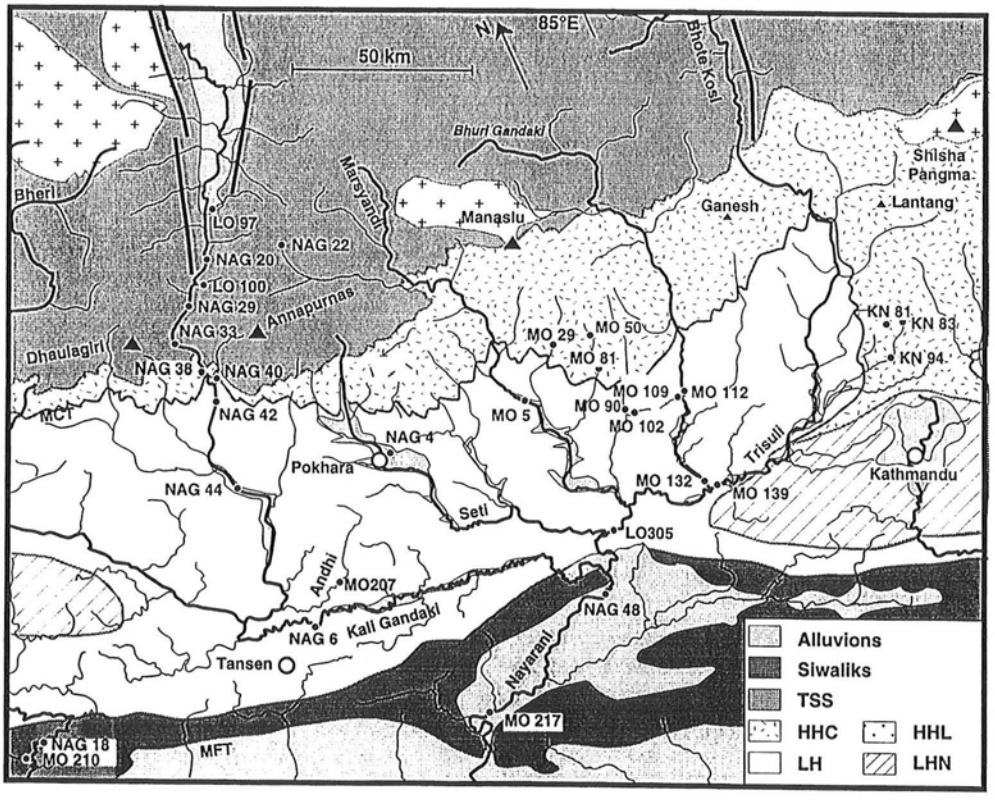

Figure 3 : Localisation des sédiments de rivières échantillonnés au Népal Central

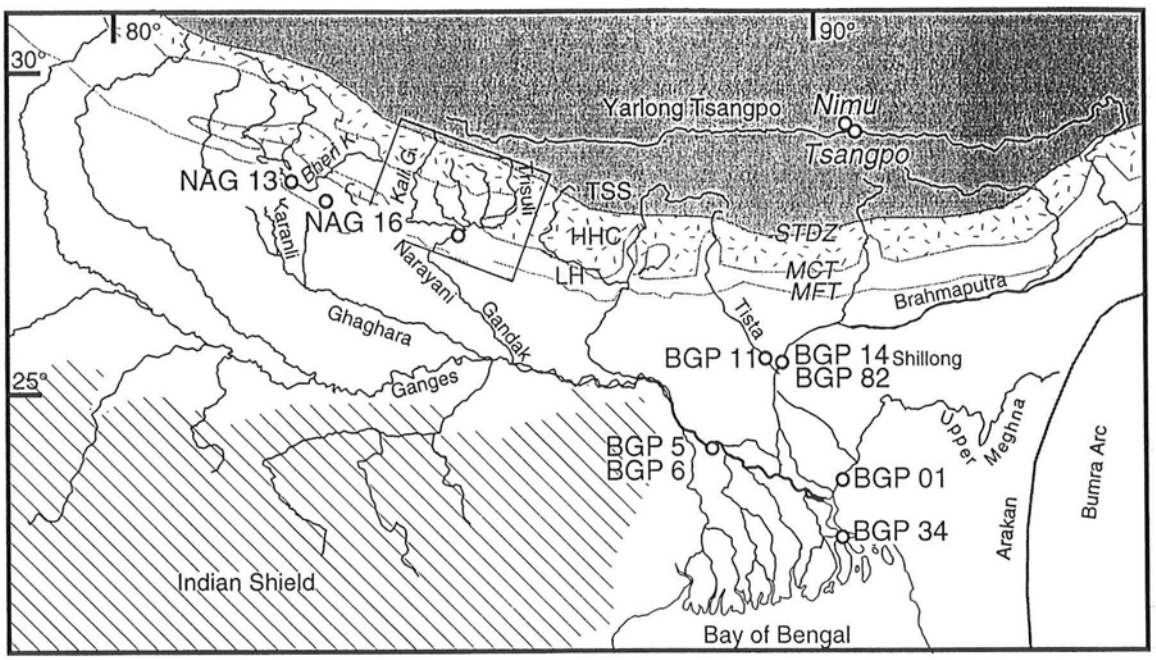

Figure 4 : Localisation des sédiments de rivières au Bangladesh.

II. La composition isotopique d'Os de roches et de sédiments de rivières himalayens : importance des schistes noirs *.

*(*titre traduit en français de l'article publié dans EPSL (176, 203-218, 2000))*

La détermination de la composition isotopique d'Os dans les roches des trois grandes formations himalayennes et les sédiments de rivières a permis de retracer les sources principales d'Os dans le système du Gange-Brahmapoutre et d'informer sur le comportement de l'Os et du Re pendant l'érosion. Les données obtenues pour cette étude sont exposées et discutées dans un article en anglais publié dans la revue *Earth and Planetary Science Letters* (Pierson-Wickmann *et al.*, 2000).

Résumé (traduit en français)

Les données Re-Os sont présentées pour des roches et des sédiments de rivière de la chaîne himalayenne, au Népal Central et au Bangladesh. Ces données démontrent que la composition isotopique d'Os de la plupart des roches est similaire à celle de la croûte continentale moyenne. Les seules exceptions sont les schistes noirs du Moyen Pays, qui

contiennent des grandes quantités d'Os radiogénique. Dans ces schistes noirs, l'Os n'est pas concentré dans les sulfures, mais pourrait être associé à la matière organique. Les sédiments collectés dans les rivières, dont le bassin versant traverse les schistes noirs du LH ont des rapports isotopiques d'Os élevés ($^{187}Os/^{188}Os \approx 3$). La signature radiogénique persiste dans le Gange. Au contraire, le Brahmapoutre est moins radiogénique, suggérant un apport ophiolitique dans sa région source.

De simples mélanges physiques de schistes noirs du LH avec des produits d'érosion de la haute chaîne requièrent de fortes proportions de schistes noirs pour expliquer les rapports d'Os élevés observés à la sortie de la chaîne. Supposant que nos roches sources et sédiments sont représentatifs du mélange de la région source et des produits d'érosion, cette observation suggère que l'érosion ne pourrait pas se produire à l'état stationnaire. De plus, les calculs de bilan de masse indiquent que 20% de l'Os et 60% du Re sont transportés sous forme dissoute, impliquant que l'érosion chimique joue un rôle important dans le budget de l'Os et du Re. Finalement, le contraste entre les sédiments du Gange et ceux du Cône du Bengale suggère que l'Os radiogénique est transporté par la matière particulaire, puis est remobilisé de manière significative et ainsi influence la composition isotopique d'Os de l'eau de mer.

ELSEVIER

Earth and Planetary Science Letters 176 (2000) 203–218

EPSL

www.elsevier.com/locate/epsl

The Os isotopic composition of Himalayan river bedloads and bedrocks: importance of black shales

Anne-Catherine Pierson-Wickmann *, Laurie Reisberg, Christian France-Lanord

Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques, CNRS 15, rue Notre-Dame des Pauvres, P.O. Box 20, 54501 Vandœuvre-les-Nancy Cedex, France

Received 29 June 1999; received in revised form 21 December 1999; accepted 28 December 1999

Abstract

Re–Os data are presented for bedrocks and bedloads of selected rivers from the Himalayan range, in Central Nepal and Bangladesh. These data demonstrate that the Os isotopic composition of most of the bedrocks is similar to that of the average continental crust. Notable exceptions to this are the black shales from the Lesser Himalaya (LH), which contain large quantities of radiogenic osmium. In the black shales, the Os is not concentrated in the sulfides, and may instead be associated with organic matter. Bedloads collected from rivers which include LH black shales in their catchment basins have notably high Os ratios ($^{187}Os/^{188}Os \approx 3$). This radiogenic signature persists into the Ganga river. In contrast, the Brahmaputra river is less radiogenic, suggesting an ophiolite input in the headwater region. Simple physical mixtures of LH black shales with eroded products from the high range require unreasonably high proportions of black shale to explain the high Os ratios observed at the outflow of the range. Assuming that our bedrock and bedload samples are representative of the source region and the eroded mixture, respectively, this observation suggests that erosion may not be occurring at steady-state. In addition, mass balance calculations indicate that about 20% of the Os and 60% of the Re are carried in dissolved form, implying that chemical erosion plays an important role in the osmium budget. Finally, the contrast in Os isotope ratio between Ganga bedloads and bulk sediments in the Bengal Fan suggests that radiogenic Os carried by particulate matter and later remobilized may significantly influence the Os composition of seawater. © 2000 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

Keywords: erosion; dissolved materials; marine sediments; osmium; Himalayas

1. Introduction

The Os isotopic ratio of seawater has increased dramatically during the Cenozoic Era and particularly during the past 15 Myr [1,2], reaching a current $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of about 1.05 [3,4]. This increase is of interest because variations in the $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of seawater are related in part to the organic carbon cycle [1,5,6] and silicate weathering [1,7]. The causes of this increase are not well known. Three factors control the osmium composition of seawater: (1) continental erosion, which provides radiogenic Os ($^{187}Os/^{188}Os$ of

* Corresponding author. Tel.: +33-38359-4226; Fax: +31-38351-1798; E-mail: annecath@crpg.cnrs-nancy.fr

0012-821X/00/$ – see front matter © 2000 Elsevier Science B.V. All rights reserved.
PII: S0012-821X(00)00003-0

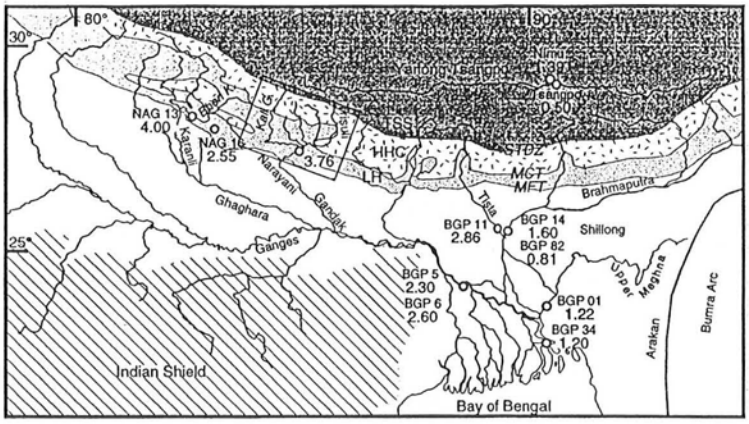

Fig. 1. Map of the Ganga–Brahmaputra river system showing bedload sample locations and $^{187}Os/^{188}Os$ ratios (dots). Rectangle indicates map area of Fig. 2. MFT: Main Frontal Thrust, placing Mio–Pliocene Siwalik foreland basin sediments over the modern Gangetic Plain. MCT: Main Central Thrust, placing the HHC over the LH. STDZ: South Tibetan Detachment Zone, separating the TSS from the HHC.

average upper continental crust = 1.2–1.8 [1,8,9]); (2) submarine alteration of oceanic basaltic crust and abyssal peridotites ($^{187}Os/^{188}Os \sim 0.12$–$0.13$ [10–14]); (3) alteration of cosmic dust ($^{187}Os/^{188}Os \sim 0.12$–$0.13$ [15,16]). The Os isotopic ratio of the oceans is thus controlled by the relative contribution of continental erosion versus submarine alteration or cosmic dust input. While little is known about changes in the intensity of submarine weathering during the Cenozoic, cosmic dust input appears to have been roughly constant during this time period [7]. On the other hand, continental erosion rates were clearly increased during the latter part of this time period by the uplift of the Himalayan range. Thus several authors [1,2] have proposed that the marked rise of the $^{187}Os/^{188}Os$ ratio during the past 15 Myr results at least in part from erosion provoked by the Himalayan collision, in analogy with similar models proposed to explain the seawater Sr isotopic record [17,18].

Recent analyses of black shales from the LH [19] demonstrate that this lithology represents a potential source of radiogenic osmium during Himalayan weathering. A radiogenic signature has also been found in Ganga river water [9], in Ganga river sediment leachates from the Ganga [20] and in leachates of sediments accumulated in the Bengal Fan [21]. In this study, we characterize the Os isotopic composition of river bedloads sampled from major rivers and tributaries in Central Nepal and Bangladesh, as well as potential source rocks in the various formations of the Himalayan range. This allows us to identify the origin of radiogenic Os among the different Himalayan lithologies.

2. The Himalayan range and the Ganga–Brahmaputra river system

The High Himalayan (HH) range can be divided into three main units, separated by major faults [22,23] (Figs. 1 and 2). Moving downstream, i.e. from north to south, these are:

1. the Tethyan Sedimentary Series (TSS), composed primarily of clastic sediments, carbonates, and variably metamorphosed clastic platform sediments of Cambrian to Eocene age. Most of the TSS sediments were deposited in a passive margin environment. Among the silicate rocks, $^{87}Sr/^{86}Sr \leq 0.720$, while ε_{Nd} varies from −16 to −12.
2. the HH Crystalline series (HHC), comprising mostly highly metamorphosed paragneisses and some marbles. HH leucogranite intrusions in the TSS are derived from this formation

(e.g. [24]). HHC is the principal formation exposed on the south flank of the high range. These series are characterized by $^{87}Sr/^{86}Sr \approx 0.750$ and $\varepsilon_{Nd} = -15 \pm 2$.

3. the Lesser Himalaya (LH), mainly composed of metamorphosed metasediments. These include quartzo–pelitic schists, minor black shales and dolomitic limestones. Sr and Nd ratios are indicative of very long crustal residence times. The respective values of ε_{Nd} and $^{87}Sr/^{86}Sr$ are -25 and >0.850.

Directly to the south of the range are located the Siwaliks foothills, a recently uplifted foreland basin sequence composed of continental detrital sediments mostly from the HHC [25]. Their compositions are very similar to those of river bedloads of the modern floodplain.

The Himalayan range is drained by the Ganga–Brahmaputra river system (Fig. 1). The Ganga river drains the southern flank of the range and occupies the large flood plain to the south of the Siwaliks. In the upper part of its course, the Brahmaputra river, referred to in this region as the Yarlong–Tsangpo, drains the Tibetan Plateau and the northern slope of the Himalayan range and flows along the Indus–Tsangpo suture, which is characterized by the presence of a heterogeneous ophiolitic complex. Bedloads of the Tsangpo [26] have lower $^{87}Sr/^{86}Sr$ (0.705–0.715) and higher ε_{Nd} (-10) than the rest of the Himalayan drainage basin [25]. The Brahmaputra then turns sharply near the eastern end of the range and finishes its course by draining the southern slope of the eastern Himalaya. The Ganga and the Brahmaputra join in the Bangladesh Delta, before delivering their sediments to the Bengal Fan, the fastest growing sedimentary fan in the world. Sr, Nd and O isotopic studies [27] suggest that nearly 80% of the sediments that reach the Fan were ultimately derived from the HHC formation, with subordinate contributions from the TSS and the LH. According to Galy and France-Lanord [28], chemical erosion plays only a limited role in both the Ganga and the Brahmaputra rivers: chemical flux represents from 3 to 5% of

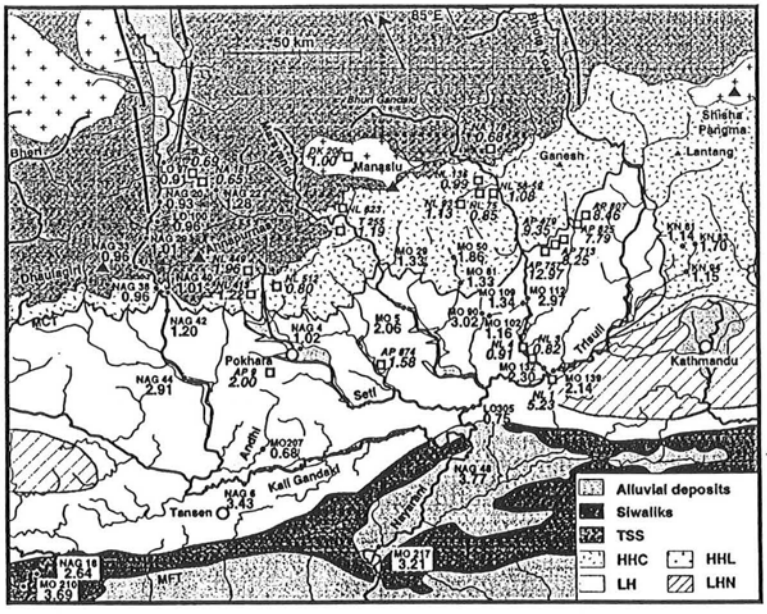

Fig. 2. Geological map of Narayani watershed showing bedload and bedrock sample locations and their $^{187}Os/^{188}Os$ ratios. Open squares represent bedrocks and black dots represent river bedloads. TSS: Tethyan Sedimentary Series, HHC: HH Cristallines, LH: Lesser Himalaya, HHL: High Himalaya Leucogranite, LHN: LH Nappe.

Table 1
Os isotopic compositions and Os and Re concentrations of bedrocks from Central Nepal

Sample	Formation	Lithology	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (ppt)	^{188}Os (10^{-14} mol/g)	[Re] (ppt)	$^{187}Re/^{188}Os$	TOC (wt%)
LA 158	TSS	Sandstone	1.458	20	1.17	1474	423	0.08
LA 194	TSS	Arkose	0.599	197	12.94	8428	220	0.45
NA 178	TSS	Limestone	0.680	59	3.85	1160	101	0.22
NA 181	TSS	Grauwake	0.651	26	1.70	235	47	
NL 449	TSS	Marble	1.965	8	0.45	273	200	
B.S.	TSS	Black shale	0.689	87	5.67	489	29	
B.S. sulfides	TSS	Black shale	0.707	70	4.55			
DK 206[a]	Leucogranite	Granite	≈1	≈1.5		27		
NL 58	HHC-FI	Grauwake	1.080	52	3.25	185	19	0.03
NL 58[b]	HHC-FI	Grauwake	1.103	53	3.28			
NL 59	HHC-FI	Pelite	1.071	18	1.14	169	49	0.02
NL 93	HHC-FI	Orthogneiss	1.132	2	0.14	844	2023	0.04
NL 146	HHC-FI	Gneiss	1.072	5	0.32	552	573	
NL 413	HHC-FI	Gneiss	1.221	14	0.87	343	132	
NL 512	HHC-FI	Gneiss	0.804	23	1.43	1429	334	0.02
NL 75	HHC-FI	Gneiss	0.854	5	0.31	460	492	0.11
NL 136	HHC-FI	Gneiss	0.995	13	0.80	381	160	
NL 623	HHC-FII	Marble				187		
T 255	HHC-FII		1.193	7	0.42	131	105	
FII	HHC-FII	Gneiss	1.629	6	0.35	26	25	
AP 825[a]	LH	Black shale	7.789	96	3.35	4116	413	6.86
AP 9	LH	Sandstone	2.005	22	1.23	852	232	
AP 874[a]	LH	Schist	1.584	30	1.73			0.19
NL 1	LH	Black shale	5.230	528	22.12	7239	110	10.34
NL 2	LH	Black shale	5.754	505	20.34			11.35
NL 2 sulfides	LH	Black shale	2.304	10	0.71			
NL 3	LH	Sandstone	0.826	6	0.37	15	14	0.01
NL 4	LH	Schist	0.908	41	2.62	31	4	0.03
AP 807	LH	Black shale	8.464	202	6.81	769	38	7.11
AP 225	LH	Black shale	8.853	301	9.821			
AP 757	LH	Black shale	12.969	153	3.983			4.28
AP 713	LH	Black shale	8.256	189	6.411			7.55
AP 479	LH	Black shale	9.354	198	6.271			5.37
LOU'S BS	LH	Black shale	14.473	115	2.800			9.61
MB 527	LH	Black shale	3.421	102	4.986			1.69

Unless otherwise indicated, Re–Os analyses were performed by the method of Birck et al. [30].
[a]Analysis by the Carius Tube method [29].
[b]Duplicate by the Birck et al. method.

the total erosional flux and is influenced by several factors, including lithology, climate, vegetation and human activity.

Sample locations are indicated on Figs. 1 and 2. The goal of the sampling was to determine the isotopic signatures of the different formations currently being eroded. In order to characterize the isotopic signature of each of the three geological units, we sampled both bedrocks and river bedloads from small watersheds draining single lithologies. In addition, some samples were taken from larger rivers and include sediments from two or all three formations (TSS, HHC and LH). To determine the characteristics of the total erosional flux, we sampled river bedloads from major basins in Central Nepal (the Kali Gandaki, Trisuli, Marsyandi and the Narayani) which drain about 15% of the range and in Bangladesh for the Ganga and Bramaputra. The majority of the samples were taken during the dry season. In addi-

Table 2
Os isotopic compositions and Os and Re concentrations of bulk river bedloads from Central Nepal

Sample	River	Basin	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (ppt)	^{188}Os (10^{-14} mol/g)	[Re] (ppt)	$^{187}Re/^{188}Os$	TOC (wt%)	$\varepsilon_{Nd}(0)$	[Nd] (ppm)
Tsangpo	Tsangpo		0.501	44	2.94	230	26.28		−10.0	37.8
Nimu	Nimu		1.388	2	0.12	117	326.77			
LO 97	Narsing	TSS	0.907	51	3.26	1009	103.83			
LO 100	Thini	TSS	0.959	64	3.92	1412	121.03			
NAG 20[c]	Kali	TSS	0.929	30	1.88	564	100.78	0.16	−13.9[e]	14.9[e]
NAG 20	Kali	TSS	0.938	29	1.81					
NAG 29	Kali	TSS	1.011	35	2.17	661	102.36	0.13		
NAG 33[a]	Kali	TSS	0.958	45	2.81	2897	345.74	0.24	−17.2[e]	38.4[e]
NAG 22	Marsyandi	TSS	1.283	106	6.46	4326	224.71	0.65	−16.4[e]	49.8[e]
MO 29	Dordi	HHC	1.334	16	0.95	293	103.93			
MO 50	Chepe	HHC	1.856	29	1.65	79	16.08	0.15	−12.4	25.4
MO 81	Khota	HHC	1.326	27	1.64	59	12.15	0.09		
KN 81	Hundi	HHC	1.141	8	0.49	375	255.98			
KN 83	Tadi	HHC	1.699	11	0.65	208	107.45			
KN 94		HHC	1.154	9	0.56	65	39			
MO 102	Masel k.	LH	1.159	11	0.67	485	244.07		−23.8	23.0
MO 109	Mati k.	LH	1.346	7	0.40	45	38.03		−20.7	10.2
MO 109[c]	Mati k.	LH	1.314	7	0.42					
MO 112	Isul k.	LH	2.969	11	0.56	50	29.65	0.09		
NAG 4[a]	Bijaipur	LH	1.019	19	1.18			0.05		
MO 207	Andi k.	LH	0.681	117	7.59	49	2.17	0.32		
NAG 40	Ministi	TSS+HHC	1.011	37	2.31	67	9.73	0.10		
NAG 38	Kali	TSS+HHC	0.959	26	1.66	529	106.82	0.26[d]	−15.9[e]	32.2[e]
NAG 16	Sharda	HHC+LH	2.549	21	1.11					
MO 90	Darondi	HHC+LH	3.022	32	1.62	431	89.16	0.07		
NAG 18	Rapti	Siwaliks	2.636	22	1.15					
MO 210	Ransing	Siwaliks	3.691	19	0.93			0.10		
NAG 13	Bheri	TSS+HHC+LH	3.997	19	0.88				−20.0[e]	22.9[e]
MO 5	Marsyandi	TSS+HHC+LH	2.058	23	1.28	437	114.67	0.13		
MO 132	Bhuri	TSS+HHC+LH	2.300	15	0.82	56	23.01			
NAG 42	Kali	TSS+HHC+LH	1.199	42	2.57	426	55.62	0.26[d]	−16.8[e]	28.9[e]
NAG 44[b]	Kali	TSS+HHC+LH	2.913	24	1.21	550	152.95	0.12	−20.2[e]	24.9[e]
NAG 44	Kali	TSS+HHC+LH	3.244	22	1.10					
NAG 6	Kali	TSS+HHC+LH	3.429	29	1.42	288	68.13	0.13[d]	−18.3[e]	43.0[e]
NAG 6[c]	Kali	TSS+HHC+LH	3.749	26	1.22					
MO 139	Trisuli	TSS+HHC+LH	2.139	13	0.74	179	81.41	0.12		
LO 305	Trisuli	TSS+HHC+LH	0.745	282	18.22	282	5.20			
LO 305[c]	Trisuli	TSS+HHC+LH	0.632	221	14.47					
NAG 48	Narayani	TSS+HHC+LH	3.776	20	0.97	299	103.79	0.09	−18.8[e]	38.7[e]
NAG 48[b]	Narayani	TSS+HHC+LH	3.764	20	0.96					
MO 217	Narayani	TSS+HHC+LH	3.215	16	0.80			0.19		

Unless otherwise indicated, Re–Os analyses were performed by the method of Birck et al. [30].
[a]Analysis by the Carius Tube method [29].
[b]Duplicate by the Carius Tube method.
[c]Duplicate by the Birck et al. method.
[d]Data from K. Pedoja-Mathelin and A.M. Aucour, unpublished.
[e]Data from [25].

Table 3
Os isotopic compositions and Os and Re concentrations of bulk river bedloads from Bangladesh

Sample	River	Location	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (ppt)	^{188}Os (10^{-14} mol/g)	[Re] (ppt)	$^{187}Re/^{188}Os$
BGP 5	Ganges	Rajshahi	2.304	20	1.07	797	249
BGP 6	Ganges	Rajshahi	2.602	6	0.32	114	120
BGP 11	Tista	Kaunia	2.859	8	0.43	1154	898
BGP 14	Brahmaputra	Chilmari	1.596	12	0.73	161	74
BGP 82	Brahmaputra	Chilmari	0.815	18	1.14	803	237
BGP 34	Meghna	Chor Fasson	1.204	29	1.77	680	129
BGP 0	Meghna	Japanese bridge	1.224	8	5.17	275	18

Re–Os analyses were performed by the method of Birck et al. [30].

tion, the Tista river which drains the Sikkim Himalaya was sampled in Bangladesh as well as the Meghna river which drains the Shillong Plateau.

3. Analytical procedures

Each sediment sample was dried at about 60°C. Then all samples (sediment and rock) were disaggregated and ground in an agate mortar. Major and trace elements were measured by ICP–MS and ICP–AES (S.A.R.M.-C.R.P.G., Vandœuvre-lès-Nancy, France).

The samples were spiked for the determination of Re and Os concentrations by isotope dilution. Spikes of Os and Re were prepared in HCl and HNO_3, respectively. All reagents were purified by distillation (except H_2SO_4 and ethanol). Concentrated HNO_3 and Cr^{VI} in HNO_3 were further purified by heating and bubbling of N_2 to remove Os. Between 1 and 4 g of dried sample powder was used for the Re–Os isotopic analyses.

For our initial analyses, we used the Carius Tube method to extract Os and Re. This method is described in detail by Shirey and Walker [29] and our minor modifications are given in Reisberg et al. [21]. However, we soon switched to the procedure of Birck et al. [30], because this allowed us to reduce our blanks by more than a factor of 10, which was important considering the low concentrations of many of our samples. Sample NAG 48 was analyzed by both methods (Table 2): within analytical error, the two results are equal, suggesting that the two methods yield consistent results. The method described by Birck et al. [30], which uses liquid Br_2 to extract Os, was followed quite closely, with the suggested modifications for large sample dissolution. That is, ^{185}Re and ^{190}Os spike were mixed with the sample powder and 12–15 ml of hydrofluoric acid and 1.5 ml of hydrobromic acid in a 60 ml or 120 ml Savillex® digestion vessel. The vessel was then closed, shaken in an ultrasonic bath and heated at about 145°C for 1–2 days. Afterwards, the solution was cooled, but not evaporated. We then continued with step 2 of the Birck et al. [30] procedure. Final purification of Os was performed by the microdistillation technique developed by Roy-Barman [31]. Re was extracted from the aqueous residue remaining after bromine removal with isoamylol (step 5 of the Birck et al. procedure). In addition, the leachable Os fraction of a few samples (Table 4) was determined using the acidic peroxide–sulfuric acid method of Pegram et al. [1].

Osmium analyses were performed by negative thermal ionization mass spectrometry (NTIMS) [32,33] on a Finnigan MAT 262 instrument at CRPG equiped with an electron multiplier and ion counting electronics and an oxygen leak valve. The Pt filaments were outgassed in air at 2 A for several minutes prior to sample loading. Samples were loaded on the filaments at 0.4 A, Ba (in NaOH 0.1 N) was added, and the samples were then flashed at 0.8 A. Os was measured as a molecular species, OsO_3^-. Osmium isotopes were corrected for instrumental mass fractionation by normalizing to $^{188}Os/^{192}Os = 0.32439$ [34]. The reported $^{187}Os/^{188}Os$ ratios were calculated from measured 235/236 ratios. Os standard measure-

ments of aliquots ranging from 6 to 1000 pg yielded $^{187}Os/^{188}Os = 0.17413 \pm 0.00062$ (1σ, $n = 69$) over a 2 year period. Analytical precisions (typically 0.5%) were smaller than the standard reproducibility, and so are not listed in the data tables.

Although some of our earliest Re measurements were made using the NTIMS technique, the majority of Re analyses were performed by ICP–MS (Perkin-Elmer, Elan 5000 and 6000). Re standard measurements yielded $^{187}Re/^{185}Re = 1.7044 \pm 0.0088$ (1σ, $n = 27$). While standard values varied somewhat from day to day, during a single day they usually remained quite constant. Thus $^{187}Re/^{185}Re$ ratios used for isotope dilution calculations were first corrected by normalizing the day's average standard ratio to $^{187}Re/^{185}Re = 1.667$.

Total procedural blanks for the C.T. method were about 5 pg for Os and 50 pg for Re. The blanks for the Birck et al. method, used for nearly all of the samples, were about 0.2–0.4 pg for Os and 30 pg for Re. Several duplicates were analyzed using the Birck et al. method (Tables 1 and 2). The reproducibility of the Os concentration measurements indicates that isotopic equilibration of the Os spike and sample occurred prior to any significant loss of Os. Isotopic differences between duplicate samples varied from 0 to 10% and probably result from minor inhomogenities in the sediments. These variations between powder splits are much smaller than the total range of variation of the samples.

Total organic carbon (TOC) was analyzed on whole-rock sediments and rocks. Samples were first acidified with 2 N HCl in an ultrasonic bath to eliminate carbonate, then rinsed, collected on a silica filter and dried at 80°C. The sample on its filter was then oxidized under vacuum at 950°C with CuO/Cu_2O. The CO_2 released was purified at −120°C, manometrically measured for TOC content, and analyzed on a VG602D mass spectrometer (method described in [35]).

4. Results

4.1. The TSS unit

In the TSS, $^{187}Os/^{188}Os$ varies between 0.60 and 1.97 and the Os concentration ranges from 8 to 196 parts per trillion (ppt) among the source rocks (Table 1). The TSS bedloads (Table 2) display a more homogenous Os signature (~0.95) than the bedrocks. These values are comparable with the average upper crustal sediment values determined by Esser et al. [8]. The leachate of a bedload sample (NAG 33) contained about 50% of the total Os, with an isotopic composition notably less radiogenic than that of the bulk sediment. Generally, the $^{187}Os/^{188}Os$ ratios of source rocks have an average value of 0.65, except for a

Table 4
Comparison of leachate and bulk Os of bedload samples

Sample	River	Basin	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (ppt)	^{188}Os (10^{-14} mol/g)
KN 81, leachate	Hundi	HHC	1.228	2	0.14
KN 81, bulk	Hundi	HHC	1.141	8	0.49
MO 50, leachate	Chepe	HHC	2.573	2	0.13
MO 50, bulk	Chepe	HHC	1.856	29	1.65
NAG 33, leachate	Kali Gandaki	TSS	0.517	22	1.43
NAG 33, bulk	Kali Gandaki	TSS	0.958	45	2.81
NAG 48, leachate	Narayani	TSS+HHC+LH	3.102	8	0.40
NAG 48, bulk	Narayani	TSS+HHC+LH	3.776	20	0.97
BGP 6, leachate	Ganges	Floodplain	2.802	1.3	0.07
BGP 6, bulk	Ganges	Floodplain	2.602	6	0.32
BGP 34, leachate	Meghna	Floodplain	1.586	8	0.48
BGP 34, bulk	Meghna	Floodplain	1.204	29	1.77

Leachates analyzed by the technique of Pegram et al. [20].

marble ($^{187}Os/^{188}Os = 1.97$) with a low Os concentration (8 ppt) and a sandstone ($^{187}Os/^{188}Os = 1.46$). A black shale from the Spiti formation has an Os isotopic composition similar to that of the other bedrocks ($^{187}Os/^{188}Os = 0.69$), and a relatively low Os concentration.

The bedload (Tsangpo) sampled along the Tsangpo river has an unradiogenic Os signature ($^{187}Os/^{188}Os \approx 0.5$) and an Os concentration (44 ppt) comparable to that of TSS bedloads, while a bedload from a tributary of the Tsangpo, Nimu, derived from the Trans Himalayan batholith, has a much higher $^{187}Os/^{188}Os$ ratio (1.39) with a very low Os concentration.

The Re concentrations of the source rocks cover a large range of variation, from 235 ppt to 8.5 parts per billion (ppb), which includes the range of the bedloads. The TSS $^{187}Re/^{188}Os$ ratios vary from 29 to 423, but are generally higher than that inferred for the upper continental crust ($^{187}Re/^{188}Os \sim 48$; [8]). In general, no direct correlation is observed between Re and Os concentrations. Nevertheless, the highest Re concentration is associated with the highest Os concentration, as well as the highest TOC in the bedloads and in the bedrocks.

4.2. The HHC unit

The HHC rocks have $^{187}Os/^{188}Os$ ratios between 0.80 and 1.63, with Os concentrations between 2 and 53 ppt. Two formations (formation I (FI) and FII) have been defined in the HHC [36], though these are sometimes difficult to distinguish. FI, the dominant formation, is characterized by paragneiss with two micas, sillimanite, garnet, and kyanite. The Os isotopic compositions of the eight FI samples are tightly grouped ($^{187}Os/^{188}Os = 1.031 \pm 0.141$) with an average Os concentration of about 17 ppt. FII is composed of calcic paragneiss and marbles containing calcic minerals. The available analyses of FII indicate a somewhat more radiogenic $^{187}Os/^{188}Os$ ratio than that of FI, with a low Os concentration (≈ 6 ppt). One analysis of HH leucogranite, thought to be derived from the partial melting of HHC [37], has an Os concentration of about 1.5 ppt and a $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of about 1. HHC bedloads are somewhat more radiogenic and markedly poorer in Os than those of the TSS, with $^{187}Os/^{188}Os$ varying from 1.14 to 1.85, and concentrations from 8 to 29 ppt. The isotopic ratios are slightly higher and the concentrations lower than those of average upper crustal sediments. Interestingly, the bedload $^{187}Os/^{188}Os$ ratios are higher than those of HHC-FI bedrocks, though these represent the major lithology in the drainage basins. This difference probably reflects a sampling bias, as it was often impossible to collect bedloads and bedrocks in the same locations. Furthermore, many of the bedload samples were collected in the high headwaters of the streams and may thus represent highly localized lithologies. Leaching results from two HHC bedloads (Table 4) indicate that only a small fraction of the Os is in leachable form. The $^{187}Re/^{188}Os$ ratios of the rocks are similar to those of the TSS bedrocks and mostly higher than the proposed value for the upper continental crust, reflecting the low Os concentration of the HHC bedrocks. The bedload $^{187}Re/^{188}Os$ ratios are generally towards the lower end of the bedrock range.

4.3. The LH unit

The LH is much more heterogenous than the other formations. The $^{187}Os/^{188}Os$ ratio varies from 0.8 to 14 among the rocks, while bedload ratios are mostly restricted to the unradiogenic end of this range. The Os concentrations are also extremely variable, ranging from less than 5 to 528 ppt, though most of the samples have concentrations near the low end of this range. This heterogeneity is linked to the lithology. Notably, the rock samples that have the highest Os isotopic ratios, the organic-rich metasediments (black shales), also have the highest Os concentrations. This is consistent with what is observed elsewhere in reducing sediments, which are enriched in Re, and consequently in radiogenic Os [38,39]. The Os isotopic compositions of LH rocks other than black shales are similar to those observed in rocks from the TSS and the HHC, and comparable to the average $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of the erodable continental crust [8]. The TOC of the black shales is variable, ranging from 1 to 11%. In addition to

the nine LH black shale samples analyzed here, a larger database of these rocks is provided by a recent study by Singh et al. [19]. Their samples were collected from both outcrops and underground phosphorite mines in the LH of the western Himalaya (India). Most samples from the western Himalaya are similar to those from Nepal but a few (6 out of 33) have markedly higher Os concentrations (up to 13 500 ppt).

Bedload samples from small rivers in the LH draining basins free of black shales have unradiogenic Os signatures close to that of the average continental crust. In contrast, a bedload (MO 112) which was sampled in a river influenced by black shales has a much higher Os ratio. One sample (MO 207) has a low $^{187}Os/^{188}Os$ ratio (0.68) and a high concentration (117 ppt), which may suggest an Os-rich ultramafic component in its catchment. The $^{187}Re/^{188}Os$ ratios of the LH samples are comparable with those of the other formations. Those of black shales are comparable with those measured by Singh et al. [19].

4.4. Main Himalayan river bedloads

4.4.1. Central Nepal

Samples NAG 40 and NAG 38, which drain both TSS and HHC formations, have $^{187}Os/^{188}Os$ ratios close to 1 and an average [Os] of 30 ppt (Table 2). All other bedloads were collected from rivers that include the LH within their drainage basins (Figs. 2 and 3). These samples all have $^{187}Os/^{188}Os$ ratios between 2.0 and 4.0 (except sample LO 305 from the Trisuli which has a ratio of 0.745). Thus their compositions appear to be strongly influenced by the contribution of relatively rare, but highly radiogenic and Os-rich lithologies located in the LH. The Os concentrations of these sediments are around 20 ppt, suggesting that only small contributions from the radiogenic sources were necessary to completely change the Os isotopic compositions of the bedloads. Leaching results from sample NAG 48 indicate that nearly half of the Os is easily liberated, with an isotopic composition similar to that of the bulk sediment. The anomalously low Os isotopic ratio and high Os concentration of sample LO 305 are similar to those of MO 207, described above, and could indicate a limited contribution from peridotite or pyroxenite.

In addition to the above samples, which were all collected within the Narayani watershed, we analyzed three samples from other drainage basins. These samples (NAG 18, MO 210, NAG 13; Fig. 1) were collected in the Siwaliks foothills, and should thus include contributions from all three major Himalayan formations. The Os isotopic ratios obtained (2.6, 3.7 and 4.0) are all highly radiogenic and consistent with those measured near the outflow of the Narayani basin. This suggests that the results obtained from our intensive study of the Narayani watershed are probably applicable to the neighboring basins as well.

4.4.2. Bangladesh

Seven sediments from the Indo–Gangetic Plain were analyzed (Table 3). Samples BGP 5 and BGP 6 were collected at the same location in the Ganga (Fig. 1), but differ in grain size, with the finer grained sample (BGP 5) having much higher Re and Os concentrations. These samples have $^{187}Os/^{188}Os$ ratios (2.3 and 2.6) that are consistent with estimates of the Os isotopic ratio of Ganga river water, based both on direct measurement [9] and on sediment leachates [20]. The Ganga bedloads, though quite radiogenic ($^{187}Os/^{188}Os = 2.3–2.6$), are less so than most bedloads collected at the outflow of the Range ($^{187}Os/^{188}Os = 3.2–3.8$). This difference may be partially explained by the influence of southern Ganga tributaries draining the Deccan Traps, which likely have mantle-like Os isotopic compositions; but the Deccan contribution probably cannot explain the whole difference.

A sample collected from the Tista river (BGP 11), just before its confluence with the Brahmaputra, yields a radiogenic value (2.86) similar to those measured in the Ganga. In contrast, two samples from the Brahmaputra (BGP 14 and BGP 82) have Os isotopic ratios of about 0.81 and 1.60, much lower than any value measured in the Central Nepal samples at the outflow of the Range. A bedload sample from the Meghna river, which drains the Shillong Plateau, yields a $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of 1.22, comparable with the average value of the erodable continental crust

[8]. In the delta, one sample (BGP 34) has an $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of 1.20 and an Os concentration of 29 ppt, less radiogenic and more concentrated than the other sediments from Bangladesh. This sample is from the tidal zone and thus may have interacted with seawater.

4.5. Organic carbon

The river bedloads have TOC contents ranging from 0.05% to 0.6%. Nearly all of the samples with more than 0.2% TOC were dominated by the TSS formation (Tables 1 and 2). A positive covariation exists between [Os] and TOC (Fig. 4). The correlation of bedload and bedrock TOC content with Os concentration suggests that Os is strongly linked to fossil organic carbon matter. This is consistent with the hypothesis that the Os in the sediments is largely derived from organic-rich rocks, such as black shales. Os data on sulfides from two black shales (one from the LH, another from the TSS; Table 1) suggest that only a minor amount of Os is hosted by these phases. This is consistent with the results of Cohen et al. [40] who found that Re and Os abundances of pyrite nodules in Jurassic black shales are lower than that of the associated bulk organic-rich sediments. Thus the Os is probably directly associated with organic matter in these rocks.

5. Discussion

Two trends are evident in the distribution of the Os isotopic ratios of river bedloads and bedrocks (Fig. 3). One of these, composed mainly of samples from the TSS formation, is defined by a variable Os concentration at roughly constant $^{187}Os/^{188}Os$ ratio, similar to that of the average erodable continental crust [8]. The second trend is towards markedly higher Os isotopic ratios at only slightly increasing Os concentration. This trend implies the addition of a highly radiogenic component. Bedrock data and stream sediment systematics suggest that the rocks most likely supply such radiogenic Os are the LH black shales.

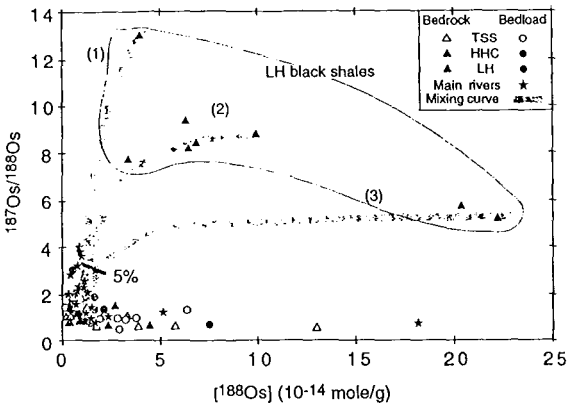

Fig. 3. Os isotopic composition ($^{187}Os/^{188}Os$) of bedload and bedrock samples of the Himalayan range and Bangladesh versus ^{188}Os abundance. $^{187}Os/^{188}Os$ ratios plot along two different trends: one at a roughly constant Os ratio (1.2) and the second towards radiogenic Os ratio with slightly increasing Os concentration. The Os ratios of bedloads at the outflow of the range, which are the most radiogenic, require the addition of LH black shales. Curves represent mixtures between LH black shales and an average of the HH ($^{187}Os/^{188}Os = 1.2$ and [Os] = 24 ppt). Curves (1), (2) and (3) were calculated using extreme and typical values of black shales from this study (Table 1: (1) NL 2, (2) AP 807, (3) AP 757). An average contribution of 4% of black shales is required to explain the radiogenic Os ratios of bedloads collected at the outflow of the range (black line on the figure represents 5%). This proportion is not sensitive to the particular black shale chosen as the mixing end-member.

5.1. The role of physical erosion

In order to test whether the bedload samples of the major rivers represent simple physical mixtures of black shales with other less radiogenic lithologies, we examined mixing relationships in the Os, Nd and organic carbon systems. The mixing curves in Fig. 3 represent direct physical mixtures between LH black shales and an average of the HH rocks ($^{187}Os/^{188}Os \sim 1.2$ and [Os] $\sim$ 24 ppt, assuming 80% of HHC and 20% of TSS). In terms of Os characteristics, non-black shale LH and HH are effectively equivalent. Thus the bedloads can be regarded as mixtures of two end-members: non-black shale LH+HH and the LH black shales. Curves (1), (2) and (3) are based on mixing with black shale samples NL 2, AP 807 and AP 757. These curves require a contribution of about 4% of black shale for nearly all bedloads

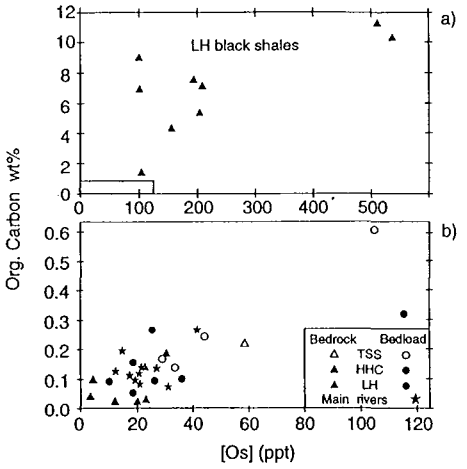

Fig. 4. Positive covariation of TOC (wt%) with bulk osmium concentration (ppt) of river bedloads and bedrocks. Note the scale change at 1% TOC. (b) This is an expanded view of the rectangle in (a).

sampled at the outflow of the range, for example those from the Narayani river (NAG 48, MO 217). This percentage does not depend strongly on the particular black shale used to represent the radiogenic end-member. Bedloads collected upstream (e.g. MO 5, NAG 42...) generally require lower contributions. Black shale proportions of 4% seem unlikely for two reasons. First, LH black shales represent only a minor lithology at the scale of the basin, lower than 1%, based on examination of the geologic map. Second, such a high black shale proportion is inconsistent with the TOC of the highly radiogenic bedloads, which all contain less than 0.2% TOC (Tables 1 and 2, Fig. 4). The LH black shales contain 1–11% TOC (average ≈ 7%), suggesting that bedloads with 4% black shale should contain about 0.3% TOC.

The problem becomes even more evident when Os and Nd isotopes are combined, as shown in Fig. 5. In this diagram, the white star represents the average LH composition, assuming a black shale proportion of 1%, which is a generous estimate. Nearly all of the bedloads plot well above the mixing curve between this average LH end-member and the HHC+TSS field.

As previously inferred [25], the Nd compositions can be explained by the addition of about 10–50% of LH material to a HH component. However, the Os isotopes require that the LH end-member contains implausibly high contents of black shales.

Several hypotheses may be proposed to resolve this problem.

1. The sampling of source rocks is not representative. Lithologies other than black shales, such as carbonates, which have not been extensively sampled may provide important sources of radiogenic Os. One carbonate from the TSS (NA 178), though unradiogenic, contains substantial quantities of Os. Alternatively, the average black shale Os concentration could be higher than shown by our sampling. The physical mixing model could work if an end-member existed that was much richer in Os or more radiogenic, but only one of the 44 LH black shale samples analyzed to date (Table 4, [19]) has the required characteristics. Finally,

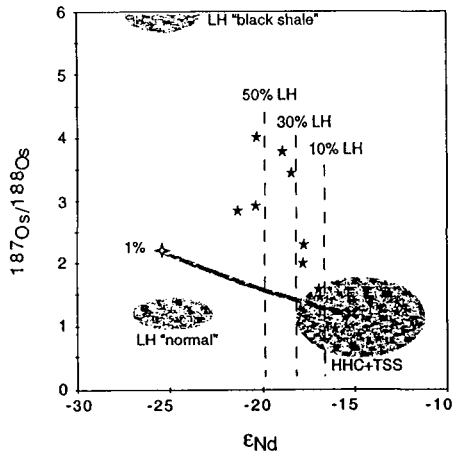

Fig. 5. ε_{Nd} vs. $^{187}Os/^{188}Os$ of bedloads and bedrocks from Central Nepal and Bangladesh. Curve represents mixture between average HH-eroded material ($^{187}Os/^{188}Os = 1.21$ and [Os] = 24 ppt; $\varepsilon_{Nd} = -15$ and [Nd] = 30 ppm) and average LH sediments (white star). This average LH value represents a mixture of 99% non-radiogenic LH material ($^{187}Os/^{188}Os = 1.17$, [Os] = 13 pg/g and $\varepsilon_{Nd} = -25$, [Nd] = 30 ppm) and 1% LH black shale NL 2 ($\varepsilon_{Nd} = -25.5$ and [Nd] = 29 ppm; $^{187}Os/^{188}Os = 5.75$ and [Os] = 505 ppt) (Os in Table 1). The vertical lines represent the proportion of LH material required by the Nd isotopes. This graph demonstrates that the LH component must contain much more than 1% black shale in order to match the data.

Os may have been lost from our black shale samples during weathering. However, no relation is observed between sample freshness and Os concentration.

2. Bedloads are not representative of the average eroded mixture. Taking into account pebbles would lower the Os isotopic ratio of the river flux because black shales are not sufficiently resistant to form pebbles. However, resolution of the mass balance problem would require a pebble flux four times higher than that of the bedload, which is unlikely. Other riverine fluxes (suspended and dissolved loads) are likely to be at least as radiogenic as the bedloads and would thus aggravate the mass balance problem.
3. Erosion is not a steady-state process for Os, at least at the temporal and spatial scale of the Narayani basin. The present period could be marked by preferential physical erosion of weak lithologies such as black shales or by preferential leaching of Os and/or radiogenic Os [41] during weathering. Such a period should be counterbalanced by more extensive erosion of the non-radiogenic components left behind. This hypothesis is attractive because it may explain why the Ganga river bedloads, which reflect averaging over longer time periods, are less radiogenic than those collected at the range outflow. Nevertheless, there are some problems with a non-steady-state hypothesis. Preferential physical erosion is not supported by field evidence or by the low TOC of the bedloads. Preferential leaching of Os requires subsequent precipitation or absorption of dissolved Os onto the bedload, which would be concentrated in leachable phases such as Fe, Mn hydroxides. However the small proportions of leachable Os in the bedloads (Table 4) argue against this possibility.

None of the above hypotheses offers a completely satisfactory explanation of the apparent overrepresentation of black shales in the bedloads at the outflow of the Himalayan range. In order to resolve this apparent paradox, a more complete dataset, including the suspended and dissolved loads, is needed.

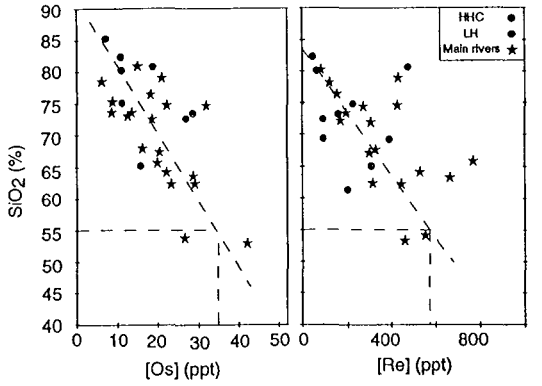

Fig. 6. SiO_2 versus [Os] and [Re] (pg/g). The intersection of the dashed lines represents the estimated average Os (35 ppt) and Re (570 ppt) abundances of suspended river load assuming a SiO_2 content of 55% [25].

5.2. Dissolved and particulate Os and Re fluxes

A simple mass balance calculation suggests that a relatively high proportion of Os is transported in the dissolved load, derived from chemical weathering. Recent results from Levasseur et al. [9] show that Ganga river water, collected at the same location as bedload samples BGP 5 and BGP 6, has an Os concentration of about 12 pg/l and an isotopic ratio slightly more radiogenic than that of BGP 6. The Re concentration in Ganga water (1.7 ng/l) was determined by Colodner et al. [42]. Based on the Ganga water flux of 4.9×10^{11} m^3/yr [43], the Ganga delivers about 5.9 kg/yr of dissolved Os and 828 kg/yr of dissolved Re to the oceans. The total particulate flux from the Ganga river consists of the suspended load, the bedload and the sediment deposited in the floodplain. Together, these latter two fluxes are roughly equivalent in magnitude to the suspended load [25,44]. We assume that the average Re and Os contents of floodplain sediments are similar to those of the bedloads (375 and 15 ppt, respectively). Suspended load Os and Re concentrations are estimated at 35 ppt and 570 ppt, respectively, based on their [SiO_2] of 55% [25] and the [SiO_2] vs. [Os] and [Re] relationships (Fig. 6). This represents a flux of 15.4 kg Os/yr and 296 kg Re/yr for the suspended load and 6.6 kg Os/yr and 195 kg Re/yr for the bedloads and sediments deposited in the floodplain. The total particulate flux of

the Ganga thus carries about 22.0 kg Os/yr and 1300 kg Re/yr. This implies that about 20% of the total erosional flux of Os and 60% of Re are in dissolved form. These proportions are comparable to that of Ca ($\approx$40%) which is considered to be a very soluble element. Given the fact that the Himalayan ratio of chemical to total erosion is among the lowest in the world [28], this is a remarkably high proportion. This calculation suggests that large fractions of Os and Re are mobilized during the weathering process. This in turn implies that physical mixing models are too simplistic and that chemical weathering plays an important role in the Os budget during Himalayan erosion.

5.3. Brahmaputra

The Brahmaputra bedloads (BGP 14 and BGP 82) are much less radiogenic than those of the Ganga. Several explanations may be proposed for this difference. One possibility is that the geology of the Himalayan range may vary from east to west. This hypothesis is however not supported by the occurrence of black shales in the LH of Buthan [45]. A second possibility is that the Brahmaputra samples include a large component of sediment derived from the Shillong Plateau, but this is not supported by available river data [46]. Alternatively, the low Os isotopic ratios could reflect erosion in the Yarlung Tsangpo basin. Outcrops of ophiolite occur within the Tsangpo river channel, and a sediment sample from this river has a low Os ratio of 0.5 (Table 2). In addition, ophiolites occur in the northeastern corner of India, where the Tsangpo river meets the Brahmaputra. It is clear from plate reconstructions that the suture zone must lie in this region.

5.4. Potential contribution of sediment-carried Os to the marine Os budget

Mass balance calculations [3,20] suggest that 50–80% of marine Os is of continental origin. While much of this Os is delivered in dissolved form, it is possible that significant Os is derived from mobilization of Os carried by sediments. If this is true, Himalayan river bedloads may provide an important source of radiogenic Os to the world's oceans. An earlier study [21] of clastic sediments taken from a borehole in the distal portion of the Bengal Fan (ODP leg 116) showed that the $^{187}Os/^{188}Os$ ratios of the bulk sediments ranged from 0.3 to 1.3. These ratios are markedly less radiogenic than those of the Ganga river bedloads ($^{187}Os/^{188}Os = 2.3$ and 2.6) and of the bedloads collected at the outflow of the range (3.2–3.8). The relatively low ratios of Bengal Fan bulk sediments have been confirmed by more extensive analyses (Pierson-Wickmann et al., in preparation). A difference also exists in the Os concentration: the Fan sediments are quite enriched in Os, varying from 64 ppt to 108 ppt, while those from the Ganga have Os concentrations between 6 and 20 ppt.

Several factors may explain the difference in the Os isotopic ratio between the Ganga and the Fan. The addition of less radiogenic Brahmaputra sediments, which have Os isotopic ratios comparable to those of the Fan sediments, clearly plays an important role, but cannot explain the entire difference. A contribution from a non-Himalayan source may also be considered, though Sr and Nd data suggest that such contributions are quite limited, and have remained fairly contrast over time [27]. A further possibility is that the mineralogical sorting most probably responsible for the difference in concentration also produced a difference in Os isotopic ratios. However, it is unlikely that the fine-grained Bengal Fan sediments would have lower $^{187}Os/^{188}Os$ ratios than the coarser fraction present in the bedloads. A final possible explanation is that the highly radiogenic osmium, ultimately derived from black shale weathering, has been removed from the Fan sediments. This could occur either prior to marine deposition by exchange with seawater in the estuary [47] or during transport, or post-depositionally, in the hydrothermal circulation system existing in the Fan [48]. If such remobilization is possible, then Os carried by river sediments would provide an important source of Os in ocean water.

5.5. Summary and conclusions

Os isotopic compositions and Re and Os con-

centrations have been determined in bedrocks and river bedloads from major rivers in the Himalayan range and in Bangladesh. Several features have been emphasized:

1. Bedloads and bedrocks from the TSS and HHC formations, as well as most LH samples, have quite similar Os isotopic compositions, close to that of the average continental crust, though their Os concentrations are generally lower than the average crustal value. In contrast, LH black shales have much higher $^{187}Os/^{188}Os$ ratios (up to 14) and high Os concentrations. When such rocks are present in the catchment basin, the Os isotopic composition of the bedloads is strongly influenced (for example MO 112). Sulfides separated from black shales have relatively low Os concentrations, indicating that they are not the major host of Os in these rocks.
2. Bedload samples collected at the outflow of the range have very high $^{187}Os/^{188}Os$ ratios (up to 3.8), clearly reflecting the influence of a radiogenic Os source, such as LH black shales. Ganga river bedloads have slightly lower $^{187}Os/^{188}Os$ ratios (2.3 and 2.6), but are still strongly marked by the black shale contribution. In contrast, Brahmaputra samples have lower $^{187}Os/^{188}Os$ ratios, which may result from a significant ophiolite input in the headwater region.
3. While it is clear that highly radiogenic rocks, such as black shales, are needed to explain the high Os ratios of the Himalayan outflow bedloads, simple mixing models between such rocks and other HH lithologies require implausibly high black shale proportions in the drainage basins. Assuming that our sampling of potential source rocks is representative, and that the bedloads adequately reflect the eroded mixtures, it seems likely that a non-steady-state erosion process is required, at least at the temporal and spatial scale of the Narayani basin.
4. The high fractions of Os and Re carried in dissolved form in the Ganga river (20% and 60%, respectively) underline the importance of chemical weathering processes.
5. The large contrast in Os isotopic ratio between the Ganga bedloads and bulk sediments in the Bengal Fan may indicate that radiogenic Os carried by the sediments is mobilized by exchange with seawater or by hydrothermal circulation. If this is true, Os delivered by river sediments may play an important role in the marine Os budget.

There are still too many uncertainties to quantify with confidence the effect of Himalayan erosion on the marine Os isotopic record. However, it is clear that rare lithologies, such as black shales, may largely control the $^{187}Os/^{188}Os$ of erosional products carried in both solid and dissolved form, and thus may strongly influence the Os composition of seawater.

Acknowledgements

We thank L. Brown, A. Gajurel, P. Le Fort and A. Pêcher for providing samples from various locations. We also thank C. Spatz for technical assistance and A. Galy for numerous discussions. The advice of J.-L. Birck and F. Capmas in setting up the chemical procedure is greatly appreciated. Reviews by Drs. R. Oxburgh and S. Krishnaswami were very constructive and helped to improve the manuscript considerably. This study was supported by CNRS Programs PROSE and PNSE. This is Contribution No. CRPG 1445 and INSU PNSE 210.*[AH]*

References

[1] W.J. Pegram, S. Krishnaswami, G.E. Ravizza, K.K. Turekian, The record of sea water $^{187}Os/^{186}Os$ variation through the Cenozoic, Earth Planet. Sci. Lett. 113 (1992) 569–576.

[2] B. Peucker-Ehrenbrink, G. Ravizza, A.W. Hofmann, The marine $^{187}Os/^{186}Os$ record of the past 80 million years, Earth Planet. Sci. Lett. 130 (1995) 155–167.

[3] M. Sharma, D.A. Papanastassiou, G.J. Wasserburg, The concentration and isotopic composition of osmium in the oceans, Geochim. Cosmochim. Acta 61 (1997) 3287–3299.

[4] S. Levasseur, J.-L. Birck, C.J. Allègre, Direct measurement of femtomoles of osmium and the $^{187}Os/^{186}Os$ ratio in seawater, Science 282 (1998) 272–274.

[5] G. Ravizza, B.K. Esser, A possible link between the sea-

water osmium isotope record and weathering of ancient sedimentary organic matter, Chem. Geol. 107 (1993) 255–258.

[6] G. Ravizza, G.M. McMurtry, Osmium isotopic variations in metalliferous sediments from the East Pacific Rise and the Bauer Basin, Geochim. Cosmochim. Acta 57 (1993) 4301–4310.

[7] B. Peucker-Ehrenbrink, Accretion of extra-terrestrial matter during the last 80 million years and its effects on the marine osmium isotope record, Geochim. Cosmochim. Acta 60 (1996) 3187–3196.

[8] B.K. Esser, K.K. Turekian, The osmium isotopic composition of the continental crust, Geochim. Cosmochim. Acta 57 (1993) 3093–3104.

[9] S. Levasseur, J.-L. Birck, C.J. Allègre, Osmium concentration and isotopic composition in major world river waters, Terra Abstr. 11 (1999) 231.

[10] C.J. Allègre, J.-M. Luck, Osmium isotopes as petrogenetic and geological tracers, Earth Planet. Sci. Lett. 48 (1980) 148–154.

[11] C.E. Martin, Osmium isotopic characteristics of mantle-derived rocks, Geochim. Cosmochim. Acta 55 (1991) 1421–1434.

[12] M. Roy-Barman, C.J. Allègre, $^{187}Os/^{186}Os$ ratios of mid-ocean ridge basalts and abyssal peridotites, Geochim. Cosmochim. Acta 58 (1994) 5043–5054.

[13] J.E. Snow, L. Reisberg, Os isotopic systematics of the MORB mantle: results from altered abyssal peridotites, Earth Planet. Sci. Lett. 133 (1995) 411–421.

[14] I.J. Parkinson, C.J. Hawkesworth, A.S. Cohen, Ancient mantle in a modern arc osmium isotopes in Izu-Bonin-Mariana forearc peridotites, Science 281 (1998) 2011–2013.

[15] E. Anders, N. Grevesse, Abundances of the elements: Meteoritic and solar, Geochim. Cosmochim. Acta 53 (1989) 197–214.

[16] J.W. Morgan, Osmium isotope constraints on Earth's late accretionary history, Nature 317 (1985) 703–705.

[17] M.R. Palmer, J.M. Edmond, The strontium isotope budget of the modern ocean, Earth Planet. Sci. Lett. 92 (1989) 11–26.

[18] S. Krishnaswami, J.R. Trivedi, M.M. Sarin, R. Ramesh, K.K. Sharma, Strontium isotopes and rubidium in the Ganga-Brahmaputra river system: Weathering in the Himalaya, fluxes to the Bay of Bengal and contributions to the evolution of oceanic $^{87}Sr/^{86}Sr$, Earth Planet. Sci. Lett. 109 (1992) 243–253.

[19] S.K. Singh, J.R. Trivedi, S. Krishnaswami, Re-Os isotope systematics in black shales from the Lesser Himalaya: their chronology and role in the $^{187}Os/^{188}Os$ evolution of seawater, Geochim. Cosmochim. Acta 63 (1999) 2381–2392.

[20] W.J. Pegram, B.K. Esser, S. Krishnaswami, K.K. Turekian, The isotopic composition of leachable osmium from river sediments, Earth Planet. Sci. Lett. 128 (1994) 591–599.

[21] L. Reisberg, C. France-Lanord, A.-C. Pierson-Wickmann, Os isotopic compositions of leachates and bulk sediments from the Bengal Fan, Earth Planet. Sci. Lett. 150 (1997) 117–127.

[22] P. Le Fort (1989) The Himalayan orogenic segment, in: A.M.C. Sengör (Ed.), Tectonic Evolution of the Tethyan Region, Kluwer Academic Plublishers, pp. 289–386.

[23] B.N. Upreti and P. Le Fort, Lesser Himalayan Crystalline nappes of Nepal: problems of their origin, in: A. MacFarlane, R.B. Sorkhabi and J. Quade (Eds.), Himalaya and Tibet: Mountain Roots to Mountain Tops, GSA special paper (in press).

[24] P. Le Fort, Manaslu leucogranite: a collision signature of the Himalaya. A model for its genesis and emplacement, J. Geophys. Res. 86 (1981) 10545–10568.

[25] A. Galy, Etude Géochimique de l'Érosion Actuelle de la Chaîne Himalayenne, Institut National Polytechnique de Lorraine, Doctorat de l'INPL, 1999.

[26] N. Harris, M. Bickle, H. Chapman, I. Faichild, J. Bunbury, The significance of Himalayan rivers for silicate weathering rates: evidence from the Bhote Kosi tributary, Chem. Geol. 144 (1998) 205–220.

[27] C. France-Lanord, L.A. Derry and A. Michard, Evolution of the Himalaya since Miocene time: isotopic and sedimentological evidence from the Bengal Fan, in: P.J. Treloar and M.P. Searle (Eds.), Himalayan Tectonics, Geological Society Special Publication, 1993, pp. 603–621.

[28] A. Galy, C. France-Lanord, Weathering processes in the Ganges-Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget, Chem. Geol. 159 (1999) 31–60.

[29] S.B. Shirey, R.J. Walker, Carius tube digestion for low-blank rhenium-osmium analysis, Anal. Chem. 67 (1995) 2136–2141.

[30] J.-L. Birck, M. Roy-Barman, F. Capmas, Re-Os isotopic measurements at the femtomole level in natural samples, Geostand. Newsl. 20 (1997) 19–27.

[31] M. Roy-Barman, Mesure du rapport $^{187}Os/^{186}Os$ dans les basaltes et les péridotites: Contribution à la systématique ^{187}Re-^{187}Os dans le manteau, Paris VII, Ph.D. Thesis, 268, 1993.

[32] R.A. Creaser, D.A. Papanastassiou, G.J. Wasserburg, Negative thermal ion mass spectrometry of osmium, rhenium, and iridium, Geochim. Cosmochim. Acta 55 (1991) 397–401.

[33] J. Völkening, T. Walczyk, K.G. Heumann, Osmium isotope ratio determinations by negative thermal ionisation mass spectrometry, Mass Spectrom. Ion Process. 105 (1991) 147–159.

[34] A. Nier, The isotopic compositon of osmium, Phys. Rev. 52 (1937) 885.

[35] C. France-Lanord, L.A. Derry, $\delta^{13}C$ of organic carbon in the Bengal Fan: source evolution and transport of C3 and C4 plant carbon to marine sediments, Geochim. Cosmochim. Acta 58 (1994) 4809–4814.

[36] M. Colchen, P. Le Fort and A. Pêcher, Notice Explicative de la Carte Géologique Annapurna-Manaslu-Ganesh (Himalaya du Népal) au 1:200000e, Centre National de la Recherche Scientifique, Paris, 1986.

[37] C. France-Lanord, P. Le Fort, Crustal melting and granite genesis during the Himalayan collision orogenesis, Trans. R. Soc. Edinb. Earth Sci. 79 (1988) 183–195.

[38] M. Koide, E.D. Goldberg, S. Niemeyer, D. Gerlach, V. Hodge, K.K. Bertine, A. Padova, Osmium in marine sediments, Geochim. Cosmochim. Acta 55 (1991) 1641–1648.

[39] G.E. Ravizza, Rhenium-osmium geochemistry of modern and ancient organic-rich sediments, Yale, Ph.D. Thesis, 245, 1991.

[40] A.S. Cohen, A.L. Coe, J.M. Bartlett, C.J. Hawkesworth, Precise Re-Os ages of organic-rich mudrocks and the Os isotope composition of Jurassic seawater, Earth Planet. Sci. Lett. 167 (1999) 159–173.

[41] B. Peucker-Ehrenbrink, R.E. Hannigan, Continental sources of radiogenic Os to seawater - Black shales or crystalline basement?, Terra Abstr. 11 (1999) 231.

[42] D. Colodner, J. Sachs, G. Ravizza, K. Turekian, J. Edmond, E. Boyle, The geochemical cycle of rhenium: a reconnaissance, Earth Planet. Sci. Lett. 117 (1993) 205–221.

[43] K.L. Rao, India's Water Wealth, Orient Longman limited, New Delhi, 1979, p. 267.

[44] ISPAN, A Study of Sedimentation in the Brahmaputra-Jamuna floodplain, 1995.

[45] A. Gansser, Geology of the Bhutan Himalaya, in: Mém. Sco. Helv. Sci. Nat., Birkhaüser Verlag, Bâle, 1983.

[46] D.C. Goswami, Brahmaputra river, Assam India: physiography, basin denudation and channel aggradation, Water Resour. Res. 21 (1985) 959–978.

[47] D. Porcelli, M. Sharma, G.J. Wasserburg, The Behaviour of Os in the Columbia River estuary, Mineral. Mag. 62A (1998) 1202–1203.

[48] A. Ormond, J. Boulègue, P. Genthon, A thermoconvective interpretation of heat flow data in the area of Ocean Drilling Program Leg 116 in a distal part of the Bengal Fan, J. Geophys. Res. 100 (1995) 8083–8095.

III. Une autre source d'Os radiogénique : les carbonates

Les données acquises ont mis en évidence que peu de lithologies dans la chaîne himalayenne sont susceptibles d'apporter de l'Os radiogénique dans le système des rivières du Gange-Brahmapoutre. Le budget d'Os des rivières allant aux océans semble être contrôlé par la seule lithologie riche en Os radiogénique identifiée : les schistes noirs du LH. Néanmoins, sur la base de la concentration en carbone organique des sédiments et de la faible importance des schistes noirs par rapport aux autres formations, la seule formation des schistes noirs du LH n'est pas suffisante pour expliquer la composition isotopique des sédiments échantillonnés à la sortie de la chaîne. Les teneurs élevées en Re et en Os de certains carbonates des TSS et une tendance positive entre la [Os] et $^{187}Os/^{188}Os$ et la teneur en carbonates des sédiments de rivière (Figure 5) nous a conduit à considérer l'hypothèse que les carbonates pourraient jouer un rôle significatif dans le budget d'Os et de Re. Si certains auteurs s'accordent à dire que les carbonates ne sont pas une source majeure d'Os ou de Re (Reusch *et al.*, 1998), Levasseur (1999) montre que les carbonates sont une source significative de l'Os dissous. Les analyses de carbonates provenant des trois formations montrent que cette lithologie doit être prise en compte dans le budget de Re et d'Os continental. Nous avons donc réalisé en roche totale des analyses isotopiques d'Os sur quelques échantillons de marbres impurs du LH et quelques schistes noirs supplémentaires.

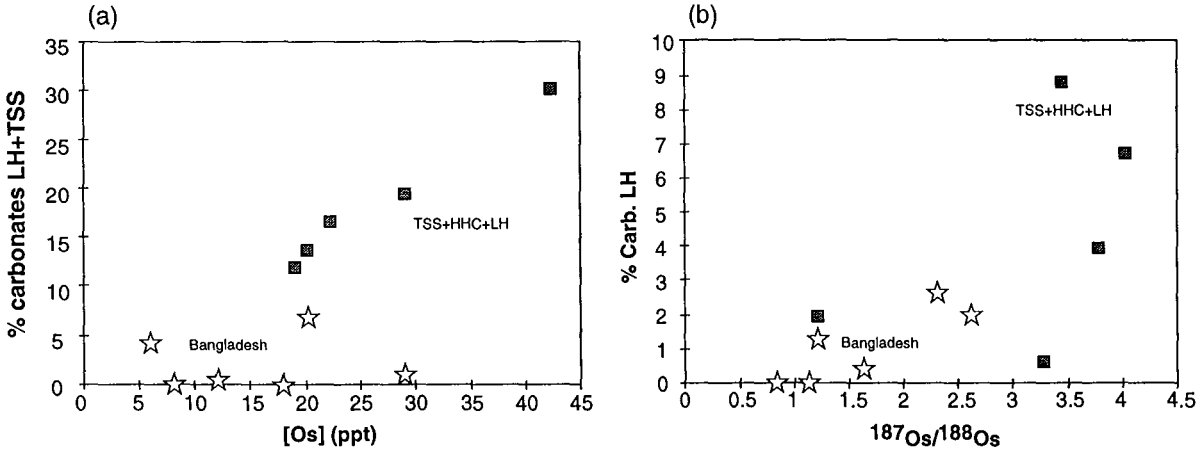

Figure 5 : Variation de la concentration en Os en fonction de la proportion en carbonates des TSS+LH (a) et variation de $^{187}Os/^{188}Os$ de sédiments de rivière en fonction de leur teneur en carbonates du LH (b) des sédiments de rivières traversant le LH. La proportion de carbonates du LH a été calculée à partir des données isotopiques de Sr de la fraction carbonatée des sédiments. Nous avons supposé un mélange de carbonates des TSS ($^{87}Sr/^{86}Sr$=0.720 et [Sr]=700 ppm) et de carbonates du LH (($^{87}Sr/^{86}Sr$=0.730 et [Sr]=120 ppm)), d'après les données de Galy et al. (1999).

III.A. Les données de départ

La minéralogie des carbonates des TSS est dominée par la calcite, alors que celle des carbonates du LH est plutôt dominée par la dolomite. Les carbonates des différentes formations peuvent être distingués sur la base de trois systèmes isotopiques (O, C et Sr) (Galy, 1999). Le Tableau 2 résume les données isotopiques de Sr de la fraction carbonatée disponibles, ainsi que les proportions de carbonates des échantillons. Les carbonates des TSS et de la HHC ont en moyenne des rapports $^{87}Sr/^{86}Sr$ plus radiogéniques que les carbonates marins, mais moins radiogéniques que les carbonates du LH. La concentration en Sr des carbonates du LH (22-363 ppm ; Galy (1999) et Singh *et al.* (1998)) est moins importante que celle des carbonates des TSS (500-1000 ppm ; Galy (1999)).

Tableau 2 : Composition isotopique en Sr des carbonates du LH et des TSS au Népal Central (d'après Galy *et al.* (1999))

Echant.	Formation	Lithologie	Ct %	Dol %	Sr (ppm)	Rb (ppm)	$^{87}Sr/^{86}Sr$	C. org (%)
NA 178	TSS	Calcaire	62.0	10.9	1600	49.5	0.7079	0.22
NL 449	TSS	Calcaire	-	-	773	46	0.7119	-
T 255	HHC	Marbre	-	-	832	-	0.7152	-
NL 623	HHC	Marbre	-	-	773	5	0.7141	-
F II	HHC	Gneiss	0.76	0.02	101	-	0.7178	-
DA 15	LH	Calcaire	68.9	1.49	76.4	-	0.7175	-
AP 207	LH	Dolomie	12.7	47.0	53.3	53.3	0.8572	0.009
AP 811	LH	Dolomie	31.5	31.0	54.8	10.3	0.7464	0.023
AP 865	LH	Dolomie	12.5	58.0	41.0	24.1	0.7587	0.030
AP 867	LH	Dolomie	17.0	65.0	28.0	17.7	0.7395	0.003

III.B. Les échantillons utilisés

Les échantillons peuvent être différenciés sur la base de leur localisation dans le LH. Les roches AP proviennent d'affleurement du MPS (Figure 6). Les autres échantillons du LH sont reliés à une mine de Pb-Zn (Lari) située au nord de la vallée de la Trisuli (Figure 7). Cette mine est située dans le massif du Ganesh Himal, à environ 4250 m d'altitude, dans la

vallée de la Mailung Khola. Ces échantillons permettent d'analyser les relations entre les roches carbonatées et les schistes noirs. Les minéralisations des sulfures de Pb et de Zn sont confinées dans une gangue dolomitique saccharoïde cristalline blanche. Les principaux sulfures sont la sphalérite, la pyrite, la chalcopyrite ou la pyrrhotite. Des oxydes de Fe comme la magnétite sont aussi trouvés. Les échantillons B9, B12 et B15-SU11 sont des carottes de prospection prélevées sur l'indice de Suple à quelques kilomètres de la mine de Lari. GA 85 a été collecté sur des haldes de la mine de Lari. Tandis que GA 70 et GA 39 sont des roches directement collectées dans les zones minéralisées de la mine de Lari (Figure 7).

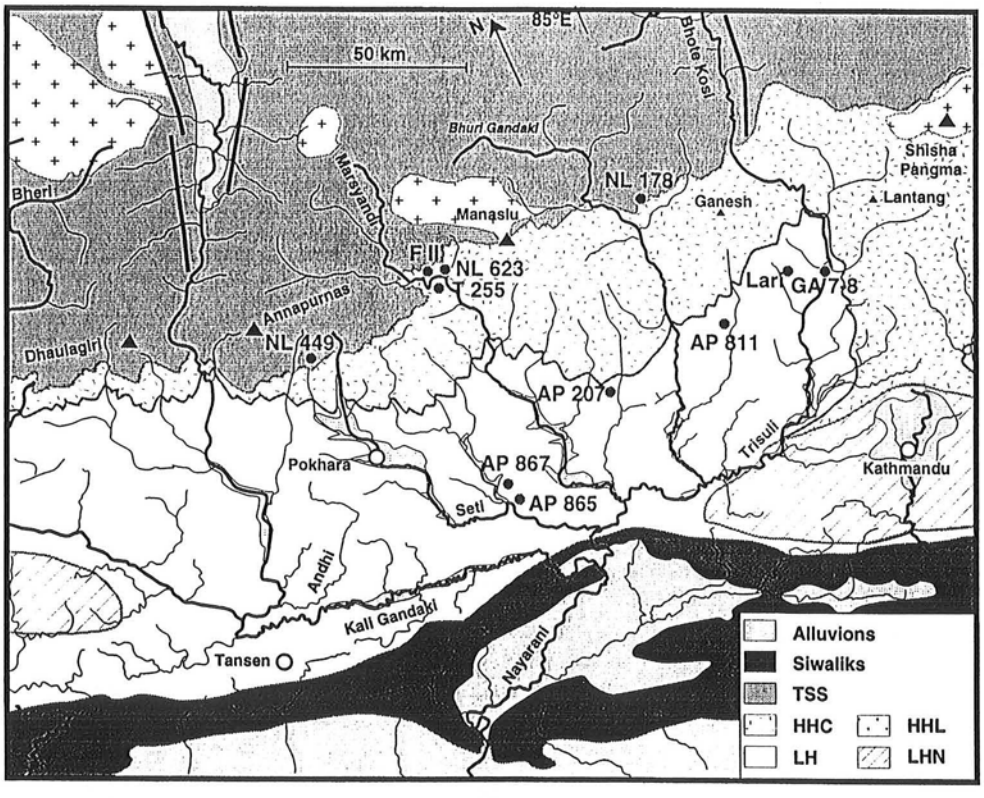

Figure 6 : Localisation des différentes roches carbonatées dans les trois formations himalayennes.

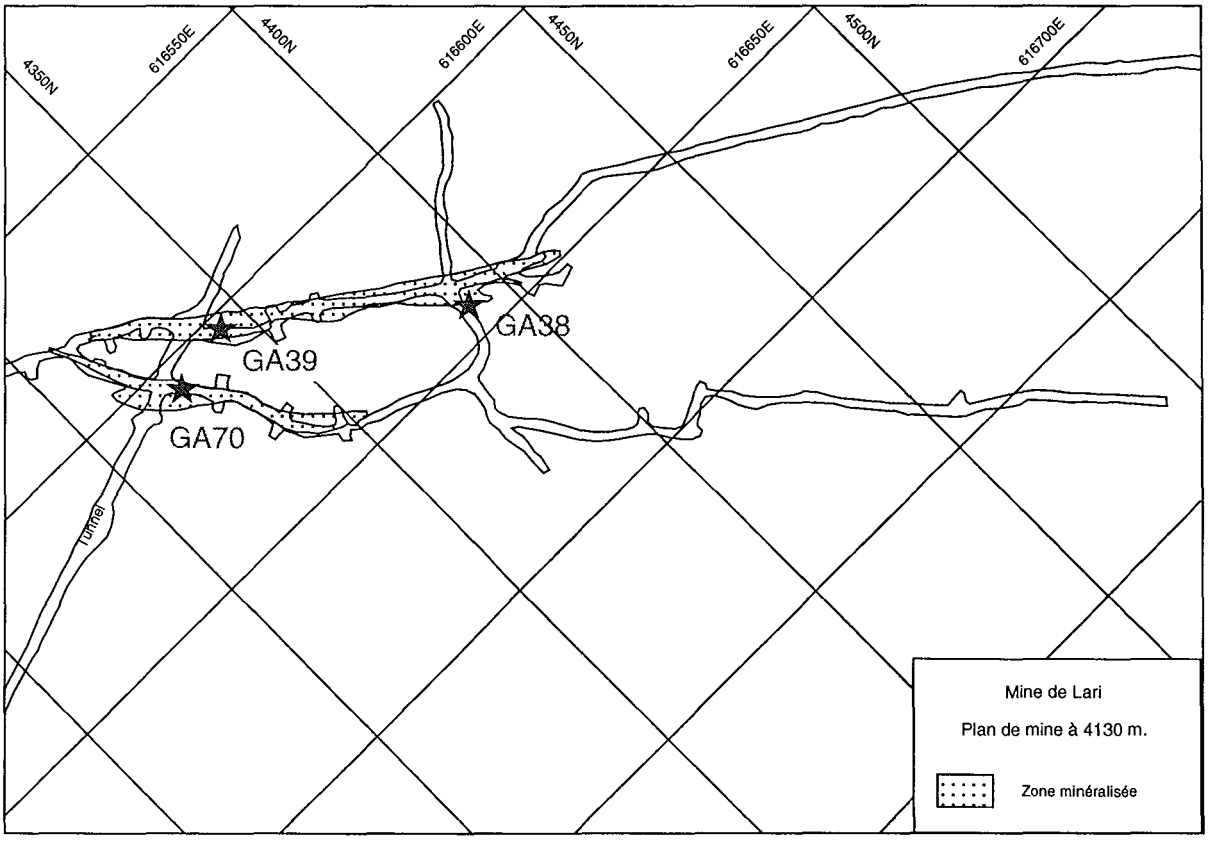

Figure 7: Localisation des échantillons de roches carbonatées et de schistes noirs dans la mine de Lari (altitude 4130 m).

Afin d'apporter des points de comparaison, des schistes noirs échantillonnés non loin de certains carbonates ont aussi été analysés. GA 38 est un schiste noir très métamorphisé avec la présence de pyrites en lits très fins bien visibles. Il a été échantillonné dans la zone minéralisée de la mine de Lari, proche de GA 39. GA 7 et GA 8, séparés de quelques mètres l'un de l'autre, se situent à environ 20 km de la mine de Lari. GA 7 est une roche indurée légèrement altérée, tandis que GA 8 est une boue noire fortement altérée dans une zone de faille. B12-SU6 est un schiste noir provenant d'une carotte de prospection de l'indice de Suple, comparable à celles des carbonates (SU 11).

III.C. Les résultats de Re-Os sur les carbonates

Les analyses Re-Os ont été effectuées en roche totale sur les roches carbonatées et les schistes noirs (Tableau 3). Les données $^{187}Os/^{188}Os$, ainsi que les concentrations d'Os et de Re offrent un panel de valeurs très large, montrant la diversité de cette formation.

Tableau 3 : Composition isotopique d'Os et concentrations d'Os et de Re de roches carbonatées et de schistes noirs du LH, analysés en roche totale.

Echant.	Lithologie	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (ppt)	[^{187}Os] (ppt)	[^{188}Os] (ppt)	[Re] (ppt)	$^{187}Re/^{188}Os$	Age modèle (Ga)
GA 38	Schiste noir	8.076	467	241.2	29.9	-	-	-
GA 7	Schiste noir	10.752	871	510.6	47.5	2158	28.7	17.3
GA 8	Schiste noir	9.682	3200	1794.9	185.2	11344	38.6	11.9
B12-SU6	Schiste noir	7.489	380	189.2	25.3	-	-	-
AP 207	Dolomie impure	193.72	102	98.7	0.5	1120	1388	7.80
AP 811	Dolomie impure	15.506	10	6.5	0.4	630	944	0.90
AP 865	Dolomie impure	19.088	188	135.4	7.1	3580	318	3.28
AP 867	Dolomie impure	2.872	16	4.5	1.5	209	86	1.16
B9-SU11	Marbre saccharoïde	0.415	11.0	0.6	1.4			
B12-SU 11 (carb)	Marbre rubané à zone à phlogopite	0.447	16.3	0.9	2.1			
B12-SU 11 (hydro)	Marbre rubané à zone à phlogopite	0.428	22.4	1.2	2.8			
GA 70	Marbre phlogopitisé	0.507	11	0.7	1.4			
B15-SU11	Marbre rubané gris blanc	0.883	9	1.0	1.1			
GA 85	Halde de mine	0.436	14.4	0.8	1.8			
GA 39 (carb)		2.497	19	4.8	1.9			
GA 39 (hydrot)		11.597	153	92.4	8			

Les schistes noirs analysés (GA 7, GA 8, GA 38 et B12-SU6) montrent des concentrations en Os importantes avec des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ très radiogéniques. Ces schistes noirs se distinguent des autres schistes noirs analysés par Singh *et al.* (1999) par un rapport isotopique plus élevé et une concentration en Os généralement plus importante. Un échantillon (GA 8) se distingue des autres par sa forte concentration en Os (3200 ppt), la plus forte valeur rencontrée dans cette étude, et un rapport comparable à celui des autres échantillons.

Les échantillons de roches carbonatées de mine montrent des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ très faibles (0.41-0.88) comparés aux rapports habituellement rencontrés dans le LH. Les concentrations en Os (9-22 ppt) sont comparables à celles mesurées dans les sédiments de rivières. Elles sont nettement inférieures à celles des schistes noirs. Cependant, un échantillon (GA 39) se distingue des autres par sa position dans la mine et par son rapport $^{187}Os/^{188}Os$ radiogénique. Deux parties de cet échantillon ont été distinguées. La partie carbonatée montre un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de 2.50, nettement plus radiogénique que les autres échantillons de mine étudiés. La partie hydrothermalisée est encore plus radiogénique (11.60). La différence entre les deux parties d'échantillons se fait aussi sur la base de la concentration en Os avec un facteur 8 de différence, passant de 19 ppt pour la partie plus carbonatée à 153 ppt pour la partie plus hydrothermalisée. La présence de l'échantillon GA 38 (un schiste noir) non loin de GA 39 laisse supposer une relation directe entre la composition radiogénique d'une part et la croissance de $^{187}Os/^{188}Os$ avec les circulations hydrothermales d'autre part. Au regard de l'échantillon B12-SU11, le rapport isotopique ne montre pas la même différence entre la partie carbonatée et la partie hydrothermalisée que pour GA 39, puisqu'il reste quasiment semblable. Cependant la concentration en Os montre une légère croissance dans la partie hydrothermalisée.

Les roches AP montrent des concentrations en Os (de 10 à 188 ppt) parfois comparables à celles des schistes noirs rencontrés près du MCT (comme AP 825 ou AP 807). Mais aucun schiste noir analysé jusqu'à présent n'a montré de rapport isotopique aussi élevé que AP 207. La fraction d'Os radiogénique des roches carbonatées varie entre 27 et 96%. Les deux roches carbonatées les plus radiogéniques ont aussi la concentration en Os la plus élevée. Les échantillons ne se trouvent pas au même endroit, suggérant que les fortes valeurs du rapport isotopique des carbonates peuvent être présentes sur l'ensemble du bassin.

Ces données montrent que même si ces roches sont très riches en carbonates (60-82%), les concentrations en Re et Os approchent ou dépassent parfois les valeurs mesurées sur certains schistes noirs du LH. Les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ des carbonates du LH peuvent atteindre soit des valeurs extrêmement élevées (jusqu'à 194) du fait de leur faible teneur en Os non-radiogénique (^{188}Os) couplée à une teneur élevée en Re dans ces roches, soit des valeurs faibles (0.4) rencontrées dans les échantillons de mine (Figure 8).

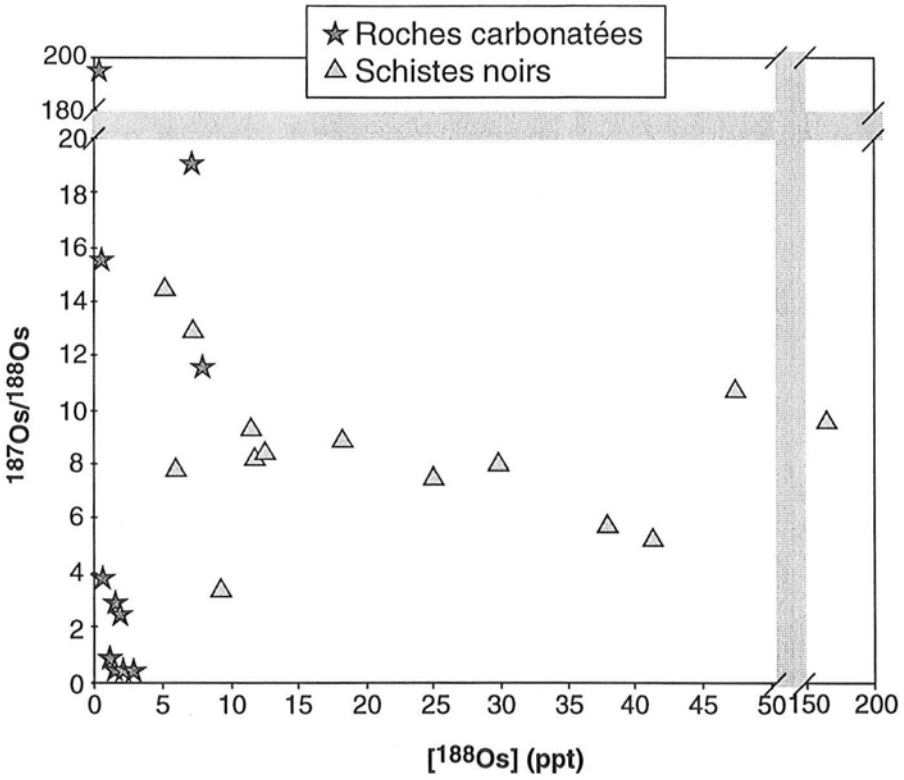

Figure 8 : Variation de la composition isotopique d'Os en fonction de la concentration d' ^{188}Os (ppt) pour les carbonates et les schistes noirs du LH.

Les concentrations en Os élevées observées dans certains carbonates (AP 207 et AP 865) ainsi que dans les schistes noirs sont généralement reliées à de fortes concentrations en Re (Figure 9). Les rapports $^{187}Re/^{188}Os$ des carbonates sont très élevés, surtout dans le cas des carbonates radiogéniques. Les valeurs de $^{187}Re/^{188}Os$ des roches carbonatées nommées AP sont les plus élevés (Tableau 3, Figure 10). De tels rapports n'ont pas été rencontrés dans les autres roches des formations himalayennes.

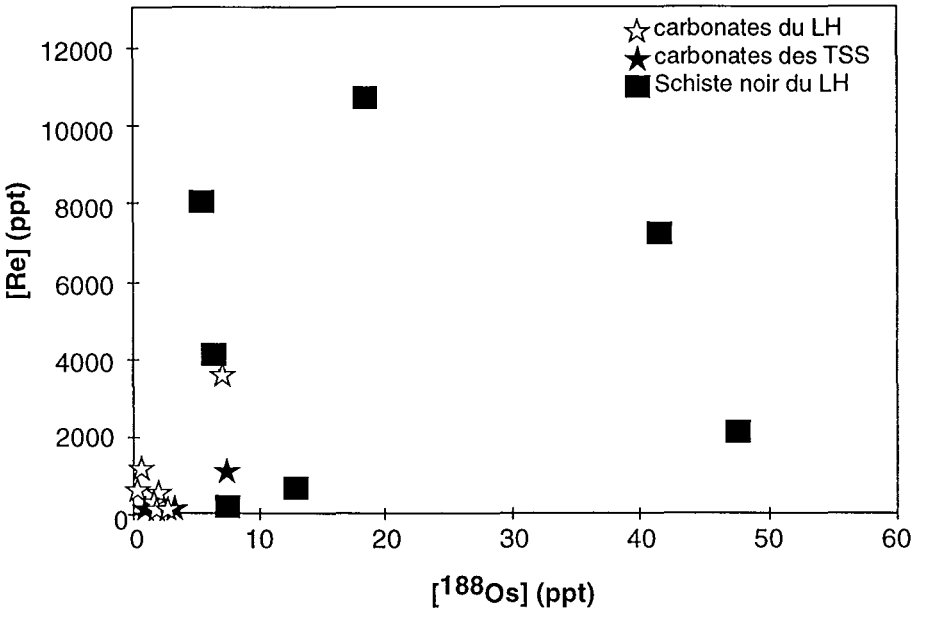

Figure 9 : Teneur en Re et Os des différents carbonates himalayens

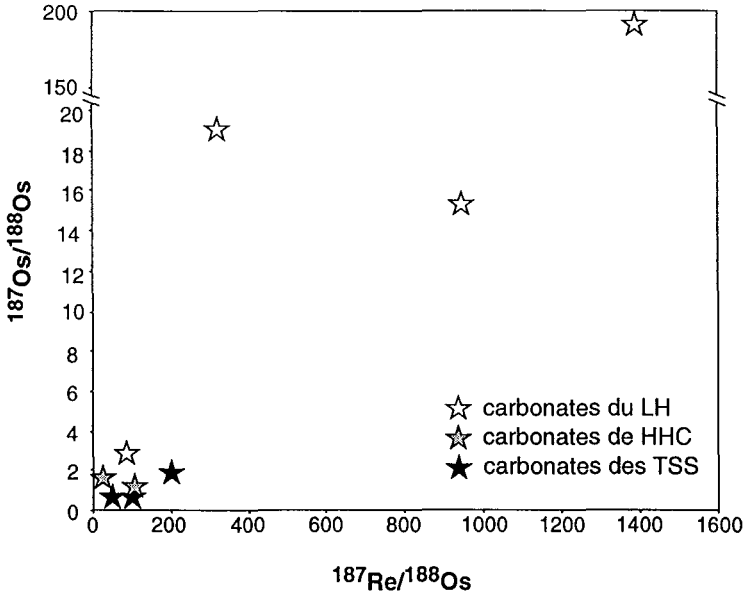

Figure 10 : Diagramme de type isochrone d'Os pour les carbonates des trois principales formations himalayennes.

III.D. Origine des rapports radiogéniques dans les carbonates

Les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ radiogéniques de certains carbonates ne peuvent pas être expliqués par une simple production d'Os radiogénique *in situ* à partir du Re. La représentation des rapports $^{187}Re/^{188}Os$ et $^{187}Os/^{188}Os$ dans un même diagramme ne montre pas

d'isochrone (Figure 10). Même si les âges modèles calculés pour certains carbonates sont réalistes (environ 1 Ga pour AP 811 et AP 867, Tableau 3), d'autres ont des valeurs impossibles (pour AP 207 et AP 865). Ils exigent alors la mobilité de l'Os et du Re, soit par une perte récente de Re, soit par un apport d'^{187}Os accompagné de Re. La première hypothèse (perte de Re) n'est pas plausible au vu des concentrations de Re très élevées pour certains carbonates (AP 207 et AP 865). L'hypothèse d'un apport d'^{187}Os radiogénique et de Re est une explication plus satisfaisante. D'après l'échantillon GA 39, un transfert d'Os et de Re vers les roches carbonatées à partir de roches riches en Os radiogénique comme les schistes noirs (GA 38) peut être à l'origine de la variation de ^{187}Os/^{188}Os observée dans un même échantillon. Une telle redistribution de Re et d'Os est possible à l'aide de circulations hydrothermales ayant lieu pendant des événements métamorphiques. De plus, un transfert préférentiel de l'^{187}Os par rapport à l'^{188}Os semble s'effectuer au vu de la différence des rapports ^{187}Os/^{188}Os entre les parties hydrothermalisées et non de l'échantillon GA 39 et entre GA 39 et GA 38. Un apport préférentiel de Re et de ^{187}Os, par rapport à l'^{188}Os, à partir d'une roche radiogénique riche en Re permet d'expliquer la grande variation des rapports ^{187}Os/^{188}Os des carbonates, ainsi que les rapports très radiogéniques, qui sont plus radiogéniques que ceux des schistes noirs.

Les marbres les plus radiogéniques en Os sont aussi les plus radiogéniques en Sr (Figure 11). Pour l'Os comme pour le Sr, les teneurs en Re et en Rb ne permettent pas d'expliquer les rapports très élevés observés dans ces roches. Il faut donc envisager pour l'Os comme pour le Sr une redistribution depuis des roches très radiogéniques lors du métamorphisme himalayen. Mais la redistribution est hétérogène : l'Os et le Sr sont découplés pendant ces processus.

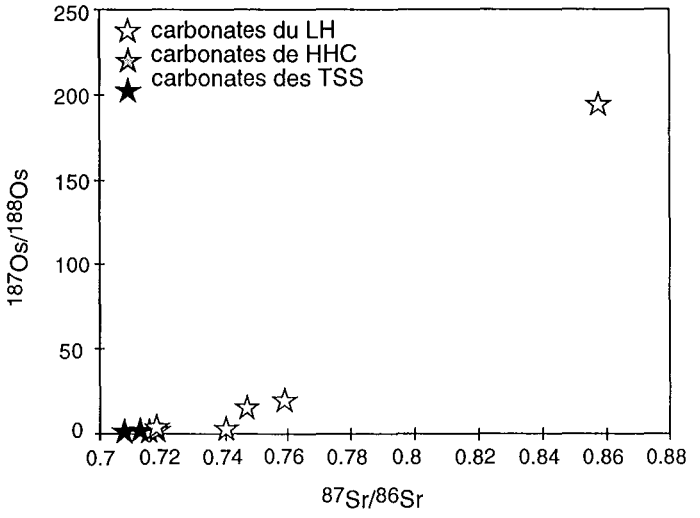

Figure 11 : Composition isotopique d'Os et de Sr des roches carbonatées du Népal Central.

L'étendue et la répartition exactes des carbonates radiogéniques riches en Os par rapport aux carbonates plus 'classiques' ne peuvent pas être déterminées. L'érosion de ces carbonates permet d'apporter de l'Os radiogénique au système sous forme solide ou dissoute. Un bilan succinct fait pour les sédiments collectés à la sortie de la chaîne est présenté dans le paragraphe suivant.

IV. Influence des schistes noirs et des carbonates sur les produits d'érosion

Les schistes noirs du LH ne sont pas les seules roches à délivrer de l'Os très radiogénique. Certains carbonates du LH montrent des valeurs de $^{187}Os/^{188}Os$, ainsi que des [Os] comparables à celles trouvées dans les schistes noirs. Le rôle prédominant des schistes noirs dans le cycle himalayen de l'Os et du Re n'est donc pas exclusif et les carbonates doivent être pris en compte. Ils peuvent influencer non seulement la fraction particulaire, car les sédiments contiennent quelques pourcents de carbonates, mais aussi la fraction dissoute puisque les carbonates sont principalement dissous lors de l'érosion.

Il est difficile d'évaluer les influences respectives de ces deux lithologies pour plusieurs raisons. Pour les schistes noirs, nous n'avons pas de traceurs directs de leur proportion dans les sédiments de rivière. La teneur en carbone organique n'est pas forcément un indicateur

fiable car (1) le graphite peut subir un tri minéralogique durant le transport et (2) les sédiments contiennent du carbone organique récent. La proportion moyenne de schistes noirs dans le LH est également très difficile à estimer car elle est très faible, probablement inférieure à 1%. Pour les carbonates du LH, leur proportion dans les sédiments de rivière est assez simple à déterminer car nous connaissons leurs teneurs en calcite et en dolomite des sédiments, ainsi que les rapports isotopiques de Sr de la fraction carbonatée (Galy *et al.*, 1999). Il est ainsi relativement facile d'estimer la proportion de carbonates du LH qui varie entre 3 et 4% sur la Narayani. Cependant, les signatures isotopiques d'Os des 9 échantillons de marbres du LH que nous avons analysés sont tellement hétérogènes qu'il est impossible de définir une composition isotopique moyenne représentative. Enfin si les marbres du LH sont bien des roches radiogéniques, nous ne savons pas avec certitude si l'Os et le Re sont contenus dans les minéraux carbonatés ou dans d'autres phases associées.

Pour estimer l'importance des marbres et des schistes noirs du LH sur le flux d'érosion himalayens, nous sommes donc amenés à faire des bilans spéculatifs, qui donneront des estimations de la contribution de ces lithologies sur le bilan de l'Os.

Influence sur la phase solide

Nous avons reconstitué un sédiment de rivière fictif en ajoutant à un sédiment non radiogénique, comparable à ceux que nous trouvons avant le LH, des proportions réalistes de différents calcaires du LH et de schistes noirs du LH (Tableau 4). Les résultats de la simulation peuvent être directement comparés aux données des sédiments réels NAG 48 et MO 217 collectés à la sortie de la chaîne. Les mélanges ont été effectués à partir des données des roches carbonatées (AP 207, AP 811, AP 865 et une moyenne des schistes noirs du LH) présentées en tête du Tableau 4.

Le sédiment fictif de départ est une moyenne arithmétique des données des sédiments de la HHC et des sédiments ayant traversé TSS+HHC (Tableau 2 de Pierson-Wickmann *et al.* (2000)). Les roches du LH autres que les carbonates et les schistes noirs ont des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ semblables à ceux du Haut Himalaya. La proportion de carbonates du LH (4%) a été calculée à partir des données isotopiques de Sr de la fraction carbonatée des sédiments de rivières (NAG 48). Les carbonates ont pour origine les TSS ($^{87}Sr/^{86}Sr$=0.712 et [Sr]=700 ppm) et le LH ($^{87}Sr/^{86}Sr$=0.730 et [Sr]=120 ppm) (Galy *et al.*, 1999).

Tableau 4 : Simulation de mélange entre un sédiment issu de la haute chaîne avant son entrée dans le LH, avec des carbonates et des schistes noirs du LH.

	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (ppt)	[^{187}Os] (ppt)	[^{188}Os] (ppt)	Carb LH (%)	Schiste noir LH (%)
AP 207	*193.72*	*102*	*98.7*	*0.5*		
AP 811	*15.51*	*10*	*6.5*	*0.4*		
AP 865	*19.09*	*188*	*135.4*	*7.1*		
Moyenne schistes noirs	*8.6*	*520*	*276.6*	*32.2*		
Départ	1.3	20	2.96	2.28	0	0
Départ + carbonates						
AP 207	3.0	23.3	6.71	2.20	4	0
AP 811	1.4	19.6	3.09	2.20	4	0
AP 865	3.3	26.8	8.26	2.47	4	0
Départ + schistes noirs						
	1.8	22.6	4.33	2.43	0	0.5
	2.2	25.1	5.70	2.57	0	1
Départ + carbonates + schistes noirs						
AP 207	3.4	25.8	8.08	2.35	4	0.5
AP 811	1.9	22.1	4.46	2.35	4	0.5
AP 865	3.7	29.3	9.63	2.62	4	0.5
Départ + carbonates + schistes noirs						
AP 207	3.8	28.3	9.45	2.50	4	1
AP 811	2.3	24.6	5.82	2.50	4	1
AP 865	4.0	31.8	11.00	2.77	4	1
Sédiments de la Narayani						
NAG 48	*3.8*	*20.5*	*6.86*	*1.82*	*4*	*< 1*
MO 217	*3.2*	*15.6*	*4.70*	*1.46*	*4*	*< 1*

Les échantillons NAG 48 et MO 217 sont notés dans le tableau pour une comparaison directe entre les sédiments réels et le sédiment fictif de départ. La moyenne des schistes noirs du LH a été effectuée sur les 14 échantillons analysés dans cette étude.

L'ajout seul de carbonates du LH à un sédiment dérivé du Haut Himalaya permet d'expliquer facilement la présence d'^{187}Os et d'^{188}Os dans un sédiment échantillonné dans le LH, ainsi que les rapports isotopiques radiogéniques (>3). Cependant, les rapports isotopiques obtenus sont légèrement moins radiogéniques que celui de NAG 48 ou MO 217, ceci est dû à la concentration en ^{188}Os plus élevé dans le mélange. A ce stade, seule la présence de carbonates radiogéniques ayant une forte concentration en ^{187}Os peut expliquer les rapports radiogéniques des sédiments à la sortie de la chaîne. Selon les carbonates utilisés (AP 207 ou AP 811, par exemple), un ajout de schiste noir du LH est nécessaire.

L'ajout seul de schiste noir en très faible quantité (0.5 et 1%) est aussi testé. Mais, il ne permet pas d'expliquer la concentration en ^{187}Os et le rapport radiogénique des sédiments.

Les données isotopiques obtenues par un ajout simultané de carbonates (4%) et de schistes noirs (à 0.5 et 1%) expliquent par contre facilement les valeurs obtenues sur les sédiments réels.

Ce modèle simpliste montre qu'il est possible de constituer un sédiment tel que ceux mesurés sur la Narayani avec une proportion raisonnable de schistes noirs et de marbres du LH. Donc, contrairement à l'hypothèse favorisée par Pierson-Wickmann *et al.* (2000), une érosion à l'état non stationnaire n'est pas justifiée. La contribution des marbres apparaît même déterminante pour boucler ce bilan ce qui suggère que la composition moyenne des marbres du LH doit être plus proche de celle de AP 207 ou AP 865 que celle de AP 811.

Influence sur la phase dissoute

A partir de l'analyse d'eaux et matières en suspension dans les rivières mondiales, Levasseur (1999) a montré l'importance de l'altération des carbonates et des schistes noirs sur le flux d'Os dissous des rivières.

Les marbres du LH, avec leur composition isotopique très radiogénique, doivent avoir un effet important sur le flux d'Os dissous. Nous avons donc recalculé la quantité d'Os dissous dans la Narayani apporté par la dissolution de carbonates radiogéniques du LH à partir des données de Sr des phases dissoute et particulaire. En supposant que l'Os des marbres est contenu dans les carbonates comme le Sr, il est possible de calculer la concentration d'Os dissous d'une rivière à partir de sa concentration de Sr et du rapport Os/Sr des carbonates (Tableau 5).

La concentration moyenne de Sr dissous dans la Narayani est de 1.25 µmol/l (Galy *et al.*, 1999). Une moyenne de 10 à 15% de ce Sr provient de la dissolution des carbonates du LH (Galy *et al.*, 1999), soit environ 0.187 µmol/l. Nous supposons que le rapport Os/Sr des carbonates dissous est conservatif dans l'eau, ainsi la concentration d'Os apportée par ces carbonates peut être facilement recalculée.

Tableau 5 : Rapport molaire Os/Sr calculé et concentration en Os issue de la dissolution des carbonates AP 207, AP 811, AP 865 et AP 867.

Echant.	AP 207	AP 811	AP 865	AP 867
Os (ppt)	*102*	*10*	*188*	*16*
Sr (ppm)	*53.3*	*54.8*	*41*	*28*
Os/Sr mol.	8.814×10^{-7}	8.40×10^{-8}	2.112×10^{-6}	2.63×10^{-7}
Os (mol/l)	1.65×10^{-13}	1.57×10^{-14}	3.96×10^{-13}	4.93×10^{-14}
Os (pg/l)	31.4	75.0	3.0	9.4

Les données en italiques sont les données de départ.

Ces concentrations calculées sont du même ordre de grandeur à très supérieur à celles connues pour le Gange (Levasseur *et al.*, 1999 ; Sharma *et al.*, 1999). Elles confirment l'importance des carbonates pour le flux dissous. Elles impliquent que le rapport Os/Sr n'est probablement pas conservatif et donc qu'une part de l'Os des carbonates doit reprécipiter sous forme d'oxydes de Fe ou autres.

V. La fraction manquante : l'eau

Au cours de notre étude, la phase dissoute n'a pas été mesurée. Cependant, des données récentes obtenues sur des rivières himalayennes (Tableau 6) ont permis de mettre en évidence la signature radiogénique du Gange d'une part et moins radiogénique du Brahmapoutre d'autre part (Levasseur *et al.*, 1999 ; Sharma *et al.*, 1999).

Tableau 6 : Données d'Os sur les eaux de rivières à partir de Levasseur *et al.* (1998 ; 1999) et Sharma *et al.* (1999)

Echantillon	Date de prélèvement	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (pg/kg)
Gange - Patna	Nov 1997	1.59	32.5
Gange - Kaudiyal	Nov 1997	2.6	8.5
Gange – Rajshahi *(BGP 4)*	Août 1996	2.94	11.7
Brahmapoutre - Guwahati	Nov 1997	1.07	9.9
Indus – Besham	Mai 1998	1.20	11.2
Rivières mondiales		*1.54*	*7.9*
Océan		*1.06*	*10.86*

Le Gange

L'analyse de l'eau BGP 4 échantillonnée à Rajshahi (Levasseur *et al.*, 1999), au même endroit que les sédiments BGP 5 et BGP 6, pendant la période de mousson montre des rapports isotopiques très proches : 2.94 pour la phase dissoute et 2.3-2.6 pour la phase particulaire. Les prélèvements présentés par Sharma *et al.* (1999) ont été effectués pendant la saison sèche. A la sortie de la chaîne (Kaudiyal), le Gange a une signature très radiogénique (2.6) comparable à celle de l'eau analysée par Levasseur *et al.* (1999), avec une concentration en Os similaire, et à celle des sédiments de rivière. Plus au sud dans la plaine, à Patna, en amont de Rajshahi, le rapport $^{187}Os/^{188}Os$ a une valeur de 1.59 avec une augmentation de concentration assez importante, multipliée par 3 par rapport à la sortie de la chaîne. Cette différence assez importante des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ peut être expliquée par la saison d'échantillonnage. En effet, durant la saison sèche, les affluents du Sud ayant un faible rapport $^{187}Os/^{188}Os$ dû à la présence des Traps du Deccan auront une influence plus marquée que pendant la saison humide. Or environ 80% des flux de particules et d'eau ont lieu pendant la mousson. Ainsi, la signature plus radiogénique dominera.

L'Indus

Pour l'Indus, le rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de 1.20 (Sharma *et al.*, 1999) a une valeur cohérente avec celui des TSS et des sédiments de rivières.

Le Brahmapoutre

La composition isotopique d'Os moins radiogénique attendue pour le Brahmapoutre est confirmée par la valeur de 1.07 trouvée par Sharma *et al.* (1999). Elle est intermédiaire entre celle des sédiments échantillonnés pendant et hors mousson (BGP 14 et BGP 82).

La composition isotopique d'Os dissous est comparable à celle trouvée dans les sédiments de rivières. Même si les eaux représentent une moyenne à plus court terme que les sédiments de l'érosion, ces deux phases sont fortement liées à la signature de leurs sources, plus qu'aux processus d'érosion ou de transport.

VI. Synthèse

Les analyses de sédiments de rivières (charge de fond) et de roches en place de la chaîne himalayenne ont permis de déterminer la composition isotopique d'Os des formations himalayennes (TSS, HHC et LH). Le LH se distingue des deux autres formations par une composition isotopique d'Os très radiogénique, rencontrée dans les roches sources et les sédiments.

La signature d'Os radiogénique des sédiments peut être expliquée par l'intervention de deux lithologies mineures du LH: les schistes noirs et les carbonates impurs. Ces formations, bien que représentant une fraction mineure inférieure à 5% du sédiment total, déterminent sa signature isotopique. L'origine de la signature radiogénique en Os des carbonates est reliée au métamorphisme himalayen de la chaîne qui a permis la mobilisation d'Os et de Re de roches riches en Re et Os radiogénique, comme les schistes noirs, vers les carbonates par l'intermédiaire de fluides hydrothermaux. Une telle redistribution d'Os et de Re peut être mise en parallèle à celle de Sr et Rb déjà mise en évidence dans des carbonates (Deniel, 1985). Mais la redistribution d'Os et du Re est hétérogène dans ces roches et est découplée de celle du Sr. La source ultime de l'Os radiogénique présent dans les carbonates impurs du LH sont les schistes noirs de la même formation.

Etablir un bilan exact de la contribution de différents pôles (silicates, schistes noirs et carbonates du LH) reste un exercice difficile car ils sont encore mal connus. C'est également probablement illusoire car les mécanismes mis en jeu sont certainement plus compliqués

qu'un simple mélange mécanique. L'érosion chimique joue un rôle important sur le cycle de l'Os au cours de l'érosion. La dissolution des carbonates du LH représente certainement une contribution très importante de l'Os dissous, mais cet Os peut être refixé sur des phases secondaires. Le chapitre suivant s'attache donc à examiner quelques éléments du comportement de l'Os au cours de l'altération.

Les sols et l'altération à basse température

Une des observations obtenue à partir du bilan de flux d'érosion est qu'au cours de l'érosion, une large partie de l'Os et du Re est mise en solution lors de l'altération et transportée sous forme dissoute. La mise en solution de ces éléments n'est pas nécessairement simple et nous pouvons envisager un fractionnement isotopique de l'Os lié aux sites d'Os altérés (Peucker-Ehrenbrink et Blum, 1998). Une partie de l'Os et du Re est également certainement réincorporée dans les phases secondaires formées au cours de l'altération des silicates tels que les argiles et les oxy-hydroxydes de Fe. Dans ce chapitre, nous avons analysé plusieurs profils de sols et de phases d'altération pour établir des caractéristiques du comportement isotopique et chimique de l'Os et du Re au cours de l'altération.

I. Les échantillons

Différents sols ont été échantillonnés dans la HHC et le LH (Figure 1, Tableau 1). Le sol MO 33 provient de la HHC, MO 122 du LH sans être directement influencé par les schistes noirs. Le profil de ce sol comprend le saprolite de la roche mère. MO 219 a été formé sur d'alluvions quaternaires dans la plaine d'inondation de la Narayani, lieu de prélèvement des sédiments NAG 48 et MO 217. Les deux autres sols (MO 601, MO 602) ont été développés sur des schistes noirs du LH près de Benighat, non loin des schistes noirs NL 1 et NL 2. L'échantillon MO 601 bedrock est un saprolite de schiste noir prélevé près du sol MO 601. La relation exacte entre cet échantillon et les sols MO 601 et MO 602 n'est pas déterminée.

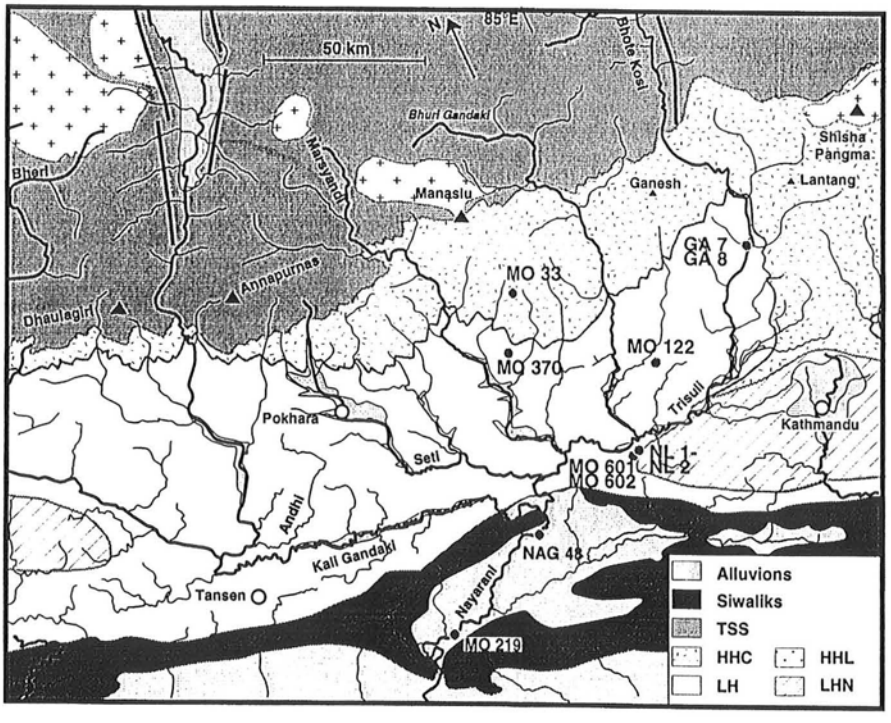

Figure 1 : Carte de localisation des sols au Népal Central.

Tableau 1 : Liste des sols analysés pour le Re et l'Os

Sol	Formation	Informations
MO 33	HHC	Echantillonné à une altitude de 2700 m
MO 122	LH	Sol latéritique
MO 219	Quat.	Alluvions quaternaires – échantillonné à une altitude de 220 m
MO 601	LH	Développé sur des schistes noirs
MO 602	LH	Développé sur des schistes noirs

II. Les éléments majeurs

Le Tableau 2 résume la composition élémentaire des différentes fractions des sols échantillonnés au Népal Central, dans la HHC ou dans le LH. La composition chimique en éléments majeurs et traces des sols est aussi présentée en Annexe 2.

Tableau 2 : Composition chimique en éléments majeurs des sols étudiés au Népal Central (en roche totale).

Echantillon *	Formation	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MnO	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	Pf	C. org %
MO 33 0-10	HHC	51.0	15.0	7.09	0.07	2.17	0.68	0.78	1.99	0.81	0.29	18.96	8.51
MO 33 20-30	HHC	63.8	12.6	5.23	0.04	1.78	0.57	1.28	1.51	0.6	0.13	12.37	4.43
MO 33 40-50	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.18
MO 33 60-70	HHC	64.7	13.5	6.37	0.02	1.17	0.34	0.83	1.73	0.9	0.14	10.11	nd
MO 33 100-110	HHC	65.7	16.0	6.48	0.08	2.52	0.53	1.22	1.58	0.75	0.2	4.668	0.39
MO 33 180-190	HHC	64.7	16.2	7.1	0.08	2.96	0.46	1.38	2.16	0.8	0.15	3.756	0.17
MO 122 0-20	LH	63.5	16.0	6.3	0.06	0.8	0	0.15	2.41	0.67	0.12	9.85	2.80
MO 122 50-60	LH	62.5	18.2	7.84	0.02	0.76	0.08	0.13	2.45	0.71	0.14	6.9	nd
MO 122 120-140	LH	58.7	20.2	9.4	0.03	0.82	0.11	0.13	2.45	0.81	0.18	6.9	nd
MO 122 180 cm	LH	60.6	19.7	7.8	0.04	1.78	0.02	0.2	4.98	0.57	0.13	4.13	nd
MO 219 0-10	Quat	61.3	14.2	5.81	0.08	2.6	2.51	1.28	3.63	0.68	0.19	7.4	1.48
MO 219 20-30	Quat	61.6	15.2	5.62	0.07	2.68	2.04	1.49	3.69	0.71	0.23	6.41	1.76
MO 219 50-60	Quat	69.4	10.2	4.04	0.05	1.85	4.33	1.07	2.64	0.53	0.12	5.56	0.33
MO 219 80-90	Quat	67.5	10.4	4.01	0.04	2.04	5.34	1.17	2.59	0.53	0.13	6.06	0.25
MO 601 0-10	LH-BS	59.2	15.0	7.09	0.05	3.18	0.67	0.66	4.52	0.64	0.14	8.79	2.68
MO 601 10-20	LH-BS	61.1	15.3	7.21	0.05	3.23	0.55	0.68	4.53	0.64	0.13	6.45	1.38
MO 601 20-50	LH-BS	60.0	16.3	7.43	0.04	4.01	0.48	0.57	4.86	0.67	0.12	5.47	0.66
MO 601 bedrock	*LH-BS*	*48.8*	*26.5*	*6.63*	*0.00*	*2.98*	*0.07*	*0.53*	*8.11*	*0.77*	*0.07*	*5.51*	*0.60*
MO 602 0-20	LH-BS	66.8	14.3	6.34	0.06	1.49	0.24	0.57	4.07	0.52	0.12	5.38	1.04
MO 602 20-40	LH-BS	62.2	15.7	7.03	0.20	1.70	0.29	0.59	4.04	0.60	0.12	7.40	1.886
MO 602 40-60	LH-BS	64.1	15.5	6.72	0.17	1.62	0.25	0.60	3.99	0.59	0.06	6.29	1.33
MO 602 60-80	LH-BS	65.3	15.7	6.48	0.07	1.70	0.22	0.57	4.31	0.60	0.09	4.88	0.40

** : les derniers chiffres indiquent la profondeur du prélèvement en cm.*

Pour les sols développés sur la HHC ou le LH, une perte de silice et d'éléments basiques comme Na, Ca , Mg ou K est observée dans la plupart des sols par rapport aux roches source. Un gain d'Al est lié à la désilicification des sols par substitution des cations Si^{4+} par les cations Al^{3+}. Cette tendance traduit la formation de minéraux secondaires argileux. D'ailleurs, cette néoformation de minéraux implique une hydratation du sol qui est montrée par l'augmentation de la perte au feu. MO 122 se distingue des roches mères par une plus forte concentration en Fe expliquée par la formation d'oxydes de Fe typique de sols latéritiques.

Le sol MO 219 ne peut pas être comparé aux roches de formations himalayennes, mais plutôt à des sédiments échantillonnés à la sortie de la chaîne dans la Narayani, comme MO 217 ou NAG 48. Il représente en fait une moyenne des produits d'érosion himalayenne. Les données des niveaux inférieurs (50-60 et 80-90) sont similaires à celles des sédiments de rivière. Par contre, les niveaux supérieurs (0-10 et 20-30) se distinguent des précédents par une perte importante de Si et un gain d'Al montrant une évolution hétérogène dans un profil de sol, expliquée par l'hétérogénéité des flux de matériaux transportés par la Narayani.

III. Le carbone organique

La teneur en carbone organique varie entre 0.4 et 8.5 % dans les sols (Tableau 2, Figure 2). Les plus fortes valeurs sont observées dans les litières organiques. En moyenne, la teneur en carbone organique est comparable d'un sol à un autre. Les deux profils MO 601 et MO 602 développés sur des schistes noirs ont en fait des teneurs en carbone organique très faibles en profondeur. Leurs rapports isotopiques d'Os confirment qu'ils sont bien issus de schistes noirs (cf. Paragraphe V.). Ceci suggère probablement que la plupart du carbone organique fossile a été oxydée lors de la formation du sol.

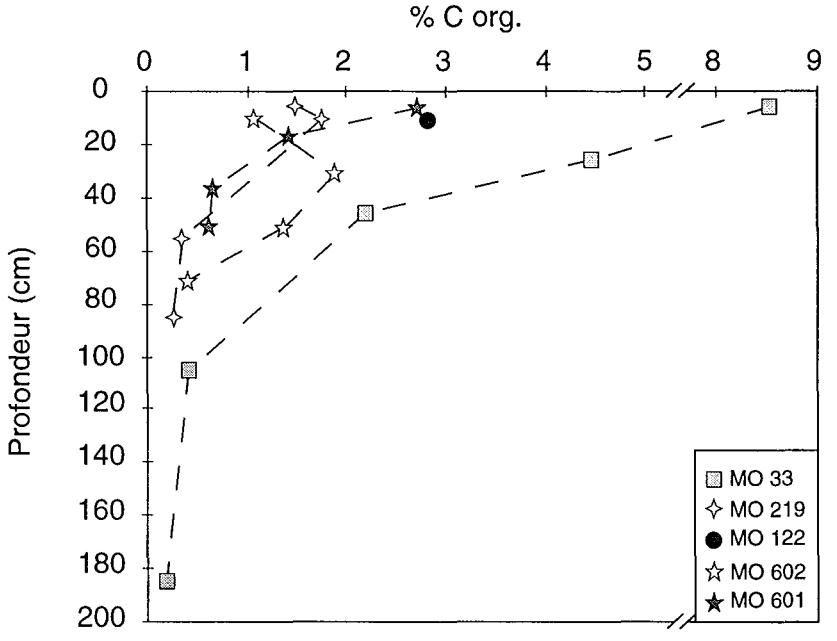

Figure 2 : Variation de la teneur en carbone organique des sols himalayens en fonction de la profondeur.

IV. Les données isotopiques de Sr et de Nd

Le Tableau 3 résume les données isotopiques obtenues sur la fraction silicatée des sols échantillonnés au Népal Central. Les compositions isotopiques de Sr et de Nd permettent de distinguer les sols les uns par rapport aux autres. Ces données sont similaires à celles trouvées dans les roches des différentes formations, à savoir un rapport $^{87}Sr/^{86}Sr$ d'environ 0.750 et des valeurs εNd –14 pour la HHC, des rapports $^{87}Sr/^{86}Sr$ supérieurs à 0.800 et des valeurs εNd entre –20 et -23 pour le sol MO 122. Les valeurs εNd des sols rentrent dans la gamme supérieure définie par les roches sources. Le sol MO 219 présente une valeur intermédiaire typique du mélange entre les formations du Haut Himalaya et du LH observé pour les sédiments de rivière NAG 48 ou MO 217.

Les sols montrent une certaine hétérogénéité de la composition isotopique de Sr et de Nd. Nous n'observons cependant pas de signe de lessivage préférentiel de ^{87}Sr. Les hétérogénéités sont plutôt héritées de la variabilité initiale des roches à l'échelle décimétrique (Deniel, 1985).

Tableau 3 : Compositions isotopiques en Sr et Nd de la fraction silicatée des sols du Népal Central

Sol	Fraction (cm)	[Sr] (ppm)	[Rb] (ppm)	$^{87}Sr/^{86}Sr$	[Nd] (ppm)	[Sm] (ppm)	εNd
MO 33	0-10	61.74	112.15	0.75121	24.05	5.15	-14.0
	20-30	52.16	75.10	0.76293	24.61	4.68	-13.8
	40-50	48.88	-	0.76387	-	-	-
	60-70	51.74	102.15	-	46.37	9.09	-
	100-110	42.61	89.35	0.76116	39.97	7.86	-
	180-190	42.48	133.78	0.76953	38.8	8.45	-14.2
MO 122	0-20	32.11	153.21	0.81818	28.93	5.43	-20.3
	50-60	29.63	156.32	0.82431	21.35	3.94	-23.7
	120-140	43.06	163.48	0.80328	32.63	6.03	-20.0
	Saprolite – 180 cm	51.77	246.19	0.91108	20.59	2.98	-22.7
MO 219	0-10	76.15	167.25	0.77913	39.30	7.10	-18.9
	20-30	89.56	185.77	0.78396	46.04	8.54	-18.8
	50-60	102.65	129.36	0.75150	35.55	6.42	-
	80-90	123.98	129.54	0.74877	34.30	6.28	-19.2

Les données isotopiques de MO 601 et MO 602 n'ont pas été déterminées.

V. Les données Re-Os

Le Tableau 4 et la Figure 3 résument les données de compositions isotopiques d'Os et les concentrations d'Os et de Re des sols préalablement cités. Ces données ont été obtenues de la même façon que pour les sédiments et les roches sources. Le sol MO 219 est quant à lui en accord avec les données obtenues sur les sédiments prélevés à la sortie de la chaîne dans la Narayani : un rapport radiogénique ($^{187}Os/^{188}Os$=4) et une concentration en Os de 20 à 30 ppt.

Le sol MO 33, de la HHC, a une composition isotopique $^{187}Os/^{188}Os$ moyenne de 1.25 et une concentration d'Os de 38 ppt. Une valeur de $^{187}Os/^{188}Os$ à 2.05 est observée dans le niveau 20-30 cm, associée à une concentration en Os élevée (79 ppt) par rapport au reste du profil. La différence isotopique d'Os dans un sol peut être associée à celle de Sr observée dans les gneiss de cette formation par Deniel (1985). Cette section se différencie des autres par une teneur légèrement plus faible en terres rares légères, en Cr, V ou Th. Le Re a un comportement différent de celui de l'Os qui reste assez monotone. Il tend à se concentrer dans

les niveaux superficiels, passant de 30 à 120 ppt du saprolite à la surface.

MO 122 est un sol latéritique du LH. Il n'est pas directement en relation avec des schistes noirs. Il contient jusqu'à 8% pds d'oxydes de fer. Il montre un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ non radiogénique (1.15) pour les trois fractions supérieures, tandis que le saprolite est plutôt radiogénique (1.99). Le saprolite est marqué par un rapport $^{87}Sr/^{86}Sr$ très élevé, cohérent avec les teneurs élevées en Rb et K.

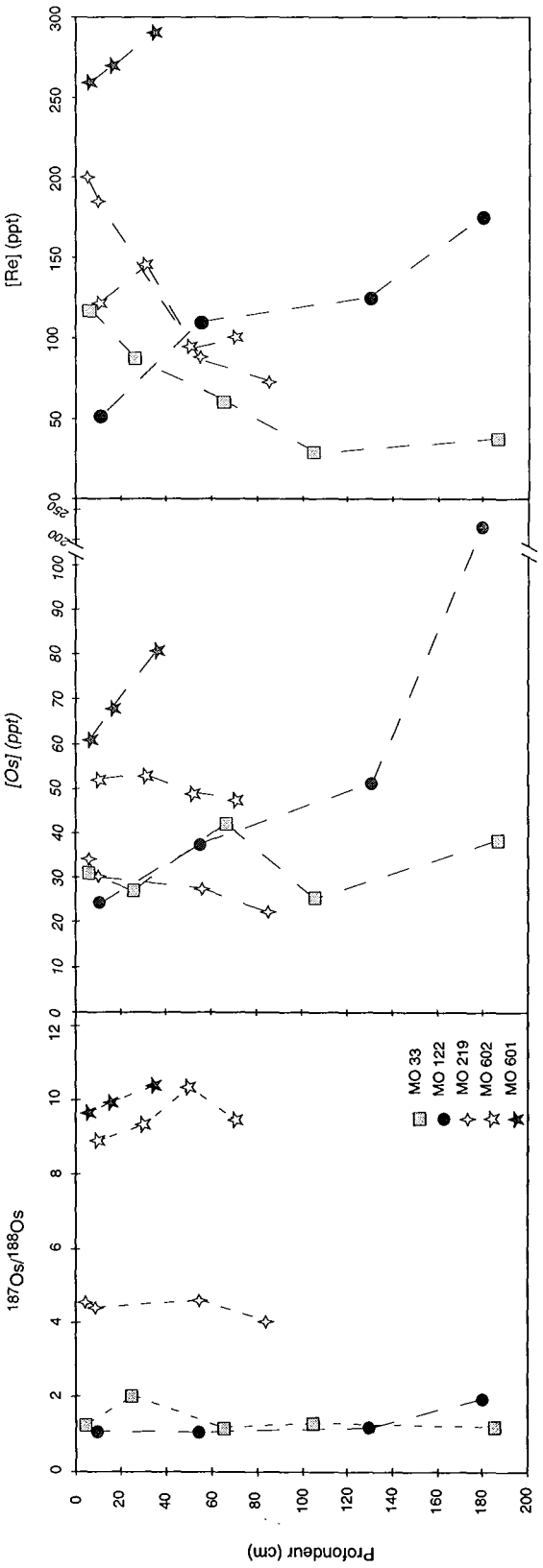

Figure 3 : Variation de la composition isotopique d'Os, de la concentration en Os et Re des différentes sols en fonction de la profondeur.

Tableau 4 : Concentrations en Re et Os, et composition isotopique d'Os de sols échantillonnés au Népal Central

Sol	Fraction	Formation	$^{187}Os/^{188}Os$	[Os] (ppt)	[Re] (ppt)	$^{187}Re/^{188}Os$	Age modèle (Ga)
MO 33	0-10	HHC	1.268	31	117	20	3.2
	20-30	HHC	2.053	79	87	19	15.3
	40-50	HHC	1.273	41	99	29	5.0
	60-70	HHC	1.190	42	61	8	7.6
	100-110	HHC	1.317	29	30	7	11.4
	180-190	HHC	1.224	38	37	5	11.3
MO 122	0-20	LH	1.091	24	52	11	4.8
	50-60	LH	1.072	37	110	16	3.5
	120-140	LH	1.203	52	125	13	4.7
	Saprolite – 180 cm	LH	1.989	313	175	33	26.6
MO 219	0-10	Quat.	4.612	34	200	44	5.7
	20-30	Quat.	4.442	30	185	46	5.3
	50-60	Quat.	4.637	28	89	24	10.2
	80-90	Quat.	4.102	22	73	24	9.1
NAG 48	*sédiment*		*3.78*	*20*	*299*	*104*	*1.5*
MO 601	0-10	BS-LH	9.670	61	260	46	11.2
	10-20	BS-LH	9.936	68	270	44	13.0
	20-50	BS-LH	10.410	81	290	40	13.5
MO 602	0-20	BS-LH	8.924	52	121	24	18.6
	20-40	BS-LH	9.375	53	146	29	16.4
	40-60	BS-LH	10.354	49	94	21	23.2
	60-80	BS-LH	9.517	48	100	22	21.0
MO 601	*saprolite*	*BS-LH*	*5.876*	*38*	*240*	*54*	*6.1*
NL 1	*Schiste noir*	*LH*	*5.230*	*528*	*7239*	*110*	*2.1*
NL 2	*Schiste noir*	*LH*	*5.754*	*505*	-	-	*0.6*

Les échantillons indiqués en italique servent de référence lors de comparaisons.

Le sol MO 219 est développé sur des alluvions quaternaires du bassin versant de la Narayani. Il montre un rapport isotopique d'Os radiogénique variant entre 4.10 et 4.64, distribué en profondeur d'une manière aléatoire. Par contre, les concentrations en Os et en Re augmentent vers la surface, de 22 à 34 ppt pour l'Os et de 73 à 200 ppt pour le Re. Comparés à ceux de la Narayani (MO 219 et NAG 48), les rapports du sol sont un peu plus radiogéniques et les concentrations en Os et Re sont légèrement plus élevées.

Les sols MO 601 et MO 602 sont deux sols développés directement sur des schistes noirs du LH, près de Benighat. Les concentrations en Os et en Re sont nettement plus faibles que celles trouvées dans les schistes noirs prélevés près de Benighat (NL 1, NL 2 et MO 601 Saprolite, Tableau 4), impliquant une perte très importante de Re, mais aussi d'Os des schistes noirs pendant l'altération. Les concentrations en Os et Re se distinguent de celles des autres sols, variant de 40 à 80 ppt. D'ailleurs, la teneur en Os du saprolite de MO 601 est un bon exemple de l'effet de l'altération d'un schiste noir. Les rapports isotopiques d'Os sont élevés compris entre 6 et 10, ce qui confirme la parenté aux schistes noirs, malgré une perte probable de carbone organique initial. Dans un profil en profondeur, aucune variation du rapport isotopique, ni des concentrations n'est observée. Les rapports $^{187}Re/^{188}Os$ sont beaucoup trop faibles pour expliquer les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ élevés. Ils impliquent des âges modèles impossibles (11-13.5 Ga pour MO 601 et 16-23 Ga pour MO 602). Leurs concentrations en Re et Os sont par contre nettement inférieures à celles des schistes noirs. Le MO 601 bedrock a une signature isotopique similaire à celle des schistes noirs analysés. Ceci suggère une perte de ces deux éléments lors de l'altération sans fractionnement isotopique significatif.

VI. Autres altérations des schistes noirs

Un schiste noir (MO 370) très altéré (avec la présence très visibles d'oxydes de fer à la surface et dans des interstices) a été échantillonné dans le LH. Les oxydes de fer ont été grattés et analysés en roche totale pour déterminer la composition isotopique d'Os, ainsi que ses concentrations en Os et Re (Tableau 5). Une partie du schiste noir encore saine a aussi été analysée pour avoir un point de comparaison. Les oxydes de fer forment une phase secondaire issue sans doute de l'oxydation de sulfures pendant l'altération à basse température.

Tableau 5 : Echantillon MO 370 – Schiste noir du LH

Fraction	[Os] (ppt)	^{188}Os (ppt)	[Re] (ppt)	$^{187}Os/^{188}Os$	$^{187}Re/^{188}Os$	Age modèle (Ga)
Roche totale	880	238	480	20.17	9.6	65.5
Oxydes	4500	1320	20	17.98	0.1	327.5

Du point de vue isotopique, les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ des deux fractions sont comparables. La grande différence vient des concentrations en Os et en Re des oxydes, qui sont

respectivement plus et moins élevées que celles de la roche. Ces données indiquent que l'Os mobilisé durant l'altération a été largement reprécipité dans des oxydes de fer lorsque les conditions d'oxydo-réduction le permettent. Le Re montre quant à lui un comportement différent, puisqu'il n'est pas fixé dans les oxydes de fer. Le faible rapport $^{187}Re/^{188}Os$ couplé à un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ très élevé indique que le Re a été fortement mobilisé pendant l'altération. Mais le Re est resté dans la phase fluide.

Dans le chapitre 4, l'analyse des schistes noirs GA 7 e GA 8 a mis en évidence que les premiers stades de l'érosion/altération sont déterminant pour les concentrations en Os et Re, moins pour les compositions isotopiques (Tableau 6). Mais ils montrent aussi que l'hétérogénéité de la composition isotopique et de la concentration en Os et en Re peut être observée à une faible échelle (métrique). GA 7 est un schiste noir induré légèrement altéré, tandis que GA 8 est une boue de schiste noir très altérée dans une zone de faille. Ils illustrent en fait l'hétérogénéité sur une courte distance de la concentration en Os et Re de schistes noirs. Ces deux échantillons enregistrent les plus fortes concentrations en Os rencontrées dans les schistes noirs de cette étude.

Tableau 6 : Schistes noirs du LH : GA 7 et GA 8

Fraction	[Os] (ppt)	^{188}Os (ppt)	[Re] (ppt)	$^{187}Os/^{188}Os$	$^{187}Re/^{188}Os$	Age modèle (Ga)
GA 7	871	47.5	2158	10.752	28.7	17.3
GA 8	3200	185.2	11344	9.682	38.6	11.9

VII. Synthèse

Les analyses de sols développés dans la HHC ou dans le LH ont permis d'aborder le comportement de l'Os et du Re pendant l'altération à basse température. Dans un même profil de sol, les compositions isotopiques d'Os, ainsi que les concentrations d'Os et de Re sont quasiment constantes. Les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ des sols sont tout à fait compatibles avec ceux des formations desquelles ils sont issus.

Les sols développés sur les schistes noirs montrent que le carbone a sans doute été oxydé dans l'altération, d'où la faible teneur. La comparaison directe des sols et des schistes noirs environnants suggère une perte très importante d'Os, mais aussi de Re de la roche source à un sol se faisant sans doute dans les premiers stades de l'altération (lors du passage de la roche saine au saprolite). La remobilisation du Re et de l'Os se fait à l'aide de fluides,

où des reprécipitations d'Os dans des phases traces, comme des oxydes de fer, peuvent se produire.

Chapitre 6
Le système Re-Os dans le Cône du Bengale

Le système Re-Os dans le Cône du Bengale

Aujourd'hui, la plupart des produits d'érosion himalayens débouche dans la Baie du Bengale et est déposée sur plus de 3000 km dans le Cône du Bengale. Cette unité sédimentaire majeure enregistre vraisemblablement l'érosion de la chaîne depuis son origine, ainsi que les différents facteurs qui la contrôlent.

Les études de sédiments provenant de divers forages profonds (Leg ODP 116 ou DSDP 218 , Figure 1) ou non profonds (MD 77, SO 93) ont permis de définir des caractéristiques liées aux sources du matériel détritique, aux environnements de dépôts de la charge sédimentaire, aux variations climatiques ou environnementales durant le Néogène.

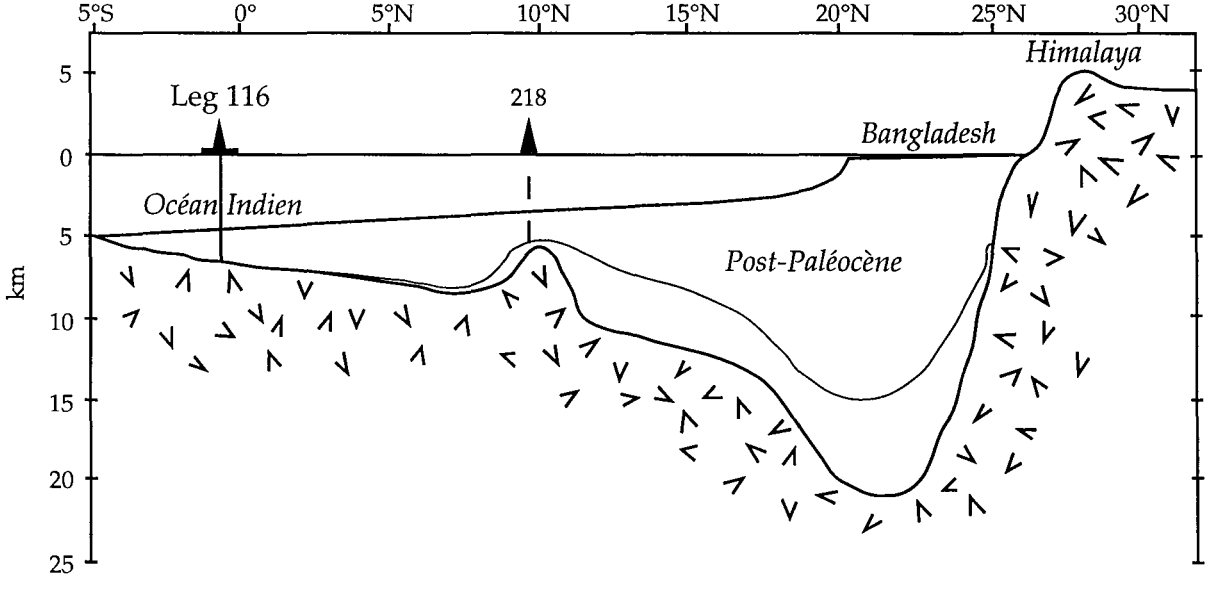

Figure 1 : Illustration du profil sédimentaire du Cône du Bengale, avec la localisation du forage ODP 116 dans la partie distale du Golfe du Bengale, d'après Curray (1994).

I. Le Cône du Bengale

Le Cône du Bengale s'étend entre 22°N et 7°S de latitude et entre 80°E et 90°E de longitude (Figure 2). C'est un bassin sédimentaire alimenté par la zone de collision Inde-Asie depuis l'Éocène supérieur (Curray et Moore, 1971 ; Gansser, 1966).

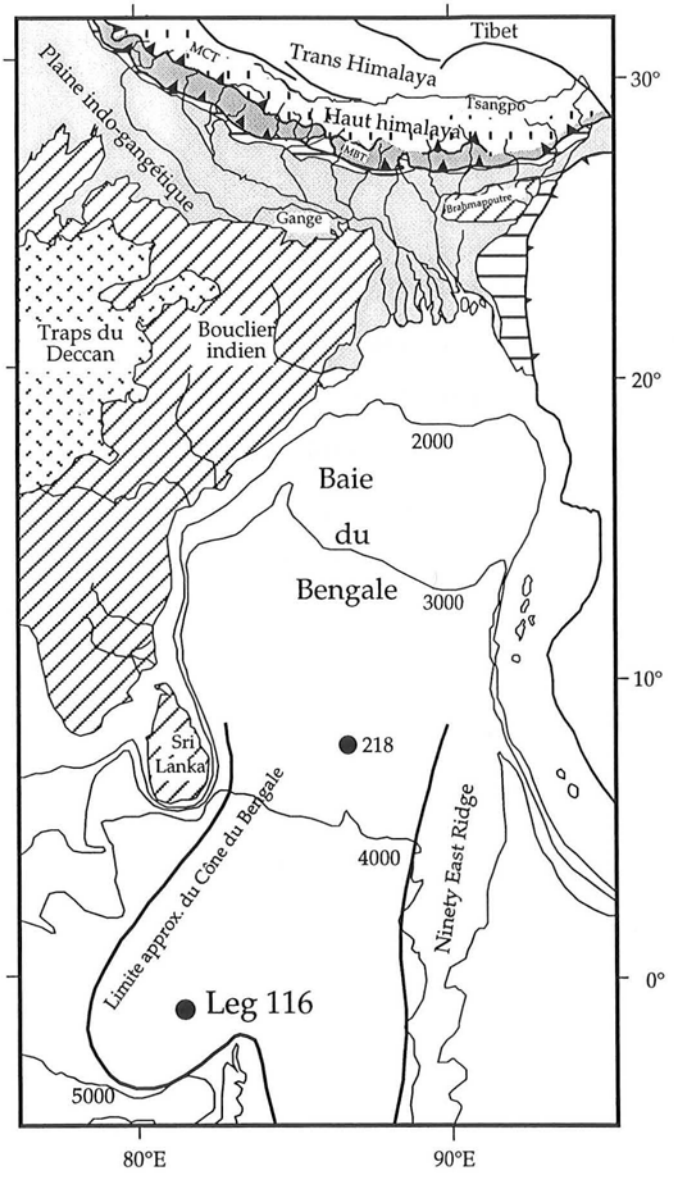

Figure 2 : Schéma du Cône du Bengale, avec la localisation du Leg ODP 116 (Bouquillon et al., 1990).

Le cône sous-marin profond du Gange, long de 3000 km et large de 1000 km, est le plus vaste édifice de ce type au monde. Il est aujourd'hui principalement alimenté par des sédiments terrigènes provenant du Gange et du Brahmapoutre, drainant 80% de la chaîne himalayenne. Ces deux rivières se rejoignent à environ 150 km en amont de la ligne côtière

en une rivière que nous appellerons Lower Meghna. L'apport détritique provenant du bassin du Gange-Brahmapoutre est estimé à environ $1x10^9$t/an, correspondant à 12% du flux particulaire mondial aux océans (Milliman et Syvitski, 1992). Mais cette valeur reste encore mal définie. Les flux des matières en suspension mesurés pour le Gange et le Brahmapoutre sont respectivement de 440±110 et 500±100 $x10^6$ t/an, variant selon différentes méthodes de mesure utilisées (ISPAN, 1995 ; RSP, 1996). De plus, des bilans sédimentaires ont permis de mettre en évidence qu'une partie non négligeable (30-39%) du flux particulaire se dépose dans des aires de stockage au Bangladesh (Allison *et al.*, 1998). Enfin ces mesures réalisées sur le seul flux de MES sous-estime le flux total. Galy (Galy, 1999) estime, sur la base d'un bilan géochimique, que le flux particulaire himalayen serait en fait jusqu'à 2 fois plus élevé que le flux de MES. Une partie serait déposée dans la plaine du Gange, l'autre correspondrait au flux de charge de fond de la rivière.

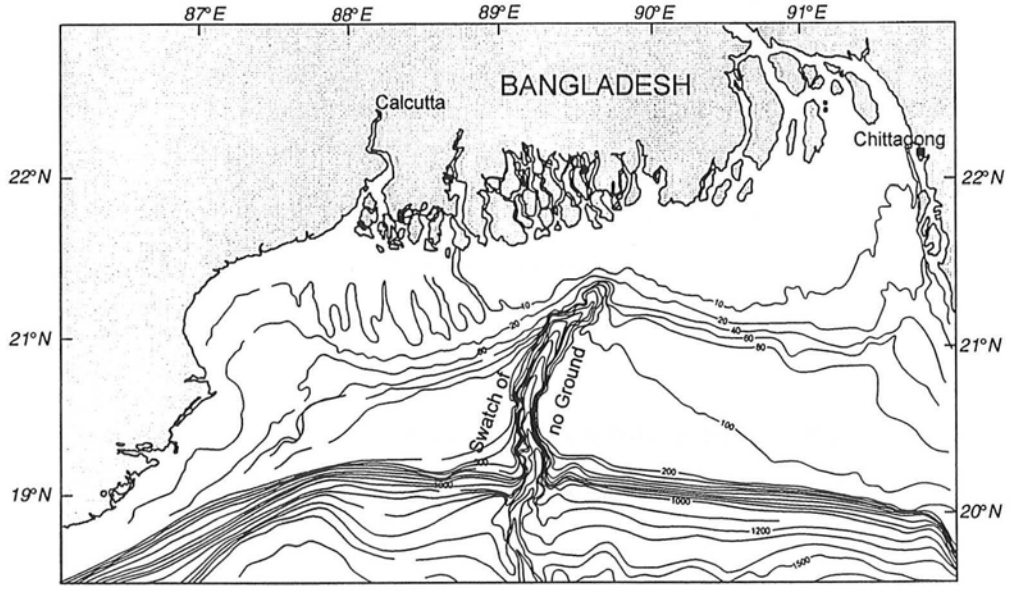

Figure 3 : Représentation de la partie nord de la Baie du Bengale, avec le canyon appelé "Swatch of No Ground" sur la plate-forme continentale (d'après Kudrass (1996)).

Le passage de la plaine et du delta du Gange-Brahmapoutre à l'océan se fait par l'intermédiaire de l'estuaire. La plate-forme continentale est étroite et peu profonde. Elle est entaillée d'un canyon sous-marin appelé « Swatch of No Ground » (« Canyon sans fond »)

(Figure 3) qui constitue la voie principale de transport des sédiments actuels vers l'océan (Coleman, 1969). A partir du chenal central, des chenaux secondaires peuvent être actifs ou abondonnés. Le mode de transport des sédiments se fait par transfert de suspension de rivières (eau douce) à l'océan (eau salée). La différence de densité entre ces deux types d'eaux contribue à garder les matériaux transportés en suspension. Leur sédimentation se fait au fur et à mesure de la diminution de la densité de l'eau de mélange. Les dépôts typiques sont des levées bordant le chenal central, pouvant atteindre 50 m de haut (Kuehl *et al.*, 1989 ; Weber *et al.*, 1997). Au niveau de la plate-forme continentale, les taux de sédimentation peuvent être très élevés en général >5cm/an, pouvant dépasser 30 cm/an au niveau de la tête du canyon sous marin (Kudrass *et al.*, 1998). Les effets conjugués des marées, des vagues ou des tempêtes distribuent de façon ordonnée la charge sédimentaire d'origine himalayenne. Cette charge est transportée de l'embouchure des rivières (au niveau du delta aérien) jusqu'aux aires majeures de dépôts marins, comme le delta sous-marin ou le canyon sous-marin. Tout comme dans la plaine du Gange, le flux particulaire est réduit lors du transport vers l'océan profond par le dépôt des sédiments dans des aires de stockage préférentiels : environ 21% de la charge sont déposés dans les niveaux supérieurs du delta sous-marin, au niveau de l'embouchure de la rivière (Allison *et al.*, 1998). La progradation très rapide (15 m/an (Michels *et al.*, 1998)) de la plate-forme continentale permet de retenir 20% de la charge (Michels *et al.*, 1998). Le reste du flux particulaire, de 20 à 29%, est supposé rejoindre le canyon sous-marin 'Swatch of No Ground' (Goodbred Jr et Kuehl, 1999).

Les dépôts sédimentaires situés dans le Cône du Bengale ont permis d'enregistrer différentes informations chimiques, géochimiques, sédimentologiques, minéralogiques permettant ainsi de reconstituer une histoire tectonique, environnementale ou climatique. Les compositions minéralogiques et chimiques de sédiments clastiques donnent des informations sur l'érosion chimique des roches sources silicatées. Les argiles sont les sous produits directs de l'altération des silicates. Différents forages profonds, comme les leg ODP 116 ou DSDP 218 situés dans la partie distale du cône, ou des forages peu profonds, comme ceux du Sonne (SO 93) ou Marion-Dufresne (MD 77) permettent une représentation des différents environnements de sédimentation dans le Cône du Bengale. Ainsi, l'étude peut se faire à l'échelle du Néogène (Derry et France-Lanord, 1996a ; France-Lanord *et al.*, 1993 ; Galy *et al.*, 1995 ; Reisberg *et al.*, 1997) ou à l'échelle des derniers cycles glaciaires (Colin *et al.*, 1999 ; Duplessy, 1982).

II. A l'échelle du Néogène – Le Leg ODP 116

L'étude des sédiments du Cône du Bengale a permis de retracer l'érosion des bassins versants, ainsi que les relations existant entre les processus d'érosion et les changements climatiques et tectoniques (Bouquillon *et al.*, 1990 ; Burbank *et al.*, 1993 ; Derry et France-Lanord, 1996a ; France-Lanord et Derry, 1994 ; France-Lanord et Derry, 1997 ; France-Lanord *et al.*, 1993 ; Galy *et al.*, 1996 ; Reisberg *et al.*, 1997). Cette érosion a surtout été abordée à partir de l'étude de deux forages du leg ODP 116 (717 et 718) situés dans la partie distale du Cône du Bengale (Figure 1, Figure 2).

Les sédiments du Cône du Bengale sont essentiellement représentés par des turbidites (silts et muds, parfois biogéniques). Divers traceurs, comme le Sr et le Nd, sont utilisés pour reconstituer l'origine de matériaux et les processus d'érosion. Les données de Sr, de Nd (Figure 4 et Figure 5) et d'O indiquent que la source majeure des sédiments du Cône du Bengale est une source âgée, métamorphique, dérivée de paragneiss et de granites, analogue à la HHC actuelle. Cette source n'a que très peu varié au cours des derniers 17 Ma, au vu de la stabilité des compositions isotopiques de Sr et de Nd (France-Lanord *et al.*, 1993). Elles ont des valeurs comprises entre –13.8 et –19.3 pour ε_{Nd} (moyenne= -16.0, σ=1.2) et 0.720 et 0.762 pour $^{87}Sr/^{86}Sr$ (moyenne=0.741, σ=0.009) (France-Lanord *et al.*, 1993). Elles sont similaires à celles mesurées sur des fractions granulométriques <2µm des sols échantillonnés dans le delta du Gange et des sédiments du Gange-Brahmapoutre (France-Lanord *et al.*, 1993 ; Galy, 1999 ; Goldstein *et al.*, 1984). La stabilité des données isotopiques de Sr et de Nd depuis le Miocène inférieur et les données géochronologiques acquises sur les sédiments très anciens implique qu'une chaîne, soumise à une exhumation rapide, assez similaire à la chaîne actuelle existe depuis l'Oligocène.

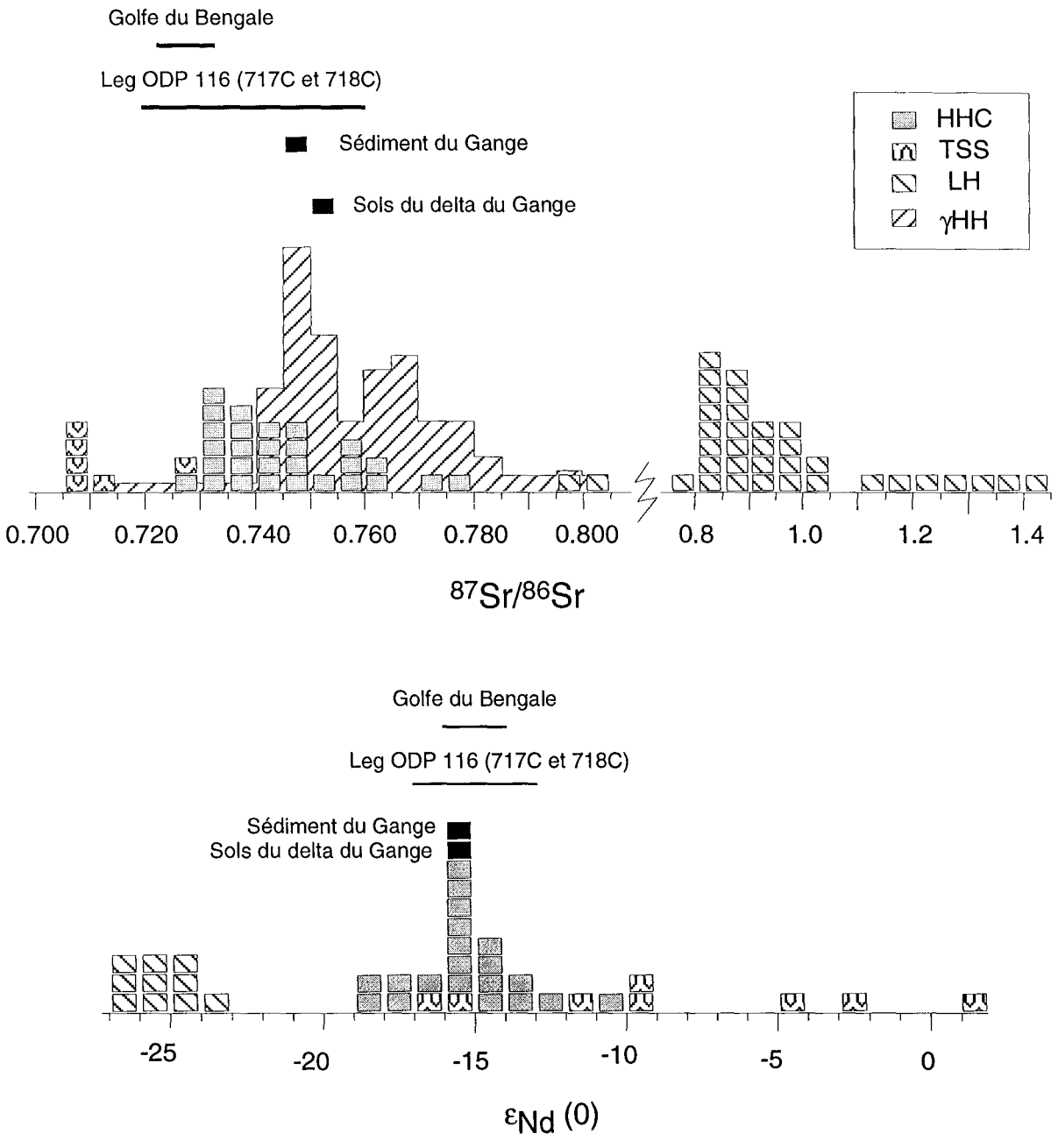

Figure 4 : Histogrammes des compositions isotopiques de Sr ($^{87}Sr/^{86}Sr$) et Nd (εNd) pour les unités géologiques himalayennes, ainsi que les sédiments du Leg ODP 116, de sols et sédiments du Gange (d'après les données de Colin et al. (1999) et France-Lanord et al. (1993)). HHC: Dalle du Tibet, TSS: Séries Sédimentaires Téthysiennes, LH: Moyen Pays et γHH: leucogranite du Haut Himalaya.

L'étude du cortège argileux a permis de mettre en évidence trois périodes de sédimentation différentes (Figure 5) : avant 7 Ma et depuis 0.9 Ma, les sédiments sont à dominante silteuse avec des taux de sédimentation élevés et des argiles dominées par le couple illite-chlorite (IC). Entre 7 et 0.9 Ma, les sédiments se sont déposés à des taux plus faibles, avec une dominante argileuse de type smectite-kaolinite (SK) (Bouquillon *et al.*, 1990). Ce

changement minéralogique correspond à une décroissance significative du taux d'accumulation de sédiments et une augmentation du rapport $^{87}Sr/^{86}Sr$ des argiles secondaires. De plus, cette transition est marquée par une expansion des plantes C4 dans le bassin, c'est-à-dire l'apparition de la savane. Cette période implique un épisode d'altération chimique plus forte et d'érosion physique amoindrie dans la Plaine du Gange-Brahmapoutre (Derry et France-Lanord, 1996b).

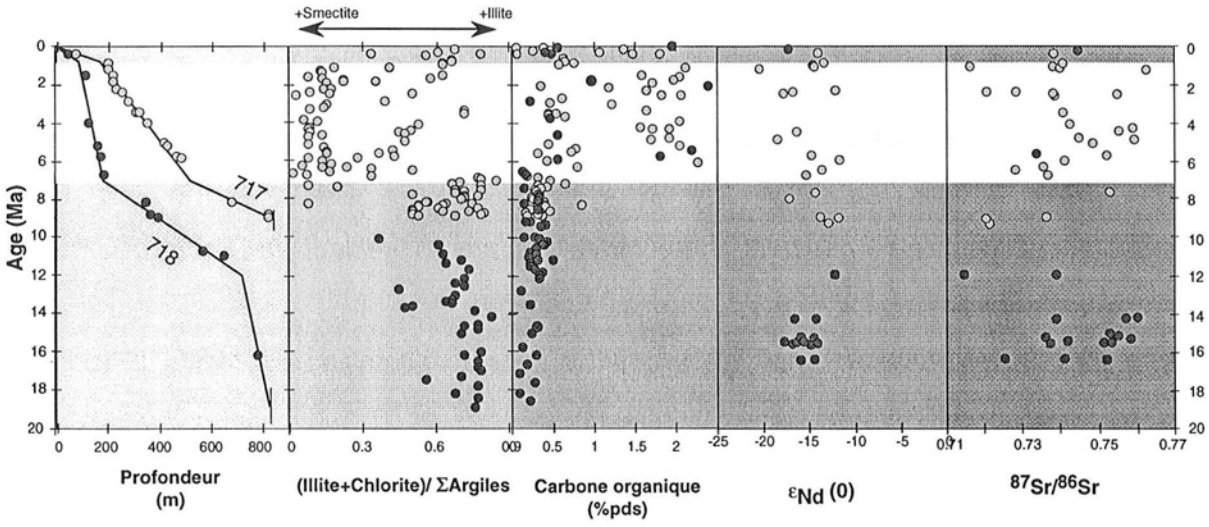

Figure 5 : Profil selon l'âge de la profondeur, de l'assemblage argileux, de la granulométrie et de la proportion de carbone organique des sédiments du Leg ODP 116, (d'après Derry et France-Lanord (1996b) ; France-Lanord et Derry (1994) ; France-Lanord et al. (1993) et Galy et al. (1995).

III. A l'échelle des derniers cycles glaciaires

L'étude de carottages par piston dans la partie nord du Cône du Bengale a permis d'examiner la réponse de la sédimentation aux cycles climatiques récents (Colin *et al.*, 1998 ; Colin *et al.*, 1999). Les carottes ont été prélevées dans des dépôts semi-pélagiques à faible vitesse d'accumulation (8-12 cm/ka pendant les périodes glaciaires et 4 cm/ka pour les périodes interglaciaires (Colin *et al.*, 1999)) et représentent des enregistrements paléoclimatiques remarquables (Duplessy, 1982). L'utilisation de la composition isotopique de Sr et de Nd, et des propriétés minéralogiques et magnétiques des argiles a permis de mettre en évidence une variabilité temporelle, mais aussi géographique, dans la distribution des sources détritiques au cours du dernier maximum glaciaire. Les sédiments holocènes échantillonnés dans la partie ouest de la Baie sont essentiellement issus de la chaîne

himalayenne, par l'intermédiaire du système de rivières du Gange-Brahmapoutre, comme l'ont indiqué les sédiments de la partie distale du Cône (France-Lanord *et al.*, 1993 ; Galy *et al.*, 1996). Par contre, dans la partie est, un mélange de sédiments de type himalayen avec une source probablement indo-birmane est proposée. Les sédiments analysés dans l'étude de Colin *et al.* (1999) se distinguent des sédiments du leg ODP 116 par une signature Sr moins radiogénique ($^{87}Sr/^{86}Sr$=0.712-0.732 ;Colin *et al.* (1999)), qu'ils se trouvent dans le prolongement du Cône du Bengale ou dans la Baie. Pour les sédiments situés dans la Baie, la source des sédiments correspond à un mélange de 3 sources : les sédiments issus du Gange-Brahmapoutre, ceux de l'Irrawady et ceux dérivés de l'érosion de la partie ouest de la chaîne indo-birmane (côte d'Arakan) (Colin *et al.*, 1999).

A la différence des sédiments holocènes, ceux correspondant au dernier maximum glaciaire montrent un rapport $^{87}Sr/^{86}Sr$ plus radiogénique, mais une signature εNd identique. Ces compositions isotopiques représentent celles d'un mélange de sources : des sédiments du système Gange-Brahmapoutre et ceux de la partie ouest de la chaîne indo-birmane. Ce mélange à deux pôles, au lieu de trois durant l'Holocène, peut s'expliquer par un changement dans les circulations superficielles des eaux océaniques, engendré par la mise en place de cyclones ou anticyclones (Colin *et al.*, 1999).

A une échelle plus restreinte par rapport aux sédiments du Leg 116, des changements dans le cortège argileux pendant les périodes glaciaires-integlaciaires ont été montrés (Colin, 1997). Les périodes glaciaires sont plutôt caractérisées par un cortège illite-chlorite, provenant de l'érosion physique de la chaîne himalayenne, tandis que les périodes interglaciaires sont caractérisées par un cortège de smectites issues de l'érosion chimique des minéraux détritiques maintenus dans la plaine indo-gangétique. Ces changements minéralogiques sont à relier au système climatique de mousson.

IV. L'Os dans le Cône du Bengale

Pour tester l'hypothèse du contrôle de la composition isotopique d'Os des océans par l'érosion himalayenne, nous avons entamé l'étude de sédiments du Cône du Bengale. Cette première étude a fait l'objet d'un article de Reisberg *et al.* (1997) joint en Annexe 1. Des

sédiments provenant du Leg ODP 116 ont été analysés en roche totale et en lessivage. Ils couvrent la période des 16 derniers Ma.

La composition isotopique d'Os des sédiments mesurée par lessivage montre une évolution marquée (Figure 6). Les sédiments les plus récents ont des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ comparables à celui de l'eau de mer ($^{187}Os/^{188}Os$=0.94), qui augmentent progressivement pour atteindre des valeurs comprises entre 1.2 et 1.6 dans la section datée du Miocène. Les sédiments analysés en roche totale sont moins radiogéniques que leurs lessivages correspondants.

Les lessivages des sédiments du Gange actuel ont un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de 2 (Pegram *et al.*, 1994) nettement supérieur à ceux des lessivages des sédiments récents du Leg ODP 116, ce qui suggère que l'Os aurait été échangé avec de l'Os marin au cours du transport des sédiments. Pour les sédiments les plus anciens, la faible concentration en Re ne permet pas d'expliquer l'augmentation des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ par simple décroissance radiogénique *in situ*. De même, l'altération diagénétique *in situ* de sédiments radiogéniques ne satisfait pas l'observation puisque le rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de la roche totale est moins radiogénique que celui des lessivages.

Sur la base de ces observations, nous avions proposé un modèle où (1) l'Os des sédiments apporté à l'océan échange sa fraction radiogénique avec l'Os dissous marin expliquant le faible rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de 0.98 des lessivages des dépôts récents et (2) de l'Os radiogénique de sédiments plus anciens est apporté par des circulations thermoconvectives (Ormond *et al.*, 1995) de parties plus profondes du Cône. Ces deux mécanismes impliqueraient des apports d'Os radiogénique aux océans via le flux particulaire.

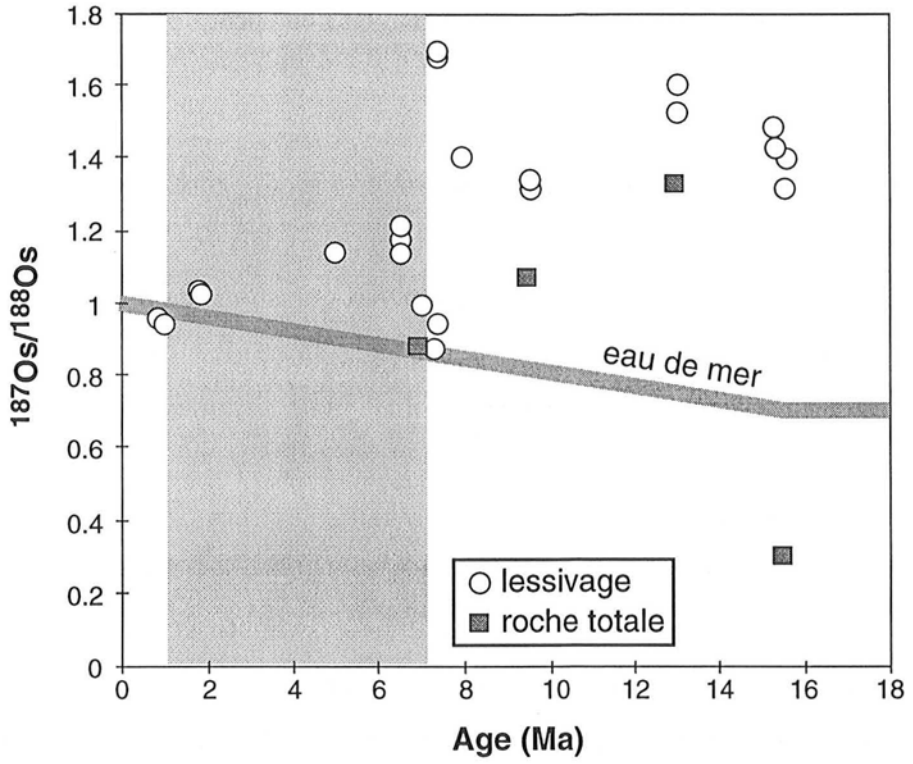

Figure 6 : Composition isotopique d'Os de lessivages et de roches totales de sédiments provenant du Leg ODP 116 (d'après Reisberg et al. (1997)).

Afin de tester ces hypothèses, nous avons mené une étude sur des sédiments déposés entre aujourd'hui et -300 000 ans dans le Cône du Bengale. Cette étude est présentée sous forme d'un article en anglais soumis à la revue *Paleoceanography*. Les échantillons étudiés proviennent de carottage par piston effectués lors de la campagne SO 93 du Sonne en 1994. Ces carottages portent sur les dépôts des systèmes de levées localisés autour du drain de transport actif (Weber *et al.*, 1997) du Cône et dans des zones de dépôts semi-pélagiques comparables à ceux étudiés par Colin *et al.* (1999). La composition chimique en éléments majeurs et traces des sédiments SO 93 est présentée en Annexe 2.

Résumé (traduit en français)

Les compositions isotopiques de Sr, de Nd et d'Os de sédiments de la Baie du Bengale permettent de tracer les sources himalayennes et non-himalayennes de matériel détritique. Basés sur les compositions isotopiques, ces sédiments peuvent être divisés en trois principaux groupes, qui sont reliés à la localisation géographique dans la Baie du Bengale. Le premier groupe est principalement composé de sédiments localisés sur la plate-forme du Bangladesh et

dans le chenal actif. Le Gange et le Brahmapoutre sont les principales sources de matériel dans le Cône. Le rapport isotopique d'Os de 1.2-1.5 montre que la source Himalayenne moyenne de matériel détritique provient du système Gange-Brahmapoutre avec une signature $^{187}Os/^{188}Os$ qui n'est pas forcément très radiogénique. Une grande différence dans le rapport $^{187}Os/^{188}Os$ existe entre les sédiments du Cône du Bengale et les sédiments du Gange, ce qui peut provenir d'un tri minéralogique, de l'ajout d'une composante non-radiogénique du Brahmapoutre ou d'une perte d'Os radiogénique durant le transport. Le second groupe contient les sédiments d'une autre partie de la Baie, localisée sur le pente continentale. Ils montrent une composition isotopique d'Os (0.99-1.11) similaire à la celle de l'eau de mer actuelle, avec des concentrations en Os et Re plus élevées que les sédiments du groupe I. Ces caractéristiques suggèrent la présence d'une contribution hydrogénétique, compatible avec le faible taux de sédimentation de ces échantillons. Les données de Sr et de Nd indiquent qu'une partie importante de ces sédiments est dérivée de l'érosion de sources non-himalayennes, telles que l'érosion de la chaîne Indo-Birmane. Ces observations peuvent être expliquées par la déflection des sédiments du Gange-Brahmapoutre par des courants allant vers l'ouest dans la partie nord de la Baie. Le troisième groupe ne contient qu'un seul échantillon, mais montre qu'en plus de la source himalayenne, la décharge de sédiments du Sri Lanka influence la composante détritique dans la partie distale du Cône.

Des similitudes entre les compositions isotopiques des échantillons du Sonne et ceux du Leg ODP 116 suggèrent que le matériel érodé en Himalaya a été constant depuis le Miocène. Enfin, les rapports isotopiques d'Os élevés des lessivages des sédiments du Sonne et du Leg ODP 116 impliquent que seulement une perte mineure d'Os radiogénique se produit pendant le transport à travers l'estuaire ou par interaction avec l'eau de mer.

Os-Sr-Nd tracing of sediment transport in the Bay of Bengal. Implication for the marine Os record

Anne-Catherine Pierson-Wickmann[1], Laurie Reisberg[1],

Christian France-Lanord[1] and Herman R. Kudrass[2]

1: Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques – CNRS

15, rue Notre-Dame des Pauvres – B.P. 20

F-54501 Vandœuvre-lès-Nancy cedex, France

2: Federal Institute for Geosciences and Natural Resources (BGR)

Stilleweg 2, D-30655 Hannover, Germany

6574 words

Submitted to Paleoceanography

Abstract

The Sr, Nd and Os isotopic compositions of sediments from the Bay of Bengal allow the Himalayan and non-Himalayan sources of detrital material in seawater to be traced. Based on their isotopic compositions, these sediments can be divided into three main groups, which are related to their locations in the Bay of Bengal. The first group is mainly composed of sediments located on the shelf off Bangladesh and in the currently active Fan. The Ganga and Brahmaputra rivers are the dominant sources of material in this part of the Fan. The Os isotopic ratio of about 1.2-1.5 shows that the average Himalayan source of detrital material from the G-B river system is not unusually radiogenic. A large difference in $^{187}Os/^{188}Os$ ratio exists between these Bengal Fan sediments and Ganga bedloads, which may result from mineralogical sorting, addition of a non-radiogenic Brahmaputra component, or loss of radiogenic Os during transport. The second group contains sediments from elsewhere in the Bay, particularly those located on the continental slope. They display an Os isotopic composition (0.99-1.11) similar to that of present seawater, and higher Os and Re concentrations. These characteristics suggest the presence of a large hydrogenous contribution, consistent with the lower sedimentation rate of these samples. The Sr and Nd data indicate that a significant fraction of these sediments is derived from erosion of non-Himalayan sources, such as the Indo-Burman range. These observations could be explained by the deflection of sediments from the G-B river system by westward currents in the head of the Bay. The third group contains only one sample, but shows that in addition to an Himalayan source, sediment discharge from Sri Lanka influences the detrital component in the distal part of the Fan.

The similarity between the isotopic compositions of the Sonne samples and those of ODP Leg 116 suggest that the material eroding in the Himalayas has been roughly constant since the Miocene. Finally, the high Os isotopic ratios of leachates of both Sonne and Leg 116 sediments imply that, at most, only minor loss of radiogenic Os occurs during transport through the estuary or through interaction with seawater.

1. INTRODUCTION

The $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of the oceans has increased greatly during the Cenozoic Era, changing from 0.2 at the K-T boundary [*Pegram et al.*, 1992; *Peucker-Ehrenbrink et al.*, 1995] to 1.06 at present [*Levasseur et al.*, 1998; *Sharma et al.*, 1997]. The rapid evolution of the seawater Os isotopic composition over the past 15 Ma has been attributed by some authors [*Pegram et al.*, 1992; *Peucker-Ehrenbrink et al.*, 1995; *Turekian and Pegram*, 1997] to Himalayan erosion, in analogy with the evolution of oceanic $^{87}Sr/^{86}Sr$ over the same period. These authors stressed the potential importance of the weathering of black shales, which are generally highly radiogenic and Os-rich [*Ravizza*, 1991]. The Lesser Himalaya black shales have radiogenic Os isotopic compositions, with $^{187}Os/^{188}Os$ ratios from 1 to 14.5 and high Os concentrations relative to other Himalayan bedrocks ([Os] from 40 ppt to 13.5 ppb) [*Pierson-Wickmann et al.*, 2000; *Singh et al.*, 1999]. As a consequence, both dissolved loads and particulates carried by many Himalayan rivers display highly radiogenic Os compositions [*Levasseur et al.*, 1999; *Pierson-Wickmann et al.*, 2000; *Sharma et al.*, 1999]. Nevertheless, these river data show a large range of variation. Bulk analyses and leachates of sediments or Mn nodules taken from the Ganga river and its Himalayan tributaries have high $^{187}Os/^{188}Os$ ratios [*Chesley et al.*, 1998; *Pegram et al.*, 1994; *Pierson-Wickmann et al.*, 2000]. On the other hand, not all Himalayan rivers have radiogenic Os compositions. Indeed both sediments and water from the other major Himalayan river, the Brahmaputra, have non radiogenic Os signatures [*Chesley et al.*, 1998; *Pierson-Wickmann et al.*, 2000; *Pierson-Wickmann et al.*, 1998; *Sharma et al.*, 1999].

Os isotopic results spanning 16 Ma are available from Leg ODP 116, located in the distal part of the Bengal Fan [*Reisberg et al.*, 1997]. These results show that bulk sediments have relatively low $^{187}Os/^{188}Os$ ratios, comparable to those of the Brahmaputra bedloads, while leachates almost always have higher ratios. The $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of the leachate of the shallowest Leg ODP 116 sample is indistinguishable from that of seawater, suggesting that the radiogenic leachable Os carried by Ganga river particles [*Pegram et al.*, 1994] may be completely removed prior to sediment deposition in the Fan. The $^{187}Os/^{188}Os$ ratios of the leachates increase with depth, which was interpreted to result from the addition of ^{187}Os brought in by thermo-convective circulation in the sedimentary pile. In order to test these hypotheses we have analyzed recent sediments from RV Cruise Sonne SO93 for Os, Sr and Nd isotopic compositions.

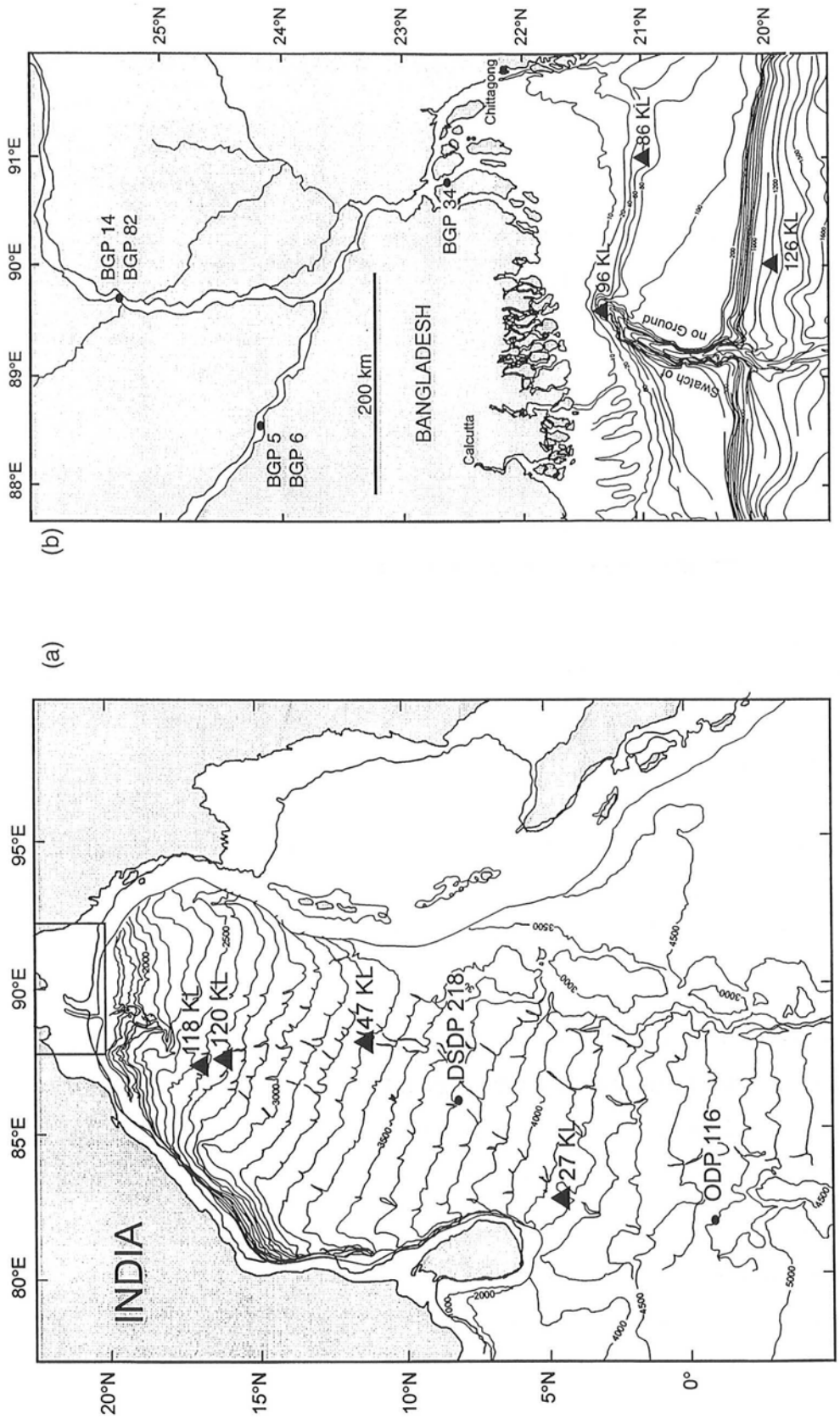

Figure 1 : Schematic map of sample locations from the Sonne cruise 93 in the Bengal Fan. Triangles represent the different cores of samples analysed in this study. Dots indicate the position of the Leg DSDP 218 and Leg ODP 116 cores. Rectangle indicates map area of Fig.1b. BGP samples from the Ganga and Brahmaputra were analysed for Os, Sr and Nd in previous studies [Galy, 1999; Pierson-Wickmann et al., 2000].

2. STUDY AREA AND SAMPLES

2.1 Study Area

The Bengal Fan represents the largest reservoir of terrigenous sediments in the world and provides a very important tool for reconstituting the history of Himalayan erosion and its relationship to orogenic processes. The Bengal Fan is dominated by a detrital input deposited by
turbiditic sedimentation [*Bouquillon et al.*, 1990; *Kudrass*, 1996; *Weber et al.*, 1997], with variable sedimentation rates [*Kudrass*, 1996]. The Bangladesh shelf is located in the northern part of the Bengal Fan, at the issue of the estuary of the G-B river system. This shelf is cut by the head of the submarine canyon called "Swatch of No Ground". This canyon, characterized by the world's highest rate of sediment supply to the oceans [*Milliman and Meade*, 1983], is in fact a channel transporting turbiditic sediments to the deep sea fan. The principal function of this canyon is to channel the particulate charge toward the deep ocean during the high fluvial discharge of the monsoon [*Weber et al.*, 1997].

Previous studies based on Sr, Nd and O isotope compositions of marine sediments from the distal Bengal Fan (Leg ODP 116) have shown that the source of detrital sediment was essentially constant since the early Miocene and dominantly Himalayan [*Bouquillon et al.*, 1990; *Derry and France-Lanord*, 1996; *France-Lanord et al.*, 1993; *Galy et al.*, 1996]. Nevertheless, a small part of the particulate budget is thought to be derived from a non-Himalayan component, such as the Indian continent, the eastern part of the Deccan Traps or Sri Lanka [*Derry and France-Lanord*, 1996; *France-Lanord et al.*, 1993; *Galy et al.*, 1996]. A recent study based on sediments from throughout the Bay of Bengal [*Colin et al.*, 1999] suggests that isotopic compositions show a geographic dependence. Sediments from the western part of the Bay of Bengal are essentially from G-B system, whereas in the eastern part, sediments represent a mixture between those derived from G-B river, the Irrawady river and the Arakan Coast [*Colin et al.*, 1999].

2.2 Samples

The samples in this study were taken from 7 different cores (Fig. 1), drilled during cruise SO 93 with R.V. Sonne in the Bengal Fan, from the shelf off Bangladesh to the distal part of the Fan. These cores extend over a time period of about 300 kyr, which covers the last eight oxygen isotopic stages. The core 86 KL is located on the Bengal Shelf, where two major

Himalayan rivers (Ganga, Brahmaputra) join and enter the Indian Ocean. It is characterized by a sedimentation rate of 5 cm/yr. 96 KL corresponds to the head of the shelf canyon, named " Swatch of No Ground " [*Kudrass et al.*, 1998; *Weber et al.*, 1997]. It is considered as a trap for sediments, with a sedimentation rate estimated at more than 30 cm/year. Located about 150 km south of 86 KL, and 150 km east of the canyon, 126 KL corresponds to the upper continental slope of Bangladesh, with a sedimentation rate of 0.01 cm/yr, which is high for hemipelagic conditions. 120 KL and 118KL were drilled in an active canyon levee, in the midfan area [*Weber et al.*, 1997]. These cores correspond to outer and inner levees, respectively. 47 KL represents an ancient levee, to the east of the active canyon. 27 KL is in the distal part of the fan, in the modern active channel, between DSDP Hole 218 and ODP Leg 116 sites. The sediment ages have been determined using AMS ^{14}C dating, oxygen isotope stratigraphy and two tephra layers from Toba eruptions [*Kudrass*, 1996].

3. ANALYTICAL PROCEDURES

3.1 Sr and Nd isotopic analyses

Sediment samples were washed with distilled water (Milli-Q) in order to remove marine chlorides. Sediments were leached with 5% acetic acid, to decarbonate, for 30 min in an ultrasonic bath. Leachate and residue were separated by centrifuging, and the residue was rinsed repeatedly with distilled water to eliminate any trace of carbonate solution. Spiked samples were dissolved with an HF-HNO_3-$HClO_4$ mixture followed by HCl. A first chemical separation used quartz columns with AG50-X8 cationic exchange resin for separation of Sr and light REE. Nd and Sm were isolated by reverse-phase chromatography on HDEHP-coated Teflon powder. Sr and Nd isotopic compositions and concentrations were determined by isotope dilution mass spectrometry and measured using a Finnigan MAT 262 in static mode. Sr isotopic ratios were normalized to $^{86}Sr/^{88}Sr=0.1194$. The mean value of $^{87}Sr/^{86}Sr$ for NBS-987 was 0.710195± 36 during the period of analysis. Nd isotopic ratios were normalized to $^{146}Nd/^{144}Nd=0.7219$, and the mean $^{143}Nd/^{144}Nd$ ratio of the Johnson Mattey standard was 0.511110± 27. Sr blanks were 300 pg, with a $^{87}Sr/^{86}Sr$ ratio of 0.710. Nd blanks were 150 pg. These Nd and Sr blank levels are negligible.

3.2 Re-Os isotopic analyses

Re and Os were extracted by two methods : (1) hydrogen peroxide-sulfuric acid washing to separate the leachable component, presumably of hydrogenous origin. The H_2O_2 leaching technique used was the same as that of [*Reisberg et al.*, 1997] and nearly identical to that developed by [*Pegram et al.*, 1994; *Pegram et al.*, 1992], allowing direct comparison with the results of these earlier studies. (2) Acid digestion using the procedure developed by [*Birck et al.*, 1997] to obtain the bulk rock composition. In both procedures ^{185}Re and ^{190}Os tracers were added before sample digestion to allow Re and Os concentrations to be determined by isotope dilution. These methods were also used for the determination of the Os isotopic compositions and Os and Re concentrations of Himalayan samples [*Pierson-Wickmann et al.*, 2000], allowing a direct comparison with these results. Total blank levels were about 0.3 pg and 30 pg for Os and Re, respectively, for about 2 g of sample powder. Os was analyzed by negative thermal ionization [*Creaser et al.*, 1991; *Völkening et al.*, 1991] using a Finnigan MAT 262 mass spectrometer. Re concentrations were calculated by isotope dilution after measurement of the ^{187}Re/^{185}Re ratio by ICPMS (Elan 6000).

Table 1 : Sr, Nd and Os isotopic data from marine sediments from the Sonne SO 93 drillholes.

Sample	Age	Isotopic stage	Sedim. rate (cm/yr)	$^{87}Sr/^{86}Sr$	[Sr] (ppm)	εNd	[Nd] (ppm)	$^{187}Os/^{188}Os$ *(b)*	[Os] *(b)* (ppt)	[Re] *(b)* (ppt)	$^{187}Re/^{188}Os$ *(b)*	$^{187}Os/^{188}Os$ *(l)*	[Os] *(l)* (ppt)	[Re] *(l)* (ppt)	$^{187}Re/^{188}Os$ *(l)*	Os *(l)* fraction (%)	Re *(l)* fraction (%)
27 KL 052-055	Holocene	1	0.005	0.72748	84	-17.8	31.0	1.086	90	2909	175	1.042	32	2175	364	35.7	74.8
47 KL 728-732	270 kyr	8	Old Fan	0.74507	110	-15.5	34.6	1.218	46	479	57	1.320	20	233	62	42.6	48.6
86 KL 038-041	5-10 yr	1	5	0.73994	102	-14.0	36.7	1.267	24	279	64	1.356	7	121	97	28.7	43.4
86 KL 817-820	250-300 yr	1	5	0.74192	96	-12.0	34.5	1.242	27	192	39	1.429	6	86	79	22.4	44.8
96 KL 077-080	0 yr	1	37	0.74393	112	-14.1	35.8	1.341	25	181	40	1.553	8	99	73	30.7	54.7
96 KL 1107-1111	30 yr	1	37	0.74425	96	-14.9	38.5	1.296	46	225	27	1.721	15	150	61	31.9	66.7
118 KL 029-032	< 1000 yr	1	0.03	0.74040	109	-14.3	36.3	1.166	56	435	43	1.316	13	334	138	24.2	76.8
120 KL 348-349	6000 yr	1	0.06	0.74467	99	-14.5	37.5	1.351	74	645	49	1.819	20	412	124	26.4	63.9
120 KL 579-582	10 kyr	1	0.06	0.74723	100	-15.3	32.0	1.515	43	787	104	1.596	12	580	273	28.3	73.7
120 KL 787-789	10.5 kyr	1	0.06	0.74129	128	-14.4	32.1	1.506	43	828	109	1.597	14	565	225	33.3	68.2
120 KL 1071-1072	14.8 kyr	2	0.06	0.72989	94	-9.4	33.5	0.969	57	1355	127	1.014	18	954	279	32.2	70.4
120 KL 1114-1117	15 kyr	2	0.06	0.73811	144	-14.6	35.8	1.443	36	815	127	1.806	9	510	343	24.2	62.6
126 KL 039-041	5800 yr	1	0.007	0.72936	93	-11.7	27.4	1.110	93	9667	564	1.055	41	8385	1090	44.6	86.7
126 KL 178-180	Last glacial	2	0.007	0.72400	101	-10.9	32.5	0.980	109	2230	109	0.994	37	1801	261	33.9	80.8
126 KL 601-603	Stage 4	4	0.007	0.72452	105	-11.1	32.0	0.982	107	4669	233	0.999	39	3683	510	36.1	78.9
126 KL 801-802	Stage 5	5	0.007	0.72527	93	-10.6	29.0	0.997	128	11108	465	1.010	44	6310	775	34.1	56.8

Sr and Nd isotopic data were determined on silicate fraction and Os on bulk sediment (b) and leachate (l). Isotopic stages 5 and 1 are considered as interglacial periods and isotopic stages 8, 4 and 2 as glacial periods.

4. RESULTS

The Nd, Sr (silicate fraction) and Os (bulk and leachate) isotopic data are listed in Table 1. $^{87}Sr/^{86}Sr$ and ε_{Nd} values of SO93 sediments vary between 0.724 and 0.747 and –9.4 and –17.8, respectively (Fig. 2a). The range of Nd and Sr concentrations, 27-38 ppm for Nd and 84-144 ppm for Sr, are similar to those of previously published Ganga-Brahmaputra and Bay of Bengal data [*Bouquillon et al.*, 1990; *Colin et al.*, 1999; *France-Lanord et al.*, 1993; *Goldstein and Jacobsen*, 1988]. The sediments may be separated into three main groups based on the Sr and Nd isotopic data. The first group (group I) includes the majority of the samples, with $^{87}Sr/^{86}Sr$ ratios of 0.740-0.750 and ε_{Nd} of –15.5 to -14.0, which are similar to the ratios of the High Himalayan Cristalline series rocks [*France-Lanord et al.*, 1993]. This group corresponds to turbidites (47KL, 86KL, 96KL, 118KL and 120 KL) sampled near the active canyon and shelf off Bangladesh. The second group (group II) defined by a $^{87}Sr/^{86}Sr$ ratio of 0.725-0730 and εNd of –9.4 to -11.7, is composed mainly of sediments from 126KL on the continental shelf, but also includes one sample (120KL 1071-1072) from the canyon levee. The third group (group III) is represented by one sample (27KL) in the active channel in the distal part of the Bengal Fan, combining a low $^{87}Sr/^{86}Sr$ ratio and a very low εNd value (-17.8).

Os concentrations of bulk sediments range from 24 to 128 ppt and the leachable fraction represents between 22 and 44 % of the total Os. The Re concentrations are more variable, ranging from 86 ppt to 11 ppb. The leachable Re fraction remains quite high relative to the total Re fraction, between 44 and 87 %. These Os and Re concentrations are comparable with those found in Leg ODP 116, in the distal part of the Bengal Fan [*Reisberg et al.*, 1997]. The Os concentrations of bulk sediments are higher than those of bedloads of the feeding rivers [*Pierson-Wickmann et al.*, 1999]. As was found in leg ODP 116 samples [*Reisberg et al.*, 1997], the Os isotopic composition of the bulk fraction, ranging from 0.97 to 1.51, is always less radiogenic than that of the leachable fraction (from 0.99 to 1.82), except in the case of the most distal sample (27KL) and also for one of the 126 KL samples. The Os isotopic ratios of the bulk samples can be divided into the same three groups defined by the Sr and Nd data. The first group has radiogenic Os ratios (1.17-1.52 for bulk, and 1.32-1.81 for leachate), while the second and third have Os isotopic ratios (0.97-1.11 for bulk, and 0.99-1.06 for leachate), comparable to the present seawater value (1.06 ; [*Levasseur et al.*, 1998; *Sharma et al.*, 1997]). The SO93 samples are less radiogenic than the Ganga bedloads, and

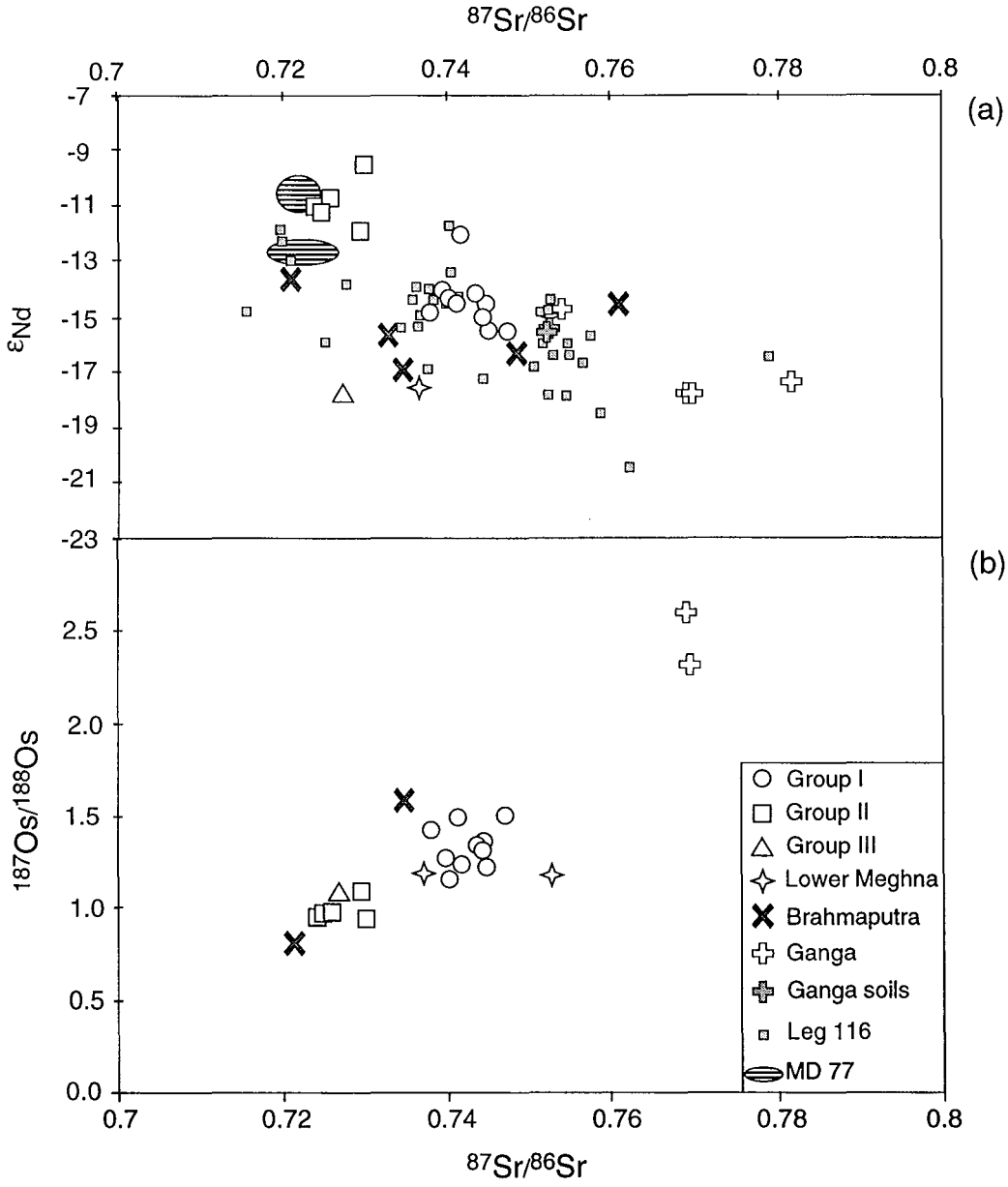

Figure 2 : Os, Sr and Nd isotopic compositions of marine sediments from the Sonne cruise 93. Sr and Nd were determined on silicate fractions of sediments and Os on bulk sediments. MD 77 data from [Colin et al., 1999].

have $^{187}Os/^{188}Os$ ratios close to those of the Brahmaputra river bedloads [*Chesley et al.*, 1998; *Pierson-Wickmann et al.*, 2000]. The distribution of the $^{187}Os/^{188}Os$ ratios versus ^{188}Os concentration (Fig. 3) of bulk sediments and leachates displays a trend towards less radiogenic Os compositions at increasing Os concentration. The samples with the highest Os concentrations and lowest $^{187}Os/^{188}Os$ ratios are those of groups II and III. These samples, which come from areas of relatively low sedimentation rate, also have Re concentrations (2-11 ppb) much higher than those of typical continental rocks and sediments. Taken together, these observations suggest a large hydrogenous contribution to groups II and III.

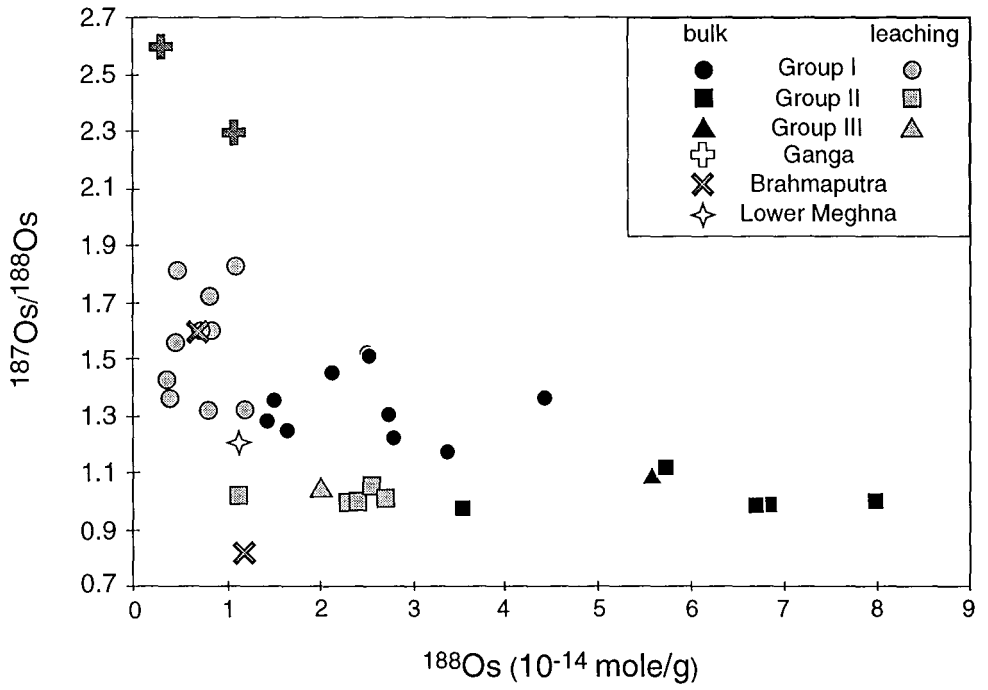

Figure 3 : Os isotopic composition ($^{187}Os/^{188}Os$) of Sonne sediments versus the ^{188}Os abundance. The $^{187}Os/^{188}Os$ ratios of bulk and leachate sediments are comprised between those of Ganga and Brahmaputra river bedloads. Note that the Os concentration of bulk Fan sediment is sometimes much higher than that of continental bedloads. The sediments with the highest Os ratio have also the lowest Os concentration.

The variations of the Nd, Sr and Os isotopic compositions are not related to sample ages, but rather to geographic location. No conclusion concerning glacial-interglacial variations can be drawn, because of the small number of samples from each core. The sudden change in the isotopic composition of Nd, Sr and Os of core 120KL raises the question of the time resolution of the sediment profiles, since over a few centimeters the isotopic compositions can change greatly.

5. SOURCE OF SEDIMENTS

5.1. Origin of Bengal Fan sediments

The Sr, Nd and Os isotopic data (Fig. 2) can be interpreted in terms of sources of material deposited in the Bengal Fan. The potential sources of Bengal Fan material are the Himalayan flux carried by the Ganga and Brahmaputra rivers and non-Himalayan areas such as the Deccan Traps, Eastern India, Sri Lanka and the Arakan Coast to the east of the Bay of

Bengal. Ganga and Brahmapura particles are known from isotopic data on the modern river system and soils of the delta [*Derry and France-Lanord*, 1996; *Galy and France-Lanord*, 1999; *Goldstein and Jacobsen*, 1988; *Pegram et al.*, 1994; *Pierson-Wickmann et al.*, 2000]. They display relatively variable values with a tendancy towards more radiogenic values for Sr and Os isotopic ratios of the Ganga material compared to that of the Brahmaputra river. One sample of the Lower Meghna (BGP 34) represents an average mixture of the G-B inputs before entering the ocean and is characterized by a bulk $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of 1.20 and [Os] of 29 ppt, $^{87}Sr/^{86}Sr$=0.73790-0.75305 and εNd from −17.8 to −14.8 [*Galy*, 1999]. Soils from Bangladesh have very similar Sr-Nd signatures.

Group I

Bengal Fan samples belonging to Group I have Sr, Nd and Os isotopic signatures very similar to those of the Lower Meghna which suggest that most material deposited in the submarine delta and the main Channel levee system is almost exclusively supplied by the G-B river system. These data, derived from different parts of the Bengal Fan with ages between present and 300 kyr, imply that the riverine detrital mixture has been remarkably stable. The Bengal fan sediments have isotopic signatures very similar to that of one Brahmaputra sediment sampled during the monsoon (BGP 14; [*Pierson-Wickmann et al.*, 2000]) and are less radiogenic in Sr and Os than Ganga sediments. At first glance, this might suggest that Ganga sediments are almost absent in the fan, but this interpretation is ruled out by the presence of 1 to 3 wt% of detrital calcite and dolomite in fan sediments, which is characteristic of the Ganga flux [*Höhndorf et al.*, in press]. Ganga sediments carry from 4 to 7 wt% of detrital carbonates, whereas the Brahmaputra is almost free of carbonate [*Galy et al.*, 1999].

Three hypotheses can be proposed to explain the apparent low proportion of Ganga material in the Fan sediments. First, Ganga and Brahmaputra end-members, as defined by the current dataset, could be non-representative. In particular, the average Brahmaputra input could be less radiogenic in Sr and Os as observed on one sample collected during the dry season (BGP 82; [*Pierson-Wickmann et al.*, 2000]). Alternatively, mineralogical sorting could produce river bedloads with Sr and Os isotopic compositions more radiogenic than those of Fan sediments. Sr isotopic composition is strongly dependent on the biotite abundance in the sediment. Since biotites in the G-B system are derived disproportionately from weathering of the relatively unradiogenic Tethyan Sedimentary Series in the northern

part of the Himalayan chain, Fan sediments, which contain higher proportions of biotite than do bedloads, are likely to have somewhat lower $^{87}Sr/^{86}Sr$ ratios. Os distribution is still unknown but its isotopic distribution is not homogeneous as shown by the systematically higher ratio of the leachable Os compared to the corresponding bulk Os. The main mineralogical difference between river and fan samples is that bedloads are significantly coarser and more quartz rich than fan sediments (Fig 4). This however does not provide a simple explanation for a possible isotopic fractionation of Os with mineralogical sorting. Finally, a third hypothesis is that the Fan sediments have lost radiogenic Os and perhaps Sr during river and marine transport or after deposition. A decrease in $^{187}Os/^{188}Os$ is observed between bedloads from Himalayan rivers and those from the Ganga [*Pierson-Wickmann et al.*, 2000] which might argue in favor of this possibility. The fact that the leachable, and presumably more mobile, Os fractions of Group I sediments are always more radiogenic than the corresponding bulk sediments, is also in accord with this suggestion. However even if radiogenic Os loss has occurred, it cannot explain the higher Os concentrations of the Fan sediments. Some mineralogical concentration of Os-rich phases must also have taken place.

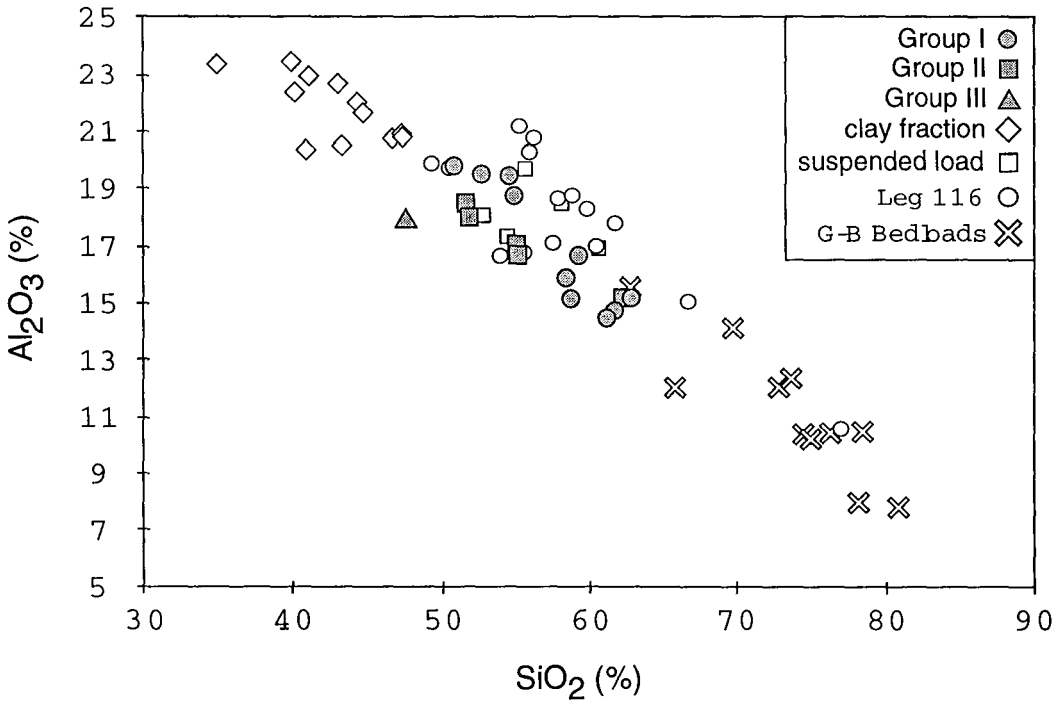

Figure 4 : Al_2O_3 (%) versus SiO_2 (%). The field of SO93 sediments is similar to that of Leg ODP 116 sediments and suspended load from the Ganga-Brahmaputra river system.

Group II

Group II samples are characterized by distinctly less radiogenic Os and Sr isotopic compositions and higher εNd values than those of Group I. These compositions are not compatible with known values for the G-B rivers and imply that another source of detrital particles is mixed with the G-B flux. The group II Sr-Nd values are very similar to those observed by Colin et al [*Colin et al.*, 1999] among low accumulation rate sediments of the north-eastern Bay of Bengal. Based on both the distribution of isotopic data and the current dynamic in the Bay of Bengal, these authors proposed that the additional source could be the erosion of the Indo-Burman range through the drainage of the Arakan coast. The isotopic composition of this end-member is unknown, which makes it impossible to assess the proportion of mixing with the G-B particle flux.

Most samples of group II belong to Core 126KL which consists of hemipelagic muds with sedimentation rates around 0.007 cm/yr which is 10 to 1000 times lower than those of cores of the nearby submarine delta. Detailed study of this zone shows that accumulation rates decrease very rapidly towards to the south of the shelf [*Michels et al.*, 1998]. Sr and Nd isotopic data indicate that the G-B flux does not dominate the sedimentation in core 126KL, despite the fact that this core is located just 250 km south of the rivers' outflow. Thus westward currents at the mouth of the G-B system are strong enough to divert most of the G-B particle flux. Sample 126KL 39-41 is marked by a higher proportion of the G-B end-member. This is consistent with the observed slight increase of the abundance of detrital carbonates in the core during the Holocene [*Höhndorf et al.*, in press].

Another sample of Group II is found at 1.07 m depth in Core 120KL, which was taken in the east outer levee of the active channel [*Weber et al.*, 1997]. The rest of the samples from this core are in Group I. This short-lived change in isotopic composition implies that pelagic intervals, which are abundant in the lower part of the core, correspond to periods where the flux of Himalayan material in the channel is temporarily stopped or diverted.

The lower sedimentation rates of the Group II samples imply that a large fraction of the chemical signature of the sediments may be hydrogenous in origin. This suggestion is supported by the Re-Os data. The Os isotopic compositions of these samples approach the seawater value, and the leachates all approach this value more closely than do the corresponding bulk sediments. In addition, the Re concentrations (1.4 - 11 ppb) are much higher than those of typical detrital sediments. This suggests that in regions where the G-B particle flux is minor, the Os and Re are derived largely from seawater. In addition, the low

$^{187}Os/^{188}Os$ ratios of the bulk Group II sediments, and the even lower ratios that can be inferred for the detritic fractions, suggest that this detritus was derived mainly from sources with fairly young crustal residence ages. This inference is in agreement with the lower Sr and higher Nd ratios of these samples.

Group III

Group III, which consists of a single sample (27 KL sediment), has Sr and Os compositions comparable to those of group II. Here again, the Os isotopic ratio is very close to that of seawater, the Re and Os concentrations are high, and the sedimentation rate is low, suggesting that the Re and Os are of mainly hydrogenous origin. On the other hand, the ε_{Nd} value (-17.8) is very low, much lower than those of Group II. This difference can be related to the sediment source. Considering the location of Core 27KL (Fig. 1), southeast of Sri Lanka, the source of this material could be G-B sediments mixed with old crustal material with low ε_{Nd}. The Highland Complex, in the meridian part of Sri Lanka, has the required Sr-Nd signatures [*Milisenda et al.*, 1994].

5.2. Comparison with Leg ODP 116 sediments

The ranges of variation in Os, Sr and Nd isotopic data are similar for sediments from Sonne cruise SO 93 and ODP Leg 116. A detailed comparison between these studies is not possible, as no dataset including Sr, Nd and Os data on the same samples exist for Leg 116, but several observations can be made. The higher than marine Os isotopic ratios of the Leg 116 sediment leachates were explained by diagenetic processes bringing an excess of ^{187}Os from the sedimentary pile [*Reisberg et al.*, 1997], through thermo-convective circulation in the distal part of the Bengal Fan [*Ormond et al.*, 1995]. However, the presence of similarly radiogenic Os sediments in leachates of recent sediments in the active channel and also in an abandoned channel of the deep fan (47KL) indicates that such diagenetic processes are not required. Instead, in both the Leg 116 and the Sonne samples, the leachable radiogenic Os was probably an original component, carried by the detritic particles derived from Himalayan erosion. The similarity of Os compositions between the Group I Sonne and ODP Leg 116 samples implies that Himalayan erosion has been a source of radiogenic Os since the Early Miocene.

The section of Leg 116 between 7.4 and 0.9 Ma is characterized by fine grained smectite and organic carbon rich sediments. In this section, the leachate $^{187}Os/^{188}Os$ ratios, though still higher than that of seawater, are closer to the marine value than are those of the Miocene section [*Reisberg et al.*, 1997]. Sr-Nd-O isotopic data imply that the source of these sediments remained dominated by the Himalaya and therefore that it was essentially the erosional regime that changed during this period [*Derry and France-Lanord*, 1996]. The lower Os isotopic ratio could then reflect a change in the distribution of Himalayan erosion, with for instance less erosion of the Lesser Himalaya black shales which are the main source of radiogenic Os [*Pierson-Wickmann et al.*, 2000; *Singh et al.*, 1999]. There is however no evidence from the Siwalik record to support this hypothesis (Huyges et al, in prep). Two processes, which could modify the initial radiogenic signature of the G-B material, can be proposed to explain the somewhat lower Os isotopic ratios of the middle to late Pliocene section. First, as proposed above, mineralogical sorting could produce a finer grain fraction with lower $^{187}Os/^{188}Os$ ratios. Since the distribution of Os in the sediment is unknown, such an hypothesis is difficult to test. Second, seawater Os could be absorbed on the sediment and overprint the radiogenic signature. Such a process could be enhanced by the clay and organic matter-rich character of the Pliocene sediments, and by the lower sedimentation rate at that time. In this case, the leachable Os component would represent a mixture between Os derived from seawater and more radiogenic Os, ultimately derived from Himalayan erosion, carried by the detritic particles. Interestingly, one Leg 116 sample (57X CC 33-35) has an extremely high Re concentration and an Os ratio equal to the contemporaneous seawater value. This sample may be analogous to the Group II and III Sonne samples. The other samples from the post-7.4 Ma Leg 116 section have Re-Os characteristics intermediate between those of the Group I and Group II Sonne samples.

6. SUMMARY AND CONCLUSION

The distribution of the Sr, Nd and Os isotopic data from the core sediments in the Bay of Bengal shows a geographic dependence. Three groups of sediments can be distinguished on the basis of their isotopic data. These correspond to source variations, which depend on both sediment transport processes and location in the Bay. Sediments from the submarine delta or belonging to the active channel are dominated by Himalayan particles. Immediately to the south of the shelf the Himalayan contribution is much more limited, allowing the effects of other detritic contributions, such as the Indo-Burman range, to be observed. These mixed sediments are present in zones of the fan which are not influenced by the turbiditic deposition associated with the channel levee system. The intense particle flux of the Ganga and Brahmaputra is therefore very efficiently channeled, and overprints the background deposition in the Bay of Bengal. This background detritus appears to be derived from a source with a relatively young crustal residence age.

The results obtained on the recent sediments of the Bay of Bengal have implications for our understanding of the effect of Himalayan erosion on the seawater Os isotopic budget. First, the average Os isotopic composition of the G-B sediments (1.33±0.12) is lower than that of Ganga bedloads (2.3 and 2.6; [*Pierson-Wickmann et al.*, 2000]) and river waters sampled in the same location (2.94; [*Levasseur et al.*, 1999]). This difference is due primarily to mixing with Brahmaputra sediments, which have much less radiogenic Os ratios (0.8 and 1.5). It is thus likely that the average dissolved Os delivered by the G-B system is less radiogenic than that of the Ganga water. This is supported by the only known measurement of Brahmaputra water ($^{187}Os/^{188}Os$=1.07 ; [*Sharma et al.*, 1999]), which is less radiogenic than that of the Ganga ($^{187}Os/^{188}Os$=2.94; [*Levasseur et al.*, 1999] ; $^{187}Os/^{188}Os$=1.59 ; [*Sharma et al.*, 1999]). The effect of Himalayan erosion on seawater Os is therefore lower than what could be expected from the Ganga data alone. Second, both modern (Sonne Group I) and ancient (Leg 116, pre- 7.4 Ma section) high sedimentation rate samples have leachate $^{187}Os/^{188}Os$ ratios that are higher than those of the corresponding bulk sediments and much higher than that of seawater. This implies that little or no loss of radiogenic Os occurs during sediment passage through the estuary or interaction with seawater. Furthermore, the fact that recent sediment leachates also have radiogenic Os ratios implies that hydrothermal convection is not needed to explain the high Os isotopic ratios of the pre- 7.4 Ma Leg 116 section. Instead the radiogenic component was carried by and deposited with the detritic particles. In

lower sedimentation rate samples (Sonne groups II and III, Leg 116 post-7.4 Ma section) this radiogenic component is partly or completely masked by the presence of Os derived from seawater. Finally, the similarity betweeen the Sonne and the ODP Leg 116 results suggests that the material eroding in the Himalaya has been roughly constant since at least 16 Ma.

Reconstructing the past flux of riverine Os from the sedimentary record remains difficult because the distribution of Os in the sediment remains unknown and precludes diagnostic interpretation of observed variations. The systematic difference between leachable and bulk Os shows that the isotopic signature of Os is not homogeneous in these sediments and therefore that processes of mineralogical sorting may control part of the isotopic signature of the samples.

References

Birck J.-L., Roy-Barman M., and Capmas F. (1997) Re-Os isotopic measurements at the femtomole level in natural samples. *Geostandards Newsletter* **20**, 19-27.

Bouquillon A., France-Lanord C., Michard A., and Tiercelin J.-J. (1990) Sedimentology and isotopic chemistry of the Bengal fan sediments: the denudation of the Himalaya. In *Proc. ODP, Sci. Res.*, Vol. 116 (ed. J. R. Cochran, D. A. V. Stow, and et al.), pp. 43-58.

Chesley J. T., Ruiz J., and Quade J. (1998) The $^{187}Os/^{188}Os$ record of Himalayan palaeorivers: Himalayan tectonics and ocean chemistry. *Mineralogical Magazine* **62A**, 323-324.

Colin C., Turpin L., Bertaux J., Desprairies A., and Kissel C. (1999) Erosional history of the Himalayan and Burman ranges during the last two glacial-interglacial cycles. *Earth and Planetary Science Letters* **171**, 647-660.

Creaser R. A., Papanastassiou D. A., and Wasserburg G. J. (1991) Negative thermal ion mass spectrometry of osmium, rhenium, and iridium. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **55**, 397-401.

Derry L. A. and France-Lanord C. (1996) Neogene himalayan weathering history and river $^{87}Sr/^{86}Sr$: Impact on the marine Sr record. *Earth and Planetary Science Letters* **142**, 59-74.

France-Lanord C., Derry L. A., and Michard A. (1993) Evolution of the Himalaya since Miocene time : isotopic and sedimentological evidence from the Bengal Fan. In *Himalayan Tectonics*, Vol. 74 (ed. P. J. Treloar and M. P. Searle), pp. 603-621. Geological Society Special Publication.

Galy A. (1999) Etude géochimique de l'érosion actuelle de la chaîne himalayenne. Doctorat de l'INPL, Institut National Polytechnique de Lorraine.

Galy A. and France-Lanord C. (1999) Weathering processes in the Ganges-Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget. *Chemical Geology* **159**, 31-60.

Galy A., France-Lanord C., and Derry L. A. (1996) Oligo-Miocene uplift and unroofing of the Himalaya: evidence from the Bengal Fan. *Tectonophysics* **260**, 109-118.

Galy A., France-Lanord C., and Derry L. A. (1999) The strontium isotopic budget of Himalayan Rivers in Nepal and Bangladesh. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63**, 1905-1925.

Goldstein S. J. and Jacobsen S. B. (1988) Nd and Sr isotopic systematic of river water suspended material: implications for crustal evolution. *Earth and Planetary Science Letters* **87**, 215-221.

Höhndorf A., Kudrass H. R., and France-Lanord C. (in press) Transfer of the Sr isotopic signature of the Himalayas to the Bay of Bengal. .

Kudrass H. R. (1996) Final report, Bengal Fan, Sonne Cruise SO 93, pp. 170. BMBF, Bonn.

Kudrass H. R., Michels K. H., Wiedicke M., and Suckow A. (1998) Cyclones and tides as feeders of a submarine canyon off Bangladesh. *Geology* **26**, 715-718.

Levasseur S., Birck J.-L., and Allègre C. J. (1998) Direct Measurement of Femtomoles of Osmium and the $^{187}Os/^{186}Os$ Ratio in Seawater. *Science* **282**, 272-274.

Levasseur S., Birck J.-L., and Allègre C. J. (1999) The osmium riverine flux and the oceanic mass balance of osmium. *Earth and Planetary Science Letters* **174**, 7-23.

Michels K. H., Kudrass H. R., Hübscjer C., Suckow A., and Wiedicke M. (1998) The submarine delta of the Ganges-Brahamputra: cyclone-dominated sedimentation patterns. *Marine Geology* **149**, 133-154.

Milisenda C. C., Liew T. C., Hofmann A. W., and Köhler H. (1994) Nd isotopic mapping of the Sri Lanka basement: update, and additional constraints from Sr isotopes. *Precambrian Research* **66**, 95-110.

Milliman J. D. and Meade R. H. (1983) World-wide delivery of river sediment to the oceans. *Journal of Geology* **91**, 1-21.

Ormond A., Boulègue J., and Genthon P. (1995) A thermoconvective interpretation of heat flow data in the area of Ocean Drilling Program Leg 116 in a distal part of the Bengal Fan. *Journal of Geophysical Research* **100**, 8083-8095.

Pegram W. J., Esser B. K., Krishnaswami S., and Turekian K. K. (1994) The isotopic composition of leachable osmium from river sediments. *Earth and Planetary Science Letters* **128**, 591-599.

Pegram W. J., Krishnaswami S., Ravizza G. E., and Turekian K. K. (1992) The record of sea water $^{187}Os/^{186}Os$ variation through the Cenozoic. *Earth and Planetary Science Letters* **113**, 569-576.

Peucker-Ehrenbrink B., Ravizza G., and Hofmann A. W. (1995) The marine $^{187}Os/^{186}Os$ record of the past 80 million years. *Earth and Planetary Science Letters* **130**, 155-167.

Pierson-Wickmann A.-C., Reisberg L., and France-Lanord C. (1999) The osmium budget of himalayan river sediments and soils: Importance of black shale erosion. *9th V. M. Goldschmidt Conference.*

Pierson-Wickmann A.-C., Reisberg L., and France-Lanord C. (2000) The Os isotopic composition of Himalayan river bedloads and bedrocks: Importance of black shales. *Earth and Planetary Science Letters* **176**, 201-216.

Pierson-Wickmann A.-C., Reisberg L., France-Lanord C., and Galy A. (1998) Re-Os isotopc charactersitics of Himalayan river sediments and source rocks. *Mineralogical Magazine* **62A**, 1178-1179.

Ravizza G. E. (1991) Rhenium-osmium geochemistry of modern and ancient organic-rich sediments. Ph. D Thesis, Yale.

Reisberg L., France-Lanord C., and Pierson-Wickmann A.-C. (1997) Os isotopic compositions of leachates and bulk sediments from the Bengal Fan. *Earth and Planetary Science Letters* **150**, 117-127.

Sharma M., Papanastassiou D. A., and Wasserburg G. J. (1997) The concentration and isotopic composition of osmium in the oceans. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **61**, 3287-3299.

Sharma M., Wasserburg G. J., Hofmann A. W., and Chakrapani G. J. (1999) Himalayan uplift and osmium isotopes in oceans and rivers. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63**, 4005-4012.

Singh S. K., Trivedi J. R., and Krishnaswami S. (1999) Re-Os isotope systematics in black shales from the Lesser Himalaya : their chronology and role in the $^{187}Os/^{188}Os$ evolution of seawater. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63**, 2381-2392.

Turekian K. K. and Pegram W. J. (1997) Os isotope record in a Cenozoic deep-sea core : its relation to global tectonics and climate. In *Teconic uplift and climate change* (ed. W. F. Ruddiman), pp. 383-397. Plenum Press.

Völkening J., Walczyk T., and Heumann K. G. (1991) Osmium isotope ratio determinations by negative thermal ionisation mass spectrometry. *Mass Spectrometry and Ion Processes* **105**, 147-159.

Weber M. E., Wiedicke M. H., Kudrass H. R., Hübscher C., and Erlenkeuser H. (1997) Active growth of the Bengal Fan during sea-level rise and highstand. *Geology* **25**, 315-318.

V. Synthèse

La compilation des données isotopiques d'Os obtenues sur des sédiments marins du Cône du Bengale datant du Néogène (Leg ODP 116) et des derniers cycles glaciaires (Carottes SO 93) a permis de nous renseigner sur les sources des sédiments déposés dans la Baie du Bengale d'une part, et sur les processus de transport et de dépôts qui peuvent influencer le cycle de l'Os d'autre part. L'érosion himalayenne domine les sources des sédiments, essentiellement dans le Cône actif. La différence de rapport $^{187}Os/^{188}Os$ des sédiments du Gange et ceux du Cône du Bengale peut être expliquée par la contribution de sédiments du Brahmapoutre qui sont moins radiogéniques que ceux du Gange. Sous l'influence des courants océaniques superficiels et profonds, des sources adjacentes, comme l'érosion de la chaîne indo-birmane dans la partie nord-est de la Baie ou l'érosion de complexes granitiques du Sri Lanka dans la partie distale du Cône, peuvent plus ou moins masquer la composante himalayenne. L'adsorption d'Os marin dissous sur les particules sédimentaires pourrait aussi expliquer les différences isotopiques dans des zones de faible taux d'accumulation sédimentaire.

La similitude des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ radiogéniques entre les sédiments Miocènes du Leg ODP 116 et ceux du SO 93 implique la stabilité de la source himalayenne depuis le Miocène inférieur (16 Ma). L'hypothèse avancée dans Reisberg et al. (1997), d'un apport d'^{187}Os par des processus diagénétiques à l'aide des circulations thermoconvectives, n'est pas justifiée au vu des données obtenues sur des sédiments jeunes de chenaux actifs et abondonnés. La composition isotopique d'Os radiogénique des lessivages de sédiments serait donc originelle. Il n'y a pas d'évidence pour une mobilité importante d'Os radiogénique ni lors du transport des sédiments, ni après leur dépôt dans le Cône.

Conclusion générale

L'apport d'Os continental représente l'apport le plus important d'Os dissous aux océans. La croissance du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de l'eau de mer durant le Cénozoïque a été expliquée par l'érosion himalayenne qui a libéré de l'Os radiogénique à partir de schistes noirs présents dans le bassin du Gange. Mais est-ce vraiment le cas ? Actuellement cette question est largement débattue.

Cette étude s'est intéressée au comportement de l'Os et du Re pendant l'érosion himalayenne, afin d'évaluer le potentiel de l'Os himalayen à influencer l'Os dissous. Mais avant tout, les mécanismes liés à l'érosion ont été abordés. L'étude a été réalisée à partir de matériel particulaire : les sédiments de rivières ; depuis les zones sources (roches en place) jusqu'à l'exutoire des rivières, le Cône du Bengale.

Lors de l'érosion himalayenne

La répartition de l'Os dans la chaîne himalayenne a été déterminée à partir de roches en place échantillonnées dans les trois principales formations (TSS, HHC et LH). Les formations du Haut Himalaya (TSS+HHC) sont caractérisées par des rapports $^{187}Os/^{188}Os$ variant entre 0.9 et 1.6, comparables à celui de la croûte continentale moyenne, et des concentrations en Os variant de 5 à 200 ppt. Le LH se distingue des deux autres formations par la présence deux lithologies particulières riches en Os radiogénique : les schistes noirs et les carbonates impurs ($^{187}Os/^{188}Os$=3-193 et [Os]=95-3200 ppt). Les autres roches de cette formation sont comparables isotopiquement à celles du Haut Himalaya.

Les sédiments, qui sont les produits directs de l'érosion de ces formations, montrent les mêmes signatures isotopiques que les roches. L'étude de roches et de sédiments démontrent que la source d'Os radiogénique issue de l'érosion himalayenne est localisée dans le LH. Dans un premier temps, la contribution unique des schistes noirs du LH a été testée. Les

proportions, calculées, trop élevées de schistes noirs supposent alors soit une érosion à l'état non stationnaire, soit une autre source d'Os radiogénique pour expliquer les rapports $^{187}Os/^{188}Os$ radiogéniques des sédiments échantillonnés à la sortie de la chaîne et de ceux du Gange. Les sédiments du Brahmapoutre, étant moins radiogéniques, sont quant à eux éventuellement expliqués par la présence d'affleurements d'ophiolites dans le bassin source du Brahmapoutre.

Dans un deuxième temps, l'analyse de roches carbonatées de mine et d'affleurements du LH a montré l'importance des marbres impurs (radiogéniques) dans le bilan de l'Os durant l'érosion. En effet, dans les sédiments, l'altération n'étant pas assez poussée pour détruire les reliques de carbonates (des TSS et du LH), la présence de 2 à 4 % de carbonates du LH selon les échantillons peut expliquer la composition isotopique ainsi que la concentration en Os des sédiments, en supposant que l'Os est contenu dans la phase carbonatée de ces marbres impurs. L'intervention conjuguée des carbonates et des schistes noirs du LH explique les données isotopiques des sédiments de rivières himalayennes. La conséquence directe est que l'érosion himalayenne engendre trois sources d'Os : les silicates himalayens, les schistes noirs du LH et les carbonates impurs du LH et qu'elle n'a pas besoin d'être à l'état non stationnaire.

La composition isotopique d'Os radiogénique des marbres impurs du LH est reliée à la remobilisation préférentielle d'^{187}Os et de Re lors d'événements métamorphiques himalayens, de la même manière que le Sr. Cette remobilisation d'Os et de Re est hétérogène et découplée de celle du Sr. Les sources potentielles de Re et d'Os remobilisés sont les schistes noirs du LH, qui représente alors la source ultime de l'Os radiogénique du système.

L'analyse de sols a permis d'établir que les concentrations d'Os et de Re, ainsi que les rapports isotopiques sont stables avec la profondeur. Ils ont les mêmes caractéristiques que les formations himalayennes sur lesquels ils se sont développés. Les sols issus de schistes noirs montrent une réduction importante dans leurs concentrations en Os et en Re, ainsi que de carbone organique par rapport à des schistes noirs du LH classiques. Cela suggère que l'oxydation du carbone organique, et la perte d'Os et surtout de Re se produit par l'intermédiaire de fluides dans les premiers stades de l'érosion/altération, sans doute lors du passage de la roche saine au saprolite. Mais cela n'a pas encore été vérifié. La mobilisation d'Os et de Re dans des fluides peut impliquer la fixation d'Os, et non de Re, sur des phases secondaires. Le Re est plus mobile que l'Os qui peut être refixé dans des phases en traces de type oxydes de fer ou autres pendant l'altération.

Dans le Cône du Bengale

L'étude de sédiments couvrant le Néogène ou les derniers cycles glaciaires a permis d'établir que l'érosion himalayenne est la principale source de sédiments déposés dans le Cône du Bengale. En effet, selon la localisation géographique et les processus de transport des sédiments, leur composition isotopique d'Os et leurs concentrations en Os et Re varient. Le Cône actif est largement dominé par une source purement himalayenne. Suivant l'influence des courants marins et la situation par rapport au chenal actif, des sources secondaires peuvent intervenir, comme par exemple, l'érosion de la chaîne indo-birmane dans le nord-est de la Baie du Bengale, ou l'érosion de complexes granitiques du Sri Lanka dans la partie distale du Cône. La similitude des rapports isotopiques des sédiments du Néogène et des cycles glaciaires du cône actif implique que la source dominante n'a pas changé depuis 16 Ma. Dans certaines zones de la Baie du Bengale où le taux de sédimentation est faible, des variations importantes dans la composition isotopique d'Os peuvent être expliquées par une fraction d'Os hydrogénétique importante dans les sédiments. Une adsorption d'Os marin est donc envisagée. Aucune perte importante d'Os radiogénique pendant le transport de sédiments ou après leur dépôt dans le Cône n'a été mise en évidence. Mais le passage entre le continent et l'océan, l'estuaire, n'a été que peu étudié et de nombreuses questions restent posées.

L'influence du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ des rivières himalayennes sur celui des océans

Il est certain que l'érosion himalayenne est la source dominante des sédiments du Cône du Bengale. L'Os radiogénique est principalement dérivé de deux lithologies du LH : les schistes noirs et les marbres impurs, qui vont contribuer à la fois à la phase dissoute et particulaire.

Un simple bilan isotopique fait sur la phase dissoute à partir des données de la littérature (Levasseur *et al.*, 1998 ; Levasseur *et al.*, 1999b ; Sharma *et al.*, 1999) permet d'estimer l'influence que peut avoir l'érosion himalayenne sur la composition isotopique des océans. Cela suppose que l'Os dissous des rivières rejoint directement l'Os marin dissous.

Le point de départ

A partir du mode de calcul présenté par Singh *et al.* (1999), d'après Richter *et al.* (1992), le rapport $^{187}Os/^{188}Os$ de l'eau de mer a pu être recalculé en ôtant l'influence des eaux du Gange et du Brahmapoutre (équation 1). La variation de la composition isotopique d'Os des océans dépend donc de celle des sources radiogéniques (continentales) et non-radiogéniques (dissolution du matériel cosmique et altération de la croûte continentale) sur une période donnée.

$$^{188}N\frac{dR_{SW}}{dt} + R_{SW}(^{188}J_R + ^{188}J_{NR}) = R_R\,^{188}J_R + R_{NR}\,^{188}J_{NR} \qquad \textit{(équation 1)}$$

Les indices *SW, R et NR* représentent respectivement l'eau de mer, les sources continentales et les sources dites non-radiogéniques. R est le rapport $^{187}Os/^{188}Os$. ^{188}J représente le flux d'Os non radiogénique pour chaque réservoir (en mol/an). ^{188}N correspond à la quantité totale d'^{188}Os des océans actuels calculée à partir de la concentration en Os des océans déterminée par Levasseur *et al.* (1998), soit $^{188}N = 1.04 \times 10^7$ mol.

Le flux d'Os non-radiogénique

La première étape est de déterminer le flux d'Os non-radiogénique que nous estimerons constant dans le temps (Peucker-Ehrenbrink, 1996). Ce flux est calculé à partir des données de rivières mondiales qui représentent le flux radiogénique. La variation de la composition isotopique de l'eau de mer est déterminée à partir de la courbe de Peucker-Ehrenbrink *et al.* (1995). Nous obtenons :

$$\frac{dR_{SW}}{dt} = 0.086 \times 10^{-6}\,Ma^{-1}$$

$R_{SW} = 1.06$ (Levasseur *et al.*, 1998), $R_R = 1.54$ (Levasseur *et al.*, 1999a) et

$$^{188}J_R = 173\,M/an.$$

En utilisant l'équation 1, le flux d'Os des sources non-radiogéniques est

$$\boxed{^{188}J_{NR} = 87.4\,M/an}.$$

L'influence du Gange et du Brahmapoutre

A partir des données obtenues sur les rivières par Levasseur *et al.* (1999a) et Sharma *et al.* (1999), un calcul ne prenant pas en compte l'influence des apports du Gange et du Brahmapoutre peut être effectué. Les flux d'eau du Gange et du Brahmapoutre sont respectivement 459×10^9 m^3/an et $612 \times 10^9 m^3$/an (Galy, 1999).

Nous considérons pour l'Os que le flux des rivières mondiales est la somme de celui du Gange et du Brahmapoutre plus celui des rivières restantes (équation 2), soit :

$$^{188}J_R = {}^{188}J_G + {}^{188}J_B + {}^{188}J_{rest} \qquad \textit{équation 2}$$

avec G pour le Gange, B pour le Brahmapoutre et rest pour les rivières restantes.

Le Tableau 1 présente les données calculées pour le Gange et le Brahmapoutre, ainsi que pour les rivières restantes. Les flux ^{188}J du Gange et du Brahmapoutre ont été calculés à partir de données de la littérature, et celui des rivières restantes a été déterminée en utilisant l'équation 2. Les résultats sont exposés dans le Tableau 1.

Tableau 1 : Données de flux pour le Gange, le Brahmapoutre et les rivières restantes.

	^{187}Os/^{188}Os	^{188}J (M/an)
Gange (G)	2.94	2.7
Brahmapoutre (B)	1.07	3.8
Rivières restantes (rest)	?	166.6

L'inconnue de ce tableau (R_{Rest}) se calcule à partir de l'équation 3 :

$$^{188}J_R R_R = {}^{188}J_G R_G + {}^{188}J_B R_B + {}^{188}J_{rest} R_{rest} \qquad \textit{équation 3}$$

d'où $\boxed{R_{rest} = 1.53}$.

En reprenant l'équation 1, le rapport ^{187}Os/^{188}Os de l'eau de mer actuelle, sans l'intervention du Gange, ni du Brahmapoutre peut être recalculé et est :

$$\boxed{R_{SW} = 1.04}$$

Ainsi, l'influence de l'apport d'Os dissous par le Gange et le Brahmapoutre basée sur la phase dissoute ne représente que 2%. En d'autres termes, l'apport himalayen purement dissous d'Os a contribué à augmenter de 2% le rapport ^{187}Os/^{188}Os de l'eau de mer durant le Cénozoïque. Nos données ont montré que la perte d'Os des sédiments pendant le transport ou après leur dépôt est faible. La contribution totale de l'érosion himalayenne au budget de l'Os

marin n'est donc pas beaucoup plus élevée que celle calculée à partir de la phase dissoute. Une limite maximale de la contribution himalayenne peut être calculée en prenant en compte le flux d'Os délivré par les sédiments du Gange (^{188}J=3.1 M/an) et du Brahmapoutre (^{188}J=4.6 M/an) et en supposant que tout l'Os contenu dans les sédiments est délivré aux océans. Dans ce cas extrême et peu probable, l'Os dissous et particulaire apporté par ces deux rivières baisserait le rapport ^{187}Os/^{188}Os de l'eau de mer à 0.96, soit une différence de 10% avec la valeur actuelle. L'érosion himalayenne n'est donc pas la cause primaire de l'augmentation du rapport isotopique de l'Os marin depuis les 16 derniers Ma.

L'Os : un traceur d'érosion ?

L'influence du Gange et du Brahmapoutre sur la composition isotopique d'Os marin est faible. Elle est du même ordre de grandeur que le flux d'eau du système Gange-Brahmapoutre par rapport aux rivières mondiales, soit environ 2%. Il faut donc rechercher d'autres explications pour l'augmentation importante du rapport ^{187}Os/^{188}Os de l'eau de mer depuis 16 Ma. A l'inverse du Sr océanique qui est fortement dominé par le Sr himalayen dissous, l'Os marin est probablement influencé par un apport global des rivières dont le Gange et le Brahmapoutre ne sont que des composantes presque 'normales'.

La composition isotopique de l'Os marin est donc moins influencé par l'érosion himalayenne que celle de Sr, suggérant alors que le système Re-Os serait un meilleur traceur de l'érosion continentale que le système Rb-Sr. Cependant, le rapport ^{187}Os/^{188}Os continental est contrôlé par les schistes noirs, les carbonates, puis les silicates. Peut-il vraiment être utilisé comme traceur de l'érosion continentale, des silicates ? Peut-être serait-il un traceur puissant de l'érosion de la matière organique.

Les inconnues à déterminer

Les inconnues restent nombreuses à ce jour. Même si nous avons remarqué que les schistes noirs jouent un rôle critique dans le bilan de l'Os des sédiments de rivières himalayens la phase porteuse réelle n'a toujours pas été réellement déterminée. Les schistes noirs suggèrent une relation directe avec la matière organique. Cependant, de l'Os très radiogénique peut être facilement transféré de roches riches en Re et en Os radiogénique (comme les schistes noirs) à des roches plus facilement altérables, comme des carbonates, pendant des événements métamorphiques. Quels mécanismes contrôlent ce transfert : est-ce

l'oxydation de la matière organique, un lessivage préférentiel de l'Os radiogénique par des fluides hydrothermaux ?

Le transfert d'Os des continents à l'océan se fait par l'estuaire. Les données récentes montrent que l'Os dissous subit une perte d'environ 28% à cet endroit (Levasseur, 1999). Mais qu'en est-il de la phase particulaire ? Est-ce que cette phase enregistre l'adsorption de l'Os dissous ? Y-a-t'il des échanges entre la phase particulaire et la phase dissoute dans l'estuaire?

Nos connaissances sur le comportement du système Re-Os lors de l'érosion restent encore limitées. Beaucoup d'inconnues doivent être déterminées pour utiliser le système Re-Os en tant que traceur de l'érosion continentale. Le système Re-Os, n'étant pas adapté à tracer l'érosion des silicates puisqu'il est contrôlé par l'érosion ultime des schistes noirs, pourrait être utilisé comme traceur de lithologies mineures riches en matière organique, et il pourrait contribuer à tracer le cycle du carbone (organique) qui a une influence globale sur le climat.

Références bibliographiques

par ordre alphabétique

-A-

Ahmad T., Harris N., Bickle M., Chapman H., Bunbury J., et Prince C. (2000) Isotopic constraints on the structural relationships between the Lesser Himalaya Series and the High Himalayan Crystalline Series, Garhwal Himalaya. *Geological Society of America Bulletin* **112**, 467-477.

Alibert C., Michard A., et Albarède F. (1983) The transition from alkali basalts to kimberlites : isotope and trace element evidence from melilites. *Contributions to Mineralogy and Petrology* **82**, 176-186.

Allègre C. J. et Luck J.-M. (1980) Osmium isotopes as petrogenetic and geological tracers. *Earth and Planetary Science Letters* **48**, 148-154.

Allègre C. J., Birck J. L., Capmas F., et Courtillot V. (1999) Age of the Deccan traps using ^{187}Re-^{187}Os systematics. *Earth and Planetary Science Letters* **170**, 197-204.

Allison M. A., Kuehl S. A., Martin T. C., et Hassan A. (1998) Importance of flood-palin sedimentation fir river sediment budgets and terrignous input to the oceans : Insights from the Brahamaputra-Jamuna River. *Geology* **26**, 175-178.

Anbar A. D., Creaser R. A., Papanastassiou D. A., et Wasserburg G. J. (1992) Rhenium in seawater : confirmation of generally conservative behavior. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **56**, 4099-4103.

Anders E. et Grevesse N. (1989) Abundances of the elements: Meteoritic and solar. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **53**, 197-214.

-B-

Barnes S.-J., Naldrett A. J., et Gorton M. P. (1985) The origin of the fractionation of platinium-group elements in terrestrial magmas. *Chemical Geology* **53**, 303-323.

Beck R. A. et authors a. o. (1995) Stratigraphic evidence of an early collision between northwest India and Asia. *Nature* **373**, 55-58.

Bilham R., Larson K., Freymueller J., et members P. I. (1997) GPS measurements of present-day convergence across the Nepal Himalaya. *Nature* **386**, 61-64.

Birck J.-L. (1986) Precision K-Rb-Sr isotopic analysis: Application to Rb-Sr chronology. *Chemical Geology* **56**, 73-83.

Birck J.-L. et Allègre C. J. (1994) Contrasting Re/Os magmatic fractionation in planetary basalts. *Earth and Planetary Science Letters* **124**, 139-148.

Birck J.-L. et Allègre C. J. (1998) Rhenium-187-osmium-187 in iron meteorites and the strange origin of the Kodaïkanal meteorite. *Meteoritics & Planetary Science* **33**, 647-653.

Birck J.-L., Roy-Barman M., et Capmas F. (1997) Re-Os isotopic measurements at the femtomole level in natural samples. *Geostandards Newsletter* **20**, 19-27.

Bordet P., Colchen M., Krummenacher D., Le Fort P., Mouterde R., et Remy M. (1971) *Recherches Géologiques dans l'Himalaya du Népal, Région de le Thakkhola.* Centre National de la Recherche Scientifique.

Bouquillon A., France-Lanord C., Michard A., et Tiercelin J.-J. (1990) Sedimentology and isotopic chemistry of the Bengal fan sediments: the denudation of the Himalaya. In *Proc. ODP, Sci. Res.*, Vol. 116 (ed. J. R. Cochran, D. A. V. Stow, and et al.), pp. 43-58.

Brandon A. D., Walker R. J., Morgan J. W., Norman M. D., et Prichard H. M. (1998) Coupled ^{186}Os and ^{187}Os Evidence for Core-Mantle Interaction. *Science* **280**, 1570-1573.

Brouand M. (1989) Pétrogenese des migmatites de la dalle du Tibet (Himalaya du Népal)., Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy.

Brookins D. G. (1986) Rhenium as analog for fissiogenic technetium : Eh-pH diagram (25°C, 1 bar) constraints. *Applied Geochemistry* **1**, 513-517.

Bruland K. W. (1983) Trace elements in seawater. *Chemical oceanography* **8**, 157-220.

Burbank D. W., Derry L. A., et France-Lanord C. (1993) Reduced himalayan sediment production 8 Myr ago despite an intensified monsoon. *Nature* **364**, 48-50.

Burton K. W., Birck J.-L., Allègre C. J., von Blackenburg F., O'Nions R. K., et Hein J. R. (1996) Variations in the osmium isotope ratio of seawater. *Journal of Conference Abstract* **1**, 92 (abstr.).

Burton K. W., Bourdon B., Birck J.-L., Allègre C. J., et Hein J. R. (1999) Osmium isotope variations in the oceans recorded by Fe-Mn crusts. *Earth and Planetary Science Letters* **171**, 185-197.

Burton K. W., Schiano P., Birck J.-L., et Allègre C. J. (1998) The behaviour of Re and Os in mantle minerals with implications for mantle melting. *Eos, Trans. AGU.*

-C-

Carlson R. W. et Irving A. J. (1994) Depletion and enrichment history of subcontinental lithospheric mantle: an Os, Sr, Nd and Pb isotopic study of ultramafic xenoliths from the north-western Wyoming Craton. *Earth and Planetary Science Letters* **126**, 457-472.

Chamberlin T. C. (1899) An attempt to frame a working hypothesis of the cause of glacial periods on an atmospheric basis. *Journal of Geology* **7**, 545-584.

Chesley J. T., Ruiz J., et Quade J. (1998) The $^{187}Os/^{188}Os$ record of Himalayan palaeorivers: Himalayan tectonics and ocean chemistry. *Mineralogical Magazine* **62A**, 323-324.

Colchen M., Le Fort P., et Pêcher A. (1986) *Notice explicative de la carte géologique Annapurna-Manaslu-Ganesh (Himalaya du Népal) au 1:200.000e (bilingue: français-english).* Centre National de la Recherche Scientifique.

Coleman J. M. (1969) Brahmaputra river: channel processes and sedimentation. *Sedimentary Geology* **3**, 129-239.

Colin C. (1997) Reconstitution du régime de l'érosion des chaînes himalayenneet birmanes au cours des deux derniers cycles climatiques (300 ka). Etudes minéralogiques, magnétiques et géochimiques des sédiments de la Mer d'Andaman et du Golfe du Bengale. Ph. D thesis, Paris XI.

Colin C., Kissel C., Blamart D., et Turpin L. (1998) Magnetic properties of sediments in the Bay of Bengal and the Andaman sea: impact of rapid North Atlantic Ocean climatic events on the strength of the Indian monsoon. *Earth and Planetary Science Letters* **160**, 623-635.

Colin C., Turpin L., Bertaux J., Desprairies A., et Kissel C. (1999) Erosional history of the Himalayan and Burman ranges during the last two glacial-interglacial cycles. *Earth and Planetary Science Letters* **171**, 647-660.

Colodner D., Sachs J., Ravizza G., Turekian K., Edmond J., et Boyle E. (1993) The geochemical cycle of rhenium : a reconnaissance. *Earth and Planetary Science Letters* **117**, 205-221.

Craig H. (1957) Isotopic standards for carbon and oxygen and correction factors for mass spectrometric analyses of carbon dioxide. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **12**, 133-149.

Creaser R. A., Papanastassiou D. A., et Wasserburg G. J. (1991) Negative thermal ion mass spectrometry of osmium, rhenium, and iridium. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **55**, 397-401.

Crusius J., Calvert S., Pederson T., et Sage D. (1996) Rhenium and molybdenum enrichments in sediments as indicators of oxic, suboxic and sulfidic conditions of deposition. *Earth and Planetary Science Letters* **145**, 65-78.

Curray J. R. (1994) Sediment volume and mass beneath the Bay of Bengal. *Earth and Planetary Science Letters* **125**, 371-383.

Curray J. R. et Moore D. G. (1971) Growth of the Bengal Deep-Sea Fan and denudation in the Himalayas. *Geological Society of America Bulletin* **82**, 563-572.

-D-

Debon F., Le Fort P., Sheppard S. M. F., et Sonet J. (1986) The four plutonic belts of the Transhimalaya-Himalaya : a chemical, mineralogical, isotopic and chronological synthesis along a Tibet-Nepal section. *Journal of Petrology* **27**, 219-250.

Delcaillau B. (1992) *Les Siwalik de l'Himalaya du Népal Oriental. Fonctionnement et évolution d'un piémont.* Editions du CNRS.

Deniel C. (1985) Apport des isotopes du Sr, Nd et Pb à la connaissance de l'âge et de l'origine des leucogranites himalayens. Exemple du Manaslu (Himalaya- Népal). Thèse : Etude approfondie de Pétrologie-Minéralogie, Univ. de Clermont-Ferrand II (France).

Derry L. A. et France-Lanord C. (1996a) Neogene growth of the sedimentary organic carbon reservoir. *Paleoceanography* **11**, 267-275.

Derry L. A. et France-Lanord C. (1996) Neogene himalayan weathering history and river $^{87}Sr/^{86}Sr$: Impact on the marine Sr record. *Earth and Planetary Science Letters* **142**, 59-74.

Derry L. A. et France-Lanord C. (1997) Himalayan weathering and erosion fluxes : Climate and tectonic controls. In *Tectonic uplift and climate change* (ed. W. F. Ruddiman), pp. 289-312. Pleum Press.

Duplessy J. C. (1982) Glacial to interglacial contrasts in the northern Indian Ocean. *Nature* **295**, 494-498.

Dunlap C. E. et Flegal R. (1997) Developing Osmium Isotopes as a Hydrological Tool in the San Francisco Bay Estuary.

-E-

Edmond J. M. (1992) Himalayan tectonics, weathering processes, and the strontium isotope record in marine limestones. *Science* **258**, 1594-1597.

Esparança S., Carlson R. W., Shirey S. B., et Smith D. (1997) Dating crust-mantle separation: Re-Os isotopic study of mafic xenoliths from central Arizona. *Geology* **25**, 651-654.

Esser B. K. (1991) Osmium isotope geochemistry of terrigenous and marine sediments. Ph. D Thesis, Yale.

Esser B. K. et Turekian K. K. (1988) Accretion rate of extraterrestrial particles determined from osmium isotope systematics of Pacific pelagic clay and manganese nodules. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **52**, 1383-1388.

Esser B. K. et Turekian K. K. (1993) The osmium isotopic composition of the continental crust. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **57**, 3093-3104.

-F-

Faure G. (1986) *Principles of isotope geology.*

Fort M., Freytet P., et Colchen M. (1982) Structural and sedimentological evolution of the Thakkhola Mustang Graben (Nepal Himalaya) during the Late Neogene and Pleistocene. *Field Conference on Neogene/Quaternary Boundary*, 75-98.

France-Lanord C. et Derry L. A. (1994) δ13C of organic carbon in the Bengal Fan : source evolution and transport of C3 and C4 plant carbon to marine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **58**, 4809-4814.

France-Lanord C. et Derry L. A. (1997) Organic carbon burial forcing of the carbon cycle from Himalayan erosion. *Nature* **390**, 65-67.

France-Lanord C., Derry L. A., et Michard A. (1993) Evolution of the Himalaya since Miocene time : isotopic and sedimentological evidence from the Bengal Fan. In

Himalayan Tectonics, Vol. 74 (ed. P. J. Treloar and M. P. Searle), pp. 603-621. Geological Society Special Publication.

France-Lanord C. et Le Fort P. (1988) Crustal melting and granite genesis during the Himalayan collision orogenesis. *Transactions of the Royal Society of Edinburgh-Earth Sciences* **79**, 183-195.

-G-

Galy A. (1999) Etude géochimique de l'érosion actuelle de la chaîne himalayenne. Doctorat de l'INPL, Institut National Polytechnique de Lorraine.

Galy A. et France-Lanord C. (1999) Weathering processes in the Ganges-Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget. *Chemical Geology* **159**, 31-60.

Galy A., France-Lanord C., et Derry L. A. (1995) The Late Oligocene-Early Miocene Himalayan belt. Constraints deduced from isotopic compositions of early miocene turbidites in Bengal Fan. *Tectonophysics* **260**, 109-118.

Galy A., France-Lanord C., et Derry L. A. (1999) The strontium isotopic budget of Himalayan Rivers in Nepal and Bangladesh. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63**, 1905-1925.

Galy A., France-Lanord C., et Derry L. A. (1995) The Late Oligocene-Early Miocene Himalayan belt. Constraints deduced from isotopic compositions of early miocene turbidites in Bengal Fan. *Tectonophysics* **260**, 109-118.

Galy A., France-Lanord C., et Derry L. A. (1996) Oligo-Miocene uplift and unroofing of the Himalaya: evidence from the Bengal Fan. *Tectonophysics* **260**, 109-118.

Gansser A. (1966) The Indian Ocean and the Himalayas A geological interpretation. *Eclogae geologicae Helvetiae* **59**, 831-848.

Gansser A. (1964) *Geology of the Himalayas.* Intersciences Publishers, L.U.

Goldstein S. L., O'Nions R. K., et Hamilton P. J. (1984) A Sm-Nd isotopic study of atmospheric dusts and particulates from major river systems. *Earth and Planetary Science Letters* **70**, 221-236.

Goldstein S. J. et Jacobsen S. B. (1988) Nd and Sr isotopic systematic of river water suspended material: implications for crustal evolution. *Earth and Planetary Science Letters* **87**, 215-221.

Goodbred Jr S. L. et Kuehl S. A. (1999) Holocene and modern sediment budgets for the Ganges-Brahmaputra river system: Evidence for highstand dispersal to flood-palin, shemf, and deep-sea depocenters. *Geology* **27**, 559-562.

Goswami D. C. (1985) Brahmaputra river, Assam India: physiography, basin denudation and channel aggradation. *Water Resources Research* **21**, 959-978.

Gramlich J. W., Murphy T. J., Garner E. L., et Shileds W. R. (1973) Absolute isotopic abundance ratio and atomic weight of a reference sample of rhenium. *Journal of Research National Bureau of Standards* **77 A**, 691-698.

-H-

Harris N., Bickle M., Chapman H., Faichild I., et Bunbury J. (1998) The significance of Himalayan rivers for silicate weathering rates : evidence from the Bhote Kosi tributary. *Chemical Geology* **144**, 205-220.

Harrison T. M., Copeland P., Kidd W. S. F., et Yin A. (1992) Raising Tibet. *Science* **255**, 1663-1670.

Hart S. R. et Kinloch E. D. (1989) Osmium isotope systematics in Witwatersrand and Bushweld ore deposits. *Economic Geology* **84**, 1651-1655.

Hart S. R. et Ravizza G. E. (1996) Os partioning between phases in lherzolite and basalt. In *Earth Processes: reading the isotopic code*, Vol. 95 (ed. A. Basu, S. R. Hart, and G. Monogr.), pp. 123-134. Am. Geophys. Union.

Hauri E. H. et Hart S. R. (1993) Re-Os isotope systematics of HIMU and EMII oceanic island basalts from the south Pacific Ocean. *Earth and Planetary Science Letters* **114**, 353-371.

Hauri E. H., Lassiter J. C., et DePaolo D. J. (1996) Osmium isotope systematcis of drilled lavas from Mauna Loa, Hawaii. *Journal of Geophysical Research* **101**, 11795-11806.

Hodell D. A., Mead G. A., et Mueller P. A. (1990) Variation in the strontium isotopic composition of seawater (8 Ma to present): Implications for chemical weathering rates and dissolved fluxes to the oceans. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)* **80**, 291-307.

Höhndorf A., Kudrass H. R., et France-Lanord C. (in press) Transfer of the Sr isotopic signature of the Himalayas to the Bay of Bengal. .

Holland H. D. (1978) *The Chemistry of the Atmosphere and Oceans*. Wiley & Sons.

Horan M. F., Morgan J. W., Walker R. J., et Grossman J. N. (1992) Rhenium-osmium isotope constraints on the age of iron meteorites. *Science* **255**, 1118-1121.

Hurtrez J.-E. (1998) Analyse géomorphologique des interactions Tectonique-Erosion dans le système Himalayen. Thèse de l'Université de Montpellier II.

-I-

ISPAN. (1995) A study of sedimentation in the Brahmaputra-Jamuna floodplain. Irrigation Support Project for Asia and the Near East, Arlington VI, USA.

-K-

Kuehl S. A., Hariu T. M., et Moore W. S. (1989) Shelf sedimentation off the Ganges-Brahmaputra river system: Evidence for sediment bypassing to the Bengal Fan. *Geology* **17**, 132-1135.

Koide M., Goldberg E. D., Niemeyer S., Gerlach D., Hodge V., Bertine K. K., et Padova A. (1991) Osmium in marine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **55**, 1641-1648.

Koide M., Hodge V., Yang J. S., et Goldberg E. D. (1987) Determination of rhenium in marine waters and sediments by graphite furnace atomic absorption spectrometry. *Analytical Chemistry* **59**, 1802-1805.

Koide M., Hodge V. F., Yang J. S., stallard M., Goldberg E. G., Calhoun J., et Bertine K. K. (1986) Some comparatives marine chemistries of rhenium, gold, silver and molybdenum. *Applied Geochemistry* **1**, 705-714.

Krishnaswami S., Trivedi J. R., Sarin M. M., Ramesh R., et Sharma K. K. (1992) Strontium isotopes and rubidium in the Ganga-Brahmaputra river system : Weathering in the Himalaya, fluxes to the Bay of Bengal and contributions to the evolution of oceanic $^{87}Sr/^{86}Sr$. *Earth and Planetary Science Letters* **109**, 243-253.

Kudrass H. R. (1996) Final report, Bengal Fan, Sonne Cruise SO 93, pp. 170. BMBF, Bonn.

Kudrass H. R., Michels K. H., Wiedicke M., et Suckow A. (1998) Cyclones and tides as feeders of a submarine canyon off Bangladesh. *Geology* **26**, 715-718.

Kyte F. T., Leinen M., Heath G. R., et Zhou L. (1993) Cenozoic sedimentation history of the central North Pacific: Inferences from the elemental geochemistry of core LL44-GPC3. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **57**, 1719-1740.

-L-

Lavé J. et Avouac J. P. (2000) Active folding of fluvial terraces across the Siwaliks Hills, Himalayas of central Nepal. *Journal of Geophysical Research* **105**, 5735-5770.

Le Fort P. (1975) Himalayas : the collided range. Present knowledge of the continental arc. *American Journal of Science* **275**, 1-44.

Le Fort P. (1981) Manaslu leucogranite : a collision signature of the Himalaya. A model for its genesis and emplacement. *Journal of Geophysical Research* **86**, 10545-10568.

Le Fort P. (1986) Metamorphism and magmatism during the Himalayan collision. In *Collision Tectonics*, Vol. 19 (ed. M. P. Coward and A. C. Ries), pp. 159-172. Geological Society Special Publication.

Le Fort P. (1989) The Himalayan orogenic segment. In *Tectonic Evolution of the Tethyan Region* (ed. A. M. C. Sengör), pp. 289-386. Kluwer Academic Plublishers.

Le Fort P., Cuney M., Deniel C., France-Lanord C., Sheppard S. M. F., Upreti B. N., et Vidal P. (1987) Crustal generation of the Himalayan leucogranites. *Tectonophysics* **134**, 39-57.

Levasseur S. (1999) Contribution à l'étude du cycle externe de l'osmium. Thèse d'Université, Paris VII Denis Diderot.

Levasseur S., Birck J.-L., et Allègre C. J. (1998a) Direct Measurement of Femtomoles of Osmium and the $^{187}Os/^{186}Os$ Ratio in Seawater. *Science* **282**, 272-274.

Levasseur S., Birck J.-L., et Allègre C. J. (1998b) Osmium concentration and composition in the Indian Ocean. *Mineralogical Magazine* **62A**, 883-884.

Levasseur S., Birck J.-L., et Allègre C. J. (1999) Osmium isotopic composition of corals: Evidences for multiple sources. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63**, 1335-1343.

Levasseur S., Birck J.-L., et Allègre C. J. (1999) The osmium riverine flux and the oceanic mass balance of osmium. *Earth and Planetary Science Letters* **174**, 7-23.

Lindler M., Leich D. A., Russ G. P., Bazan J. M., et Borg R. J. (1989) Direct determination of the half-life of ^{187}Re. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **53**, 1597-1606.

Luck J.-M. (1982) Géochimie du Rhénium-Osmium : Méthode et Applications. Es-Sciences, Paris VII.

Luck J.-M. et Allègre C. J. (1983) ^{187}Re-^{187}Os systematics in meteorites and cosmochemical consequences. *Nature* **302**, 130-132.

Luck J.-M., Birck J.-L., et Allègre C. J. (1980) ^{187}Re-^{187}Os systematics in meteorites: Early chronology of the solar system and age of the galaxy. *Nature* **283**, 256-259.

Luck J.-M. et Turekian K. K. (1983) Osmium-187/Osmium-186 in mangenese nodules and the Cretaceous-Tertiary boundary. *Science* **222**, 613-615.

-M-

MacFarlane R. D. et Kohman T. P. (1961) Natural α radioactivity in medium-heavy elements. *Physical Review* **121**, 1758-1769.

Martin C. E. (1991) Osmium isotopic characteristics of mantle-derived rocks. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **55**, 1421-1434.

Martin C. E., Carlson R. W., shirey S. B., Frey F. A., et Chen C.-Y. (1994) Os isotpic variation in basalts from Haleakala Volcano, Maui, Hawaï : A record of magmatic processes in oceanic mantle and crust. *Earth and Planetary Science Letters* **128**, 287-301.

McCandless T. E., Ruiz J., et Campbell A. R. (1993) Rhenium behavior in molybdenite in hypogene and near surface envoironnements : implications for Re-Os geochronometry. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **57**, 889-905.

McCauley S. E. et De Paolo D. J. (1997) The marine $^{87}Sr/^{86}Sr$ and $\partial^{18}O$ records, Himalayan alkalinity fluxes, and Cenozoic climate models. In *Uplift and Climate Change* (ed. W. F. Ruddiman), pp. 289-312. Plenum Press.

Michels K. H., Kudrass H. R., Hübscjer C., Suckow A., et Wiedicke M. (1998) The submarine delta of the Ganges-Brahamputra: cyclone-dominated sedimentation patterns. *Marine Geology* **149**, 133-154.

Milisenda C. C., Liew T. C., Hofmann A. W., et Köhler H. (1994) Nd isotopic mapping of the Sri Lanka basement: update, and additional constraints from Sr isotopes. *Precambrian Research* **66**, 95-110.

Milliman J. D. et Meade R. H. (1983) World-wide delivery of river sediment to the oceans. *Journal of Geology* **91**, 1-21.

Milliman J. D. et Syvitski J. P. M. (1992) Geomorphic/Tectonic control of sediment discharge to the ocean : the importance of small mountainous rivers. *Journal of Geology* **100**, 525-544.

Morgan J. W. (1985) Osmium isotope constraints on Earth's late accretionary history. *Nature* **317**, 703-705.

Morgan J. W. (1986) Ultramafic xenoliths: clues to Earth's late accretionary history. *Journal of Geophysical Research* **91**, 12375-12387.

Morgan J. W. (1997a) Osmium. In *Encyclopedia of Geochemistry* (ed. R. Fairbridge). Chapman-Hall.

Morgan J. W. (1997b) Rhenium. In *Encyclopedia of Geochemistry* (ed. R. Fairbridge). Chapman-Hall.

Morgan J. W. et Lovering J. F. (1967) Rhenium and osmium abundances in some igneous and metamorphic rocks. *Earth and Planetary Science Letters* **3**, 219-224.

Morgan J. W., Walker R. J., Smoliar M. I., Beary E., et Baedecker P. (1996) Development of the 190Pt/186Os isotope system. *AGU Fall Meeting*, 785.

-N-

Naldrett S. N. et Libby W. F. (1948) *Physical Review* **73**, 487.

Nier A. O. (1950) A redetermination of the relative abundances of the isotopes of carbon, nitrogen, oxygen, argon and potassium. *Physical Review* **77**(789-793).

-O-

O'Nions R. K., Hamilton P. J., et Evensen N. M. (1977) Variation in 143Nd/144Nd and $^{87}Sr/^{86}Sr$ ratios in oceanic basalts. *Earth and Planetary Science Letters* **34**, 13-22.

Oxburgh R. (1998) Variations in the osmium isotope composition of sea water over the past 200000 years. *Earth and Planetary Science Letters* **159**, 183-191.

Ormond A., Boulègue J., et Genthon P. (1995) A thermoconvective interpretation of heat flow data in the area of Ocean Drilling Program Leg 116 in a distal part of the Bengal Fan. *Journal of Geophysical Research* **100**, 8083-8095.

-P-

Palmer M. R. et Edmond J. M. (1989) The strontium isotope budget of the modern ocean. *Earth Planet. Sci. Lett.* **92**, 11-26.

Palmer M. R. et Edmond J. M. (1992) Controls over the strontium isotope composition of river water. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **56**, 2099-2111.

Palmer M. R. et Elderfield H. (1985) Sr isotope composition of sea water over the past 75 Myr. *Nature* **314**, 526-528.

Palmer M. R., Falkner K. K., Turekian K. K., et Calvert S. E. (1988) Sources of osmium isotopes in manganese nodules. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **52**, 1197-1202.

Palmer M. R. et Turekian K. K. (1986) $^{187}Os/^{186}Os$ in marine manganese nodules and the constraints on the crustal geochemistries of rhenium and osmium. *Nature* **319**, 216-220.

Pandey M. R., Tandukar R. P., Avouac J. P., Lavé J., et Massot J. P. (1995) Interseismic strain accumulation on the himalayan crustal ramp (Nepal). *Geophysical Research Letters* **22**(7), 751-754.

Parkinson I. J., Hawkesworth C. J., et Cohen A. S. (1998) Ancient Mantle in a Modern Arc: Osmium Isotopes in Izu-Bonin-Mariana Forearc Peridotites. *Science* **281**, 2011-2013.

Parrish R. R. et Hodges K. V. (1996) Isotopic constraints on the age and provenances of the Lesser and the Greater Himalayan sequences, Nepalese Himalaya. *Geological Society of America Bulletin* **108**, 904-911.

Pêcher A. (1978) Déformation et métamorphisme associés à une zone de cisaillement. Exemple du grand chevauchement central himalayen (M.C.T.), transversale des Annapurnas et du Manaslu, Népal., Grenoble.

Pêcher A., Bouchez J.-L., et Le Fort P. (1991) Miocene dextral shearing between Himalaya and Tibet. *Geology* **19**, 683-685.

Pegram W. J., Esser B. K., Krishnaswami S., et Turekian K. K. (1994) The isotopic composition of leachable osmium from river sediments. *Earth and Planetary Science Letters* **128**, 591-599.

Pegram W. J., Krishnaswami S., Ravizza G. E., et Turekian K. K. (1992) The record of sea water $^{187}Os/^{186}Os$ variation through the Cenozoic. *Earth and Planetary Science Letters* **113**, 569-576.

Peucker-Ehrenbrink B. (1996) Accretion of extra-terrestrial matter during the last 80 million years and its effects on the marine osmium isotope record. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **60**, 3187-3196.

Peucker-Ehrenbrink B. et Ravizza G. (1996) Continental runoff of osmium into the Baltic Sea. *Geology* **24**, 327-330.

Peucker-Ehrenbrink B., Ravizza G., et Hofmann A. W. (1995) The marine $^{187}Os/^{186}Os$ record of the past 80 million years. *Earth and Planetary Science Letters* **130**, 155-167.

Peucker-Ehrenbrink B. et Blum J. D. (1998) Re-Os isotope systematics and weathering of Precambrian crustal rocks : Implications for the marine osmium isotope record. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **62**, 3193-3203.

Pierson-Wickmann A.-C., Reisberg L., et France-Lanord C. (1999) The osmium budget of himalayan river sediments and soils: Importance of black shale erosion. *9th V. M. Goldschmidt Conference.*

Pierson-Wickmann A.-C., Reisberg L., France-Lanord C., et Galy A. (1998) Re-Os isotopc charactersitics of Himalayan river sediments and source rocks. *Mineralogical Magazine* **62A**, 1178-1179.

Pierson-Wickmann A.-C., Reisberg L., et France-Lanord C. (2000) The Os isotopic composition of Himalayan river bedloads and bedrocks: Importance of black shales. *Earth and Planetary Science Letters* **176**, 201-216.

Porcelli D., Sharma M., et Wasserburg G. J. (1998) The Behaviour of Os in the Columbia River estuary. *Mineralogical Magazine* **62A**, 1202-1203.

-Q-

Quade J., Roe L., DeCelles P. G., et Ohja T. P. (1997) The Late Neogene $^{87}Sr/^{86}Sr$ Record of Lowland Himalayan Rivers. *Science* **276**, 1828-1831.

-R-

Rao K. L. (1979) *India's water wealth.* Orient Longman limited.

Ravizza G. E. (1991) Rhenium-osmium geochemistry of modern and ancient organic-rich sediments. Ph. D Thesis, Yale.

Ravizza G. (1993) Variations of the $^{187}Os/^{186}Os$ ratio of seawater over the past 28 million years inferred from metalliferous carbonates. *Earth and Planetary Science Letters* **118**, 335-348.

Ravizza G. et Esser B. K. (1993) A possible link between the seawater osmium isotope record and weathering of ancient sedimentary organic matter. *Chemical Geology* **107**, 255-258.

Ravizza G., Martin C. E., Geramn C. R., et Thompson G. (1996) Os isotopes as tracers in seafloor hydrothermal systems : metalliferous deposits from the TAG hydrothermal area 26°N Mid-Atlantic Ridge. *Earth and Planetary Science Letters* **138**, 105-119.

Ravizza G. et McMurtry G. M. (1993) Osmium isotopic variations in metalliferous sediments from the East Pacific Rise and the Bauer Basin. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **57**, 4301-4310.

Ravizza G. et Turekian K. K. (1989) Application of the ^{187}Re-^{187}Os system to black shale geochemistry. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **53**, 3257-3262.

Ravizza G. et Turekian K. K. (1990) The osmium isotopic composition of modern organic-rich sediments. *AGU*, 1421.

Ravizza G. et Turekian K. K. (1992) The osmium isotopic composition of organic-rich marine sediments. *Earth and Planetary Science Letters* **110**, 1-6.

Ravizza G., Turekian K. K., et Hay B. J. (1991) The geochemistry of rhenium and osmium in recent sediments from the Black Sea. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **55**, 3741-3752.

Ravizza G. E. et Bothner M. H. (1996) Osmium isotopes and silver as tracers of anthropogenic metals in sediments from Massachussetts and Cape Cod bays. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **60**, 2753-2763.

Raymo M. E. (1991) Geochemical evidence supporting T. C. Chamberlin's theory of glaciation. *Geology* **19**, 344-347.

Raymo M. E. et Ruddiman W. F. (1992) Tectonic forcing of late Cenozoic climate. *Nature* **359**, 117-122.

Reisberg L., France-Lanord C., et Pierson-Wickmann A.-C. (1997) Os isotopic compositions of leachates and bulk sediments from the Bengal Fan. *Earth and Planetary Science Letters* **150**, 117-127.

Reisberg L., Zindler A., Marcantonio F., White W., Wyman D., et Weaver B. (1993) Os isotope systematics in ocean island basalts. *Earth and Planetary Science Letters* **120**, 149-167.

Reusch D. N., Ravizza G., Maasch K. A., et Wright J. D. (1998) Miocene seawater $^{187}Os/^{188}Os$ ratios inferred from metalliferous carbonates. *Earth and Planetary Science Letters* **160**, 163-178.

Richter F. M., Rowley D. B., et DePaolo J. (1992) Sr isotope evolution of seawater : the role of tectonics. *Earth and Planetary Science Letters* **109**, 11-23.

Richter F. M. et Turekian K. K. (1993) Simple models for the geochemical response of the ocean to climatic and tectonic forcing. *Earth and Planetary Science Letters* **119**, 121-131.

Righter K. et Hauri E. H. (1998) Compatibility of rhenium in garnet during mantle melting and magma genesis. *Science* **280**, 1737-1741.

Rose E. F., Chaussidon M., et France-Lanord C. (2000) Fractionation of boron isotopes during erosion processes: the example of Himalayan rivers. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **64**, 397-408.

Roy Barman M. (1993) Mesure du rapport $^{187}Os/^{186}Os$ dans les basaltes et les péridotites : Contribution à la systématique ^{187}Re-^{187}Os dans le manteau. Ph. D Thesis, Paris VII.

Roy-Barman M., Wasserburg G. J., Papanatassiou D. A., et Chaussidon M. (1998) Osmium isotopic compositions and Re-Os concentrations in sulfide globules from basaltic glasses. *Earth and Planetary Science Letters* **154**, 331-347.

Russell W. A., Papanastassiou D. A., et Tombrello T. A. (1978) Ca isotope fractionation on the Earth and other solar system materials. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **42**, 1075-1090.

RSP. (1996) Spatial representation and analysis of hydraulic and morphological data. Water Resources Planning Organization (WARPO).

-S-

Saal A. E., Rudnick R. L., Ravizza G. E., et Hart S. R. (1998) Re-Os isotope evidence for the composition, formation and age of the lower continental crust. *Nature* **393**, 58-61.

Sharma M., Papanastassiou D. A., et Wasserburg G. J. (1997) The concentration and isotopic composition of osmium in the oceans. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **61**, 3287-3299.

Sharma M., Wasserburg G. J., Hofmann A. W., et Chakrapani G. J. (1999) Himalayan uplift and osmium isotopes in oceans and rivers. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63**, 4005-4012.

Shen J. J. et Papanastassiou G. J. (1996) Precise Re-Os determination and systematics of iron meteorites. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **60**, 2887-2900.

Shirey S. B. et Walker R. J. (1995) Carius tube digestion for low-blank rhenium-osmium analysis. *Analytical Chemistry* **67**, 2136-2141.

Singh S., Trivedi J. R., Pande K., Ramesh R., et Krishnaswami S. (1998) Chemical and strontium, oxygen, and carbon isotopic compositions of carbonates from the Lesser Himalaya : Implications to the source waters of the Ganga, Ghaghara, and the Indus rivers. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **62**, 743-755.

Singh S. K., Trivedi J. R., et Krishnaswami S. (1999) Re-Os isotope systematics in black shales from the Lesser Himalaya : their chronology and role in the $^{187}Os/^{188}Os$ evolution of seawater. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63**, 2381-2392.

Smith I. C., Carson B. L., et Ferguson T. L. (1974) Osmium : an appraisal of environmental exposure. *Environmental Health Perspectives* **8**, 201-213.

Smoliar M. J., Walker R. J., et Morgan J. W. (1996) Re-Os ages of Group IIA, IIIA, IVA and IVB iron meteorites. *Science* **271**, 1099-1102.

Snow J. E. et Reisberg L. (1995), Os isotopic systemtics of the MORB mantle : results from altered abyssal peridotites, *Earth and Planetary Science Letters* **133**, 411-421.

-T-

Taylor S. R. et McLennan S. M. (1985) *The continental crust : its composition and evolution.* Blackwell Scientific Publications.

Turekian K. K. et Luck J. M. (1984) Estimation of the continental $^{187}Os/^{186}Os$ values using $^{187}Os/^{186}Os$ and $^{143}Nd/^{144}Nd$ ratios in marine manganese nodules. *Procedure of National Academy of Science, USA* **81**, 8032-8034.

Turekian K. K. et Pegram W. J. (1997) Os isotope record in a Cenozoic deep-sea core : its relation to global tectonics and climate. In *Teconic uplift and climate change* (ed. W. F. Ruddiman), pp. 383-397. Plenum Press.

-U-

Upreti B. N. et LeFort P. (in press) Lesser Himalayan Crystalline nappes of Nepal : problems of their origin. In *Himalaya and Tibet : mountain roots to mountain tops*, Vol. 328 (ed. A. MacFarlane, R. B. Sorkhabi, and J. Quade), pp. GSA special paper.

-V-

Veizer J. (1989) Strontium isotopes in seawater through time. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences* **17**, 141-167.

Vidal P., Cocherie A., et Le Fort P. (1982) Geochemical investigations of the origin of the Manaslu leucogranite (Himalaya, Nepal). *Geochimica et Cosmochimica Acta* **46**, 2279-2292.

Völkening J., Walczyk T., et Heumann K. G. (1991) Osmium isotope ratio determinations by negative thermal ionisation mass spectrometry. *Mass Spectrometry and Ion Processes* **105**, 147-159.

-W-

Walker R. J. et Fassett J. D. (1986) Isotopic measurement of subnanogram quantities of rhenium and osmium by resonance ionization mass spectrometry. *Analytical Chemistry* **58**, 2923-2927.

Walker R. J., Carlson R. W., Shirey S. B., et Boyd F. R. (1989) Os, Sr, Nd and Pb isotope of southern African peridotite xenoliths : Implictions for the chemical evolution of subcontinental mantle. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **53**, 1583-1595.

Walker R. J., Hemming S. R., Becker H., et Hodgson M. (1999) Osmium-186-Osmium-187 isotopic systematics of manganese nodules and marine sediments. *Ninth Annual V.M. Goldschmidt Conference*, 315-31.

Walker R. J., Morgan J. W., Beary E. S., Smoliar M. I., Czamanske G. K., et Horan M. F. (1997) Applications of the 190Pt-186Os isotope system to geochemistry and cosmochemistry. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **61**, 4799-4807.

Walker R. J., Morgan J. W., Naldrett A. J., Li C., et Fassett J. D. (1991) Re-Os isotope systematics of Ni-Cu sulfide ores, Sudbury Igneous Complex, Ontario : evidence for a major crustal component. *Earth and Planetary Science Letters* **105**, 416-429.

Wasserburg G. J., Jacobsen S. B., DePaolo D. J., McCulloch M. T., et Wen T. (1981) Precise determination of Sm/Nd ratios, Sm and Nd isotopic abundances in standard solutions. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **45**, 2311-2324.

Weber M. E., Wiedicke M. H., Kudrass H. R., Hübscher C., et Erlenkeuser H. (1997) Active growth of the Bengal Fan during sea-level rise and highstand. *Geology* **25**, 315-318.

Annexe 1

Article de Reisberg et al. (1997)

ELSEVIER

Earth and Planetary Science Letters 150 (1997) 117–127

EPSL

Os isotopic compositions of leachates and bulk sediments from the Bengal Fan

Laurie Reisberg *, Christian France-Lanord [1], Anne-Catherine Pierson-Wickmann [2]

Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques, CNRS, 54501 Vandoeuvre-les-Nancy, France

Received 12 December 1996; revised 22 April 1997; accepted 24 April 1997

Abstract

Os isotopic compositions and Os and Re concentrations were measured in H_2O_2–H_2SO_4 leachates and bulk sediment samples from Holes 717C and 718C of ODP Leg 116 in the Bengal Fan. Os isotopic results indicate that, at the sediment surface, the leachable Os fraction is derived from seawater. In contrast, leachable Os from Ganges River sediments has $^{187}Os/^{188}Os$ ratios [1] much higher than the marine value. This difference suggests that the leachable radiogenic Os carried by the river sediments is completely released to the oceans prior to sediment deposition in the Fan. A simple calculation, assuming these sediments to be typical of those delivered by the Ganges–Brahmaputra river system, suggests that this process can account for a substantial part of the rise in the seawater Os isotopic ratio observed over the past 16 m.y.

Bengal Fan leachate $^{187}Os/^{188}Os$ ratios increase with increasing depositional age, in contrast to the seawater Os isotopic ratio, which decreases with increasing age. Several lines of evidence suggest that, at the time of sediment burial, the leachate Os compositions most likely reflected the seawater values. Thus, the current divergence is probably the result of post-depositional processes. One such process, in situ radiogenic ingrowth of ^{187}Os, can be excluded because the measured Re concentrations of these sediments are too low. Similarly, since most of the bulk rock Os isotopic ratios were lower than those of the associated leachates, the high leachate $^{187}Os/^{188}Os$ values cannot be explained by in situ sediment alteration. Instead, it is proposed that the increase with age results from radiogenic Os brought in by thermoconvective circulation from further upslope in the Fan. The ultimate source of this ^{187}Os would then be alteration of radiogenic sediments or post-depositional radioactive decay of Re in sediments rich in organic carbon.

Finally, the divergence between the results obtained on Bengal Fan sediments and those obtained in the open ocean [2] by the same leaching technique suggest that Os sediment leachate data must be interpreted with caution. © 1997 Elsevier Science B.V.

Keywords: osmium; isotope ratios; erosion; sea water; Himalayas; Leg 116

1. Introduction

In 1992, Pegram et al. [2] demonstrated that the Os isotopic ratio of seawater has increased dramatically since the beginning of the Cenozoic Era. Their study was based on analysis of the leachable fraction

* Corresponding author. Fax: +33 03 83 51 17 98. E-mail: reisberg@crpg.cnrs-nancy.fr

[1] E-mail: cfl@crpg.cnrs-nancy.fr

[2] E-mail: annecath@crpg.cnrs-nancy.fr

0012-821X/97/$17.00 © 1997 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

PII S0012-821X(97)00080-0

of samples from a pelagic red clay core from the North Pacific. The Os isotopic composition of this fraction was believed to represent that of seawater existing at the time of sediment deposition. The marine Os curve thus obtained has since been largely confirmed and refined by subsequent studies of metalliferous sediments from elsewhere in the Pacific Ocean [3,4]. Thus a fairly well constrained record now exists of seawater Os isotopic variations during the past 80 million years.

The marine Os isotopic record can be influenced by a variety of factors. Increased influx of meteoritic detritus, or increased weathering of oceanic crust, will tend to decrease the $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of seawater. In contrast, higher rates of tectonism, resulting in higher rates of continental erosion, will increase this ratio. This will be especially true if the eroded rocks are organic-rich sediments, which are very rich in Re, thereby providing a possible link between the Os isotopic composition of seawater and the global carbon cycle [5]. Better knowledge of the causes of the variations in the marine Os isotopic record may therefore improve our understanding of a wide range of processes. It now seems fairly clear that at least the earliest part of the Cenozoic increase in Os isotopic ratio can be explained by recovery from a meteorite impact occurring at the Cretaceous–Tertiary boundary [3]. The more recent increase, and in particular the especially rapid rise in $^{187}Os/^{188}Os$ over the past 15 million years, has been attributed to the increase in continental erosion provoked by the Himalayan collision [2,3], in analogy with similar suggestions proposed to explain the increase in the Sr isotopic ratio over the same time period [6,7]. Nevertheless, very few Os isotopic measurements exist for Himalayan derived samples [1]. In order to test the hypothesis of a Himalayan-driven increase in the seawater Os isotopic ratio, we have undertaken a study of sediments from two drill cores in the distal portion of the Bengal Fan.

2. Geologic setting and sedimentary characteristics

The Bengal Fan (Fig. 1), which covers an area of about 3,000,000 km^2, is the world's largest submarine fan. It reaches a maximum thickness of over 22 km, and contains about 2.9×10^{16} t of sediments, deposited after the Indo–Asian collision [8]. The Fan is fed by the Ganges–Brahmaputra river system, which drains the Himalayan mountain range. This sediment-laden system provides 5–10% of the river particulate flux to the world's oceans [9].

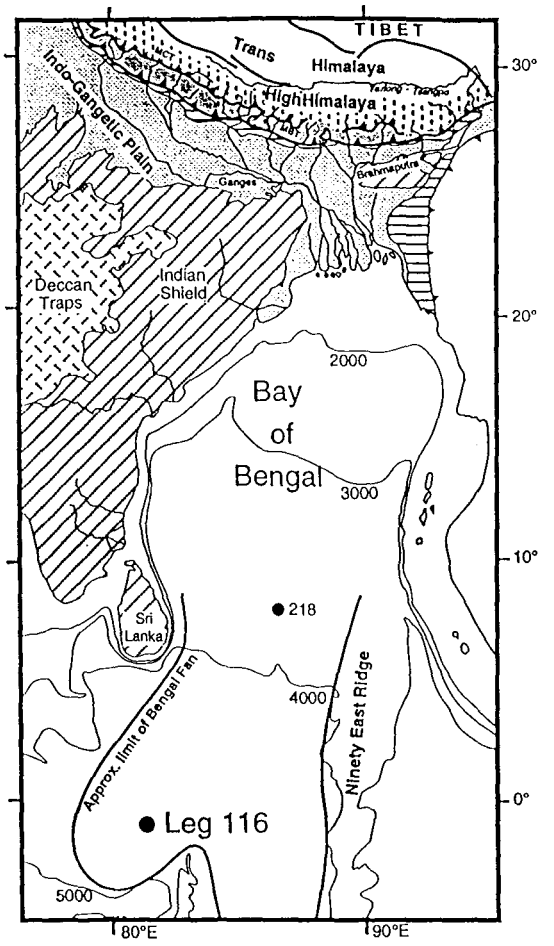

Fig. 1. Map of the Bengal Fan, showing the location of ODP Leg 116.

The samples in this study were taken from Holes 717C and 718C, drilled in the distal portion of the Bengal Fan during ODP Leg 116 [10]. These cores provide a continuous record of 17 m.y. of sedimentation. Sediments are dominated by silt and mud turbidite deposits, interspersed with rare pelagic clay layers. Sedimentation rates were quite high, typically

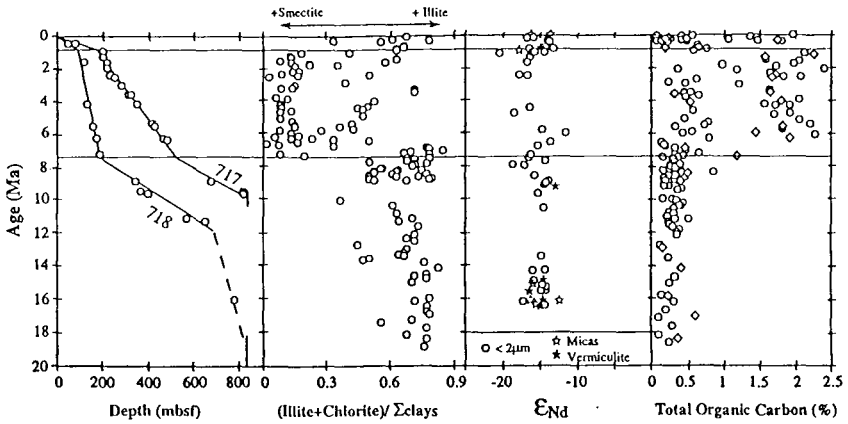

Fig. 2. Sediment thickness, clay composition, $_{Nd}$, and organic carbon content vs. age in ODP Holes 717 and 718 of the distal Bengal Fan, after [10,12–14,19]. Note the decrease in sediment accumulation rate, the change in clay composition and the increase in organic carbon content during the period 0.9–7.4 m.y.

about 100 m per m.y., and varied significantly both between and along individual drill cores. Marked changes in lithology, clay mineralogy, sedimentation rate and maximum grain size occurred abruptly at 0.9 and 7.4 m.y. [11,12] (Fig. 2). During this time interval, the clays were dominated by smectites and kaolinites, rather than by the chlorites and illites that prevailed earlier, and the maximum grain size decreased to less than 100 μm. The average organic carbon content also increased notably [13]. Interestingly, these profound changes were not accompanied by variations in the bulk sediment Sr and Nd isotopic compositions [12], which remained similar to those observed in the source rocks in the High Himalayas. These observations suggest that the sedimentary source did not change greatly during the time of sediment deposition but that the style of erosion was marked by an intensification of chemical weathering during the period from 0.9 to 7.4 m.y. [12,14].

3. Analytical techniques

Os was extracted for isotopic analysis by two methods: (1) hydrogen peroxide–sulphuric acid washing to separate the leachable component, presumably of hydrogenous origin; and (2) Carius Tube dissolution to obtain the bulk rock composition. The H_2O_2 leaching technique used was nearly identical to that developed by Pegram et al. [1,2], allowing direct comparison with the results of these earlier studies. The only significant difference was that, because of sample size limitations, only 1–2 (instead of 40–60) grams of powder and about 15 ml of leaching solution were used per sample. Also, in some cases, sample powders were spiked with ^{185}Re (in addition to ^{190}Os), and aliquots (~ 25% of sample solution) for Re analyses were removed after gentle heating of the leaching solution in the distillation vessel [1]. Os distillations were performed using a previously described two-step procedure [15]. Total Os blanks by this procedure were difficult to measure directly because, in the absence of sample-derived Fe and Mn, H_2O_2 is not broken down completely during gentle heating and reacts with the CrO_3 solution, making Os distillation impossible. However, other techniques using comparable quantities of reagents suggest a total Os blank of about 2 pg for this procedure.

Whole rock sample powders were digested by the Carius Tube (CT) technique, following a procedure slightly modified from that described by Shirey and Walker [16]. The main differences involved tube design and sealing. The neck of the tube was lengthened to 8 cm and the thickness of the neck walls increased to 3 mm. Samples dissolved in 4 ml 12 N HCl were added to the tube and chilled to −115°C in a dewar containing an ethanol–liquid N_2 mixture.

Then 2 ml of 15 N HNO_3 were added to make aqua regia. At this point the tube was evacuated using a hand pump. With the tube still under vacuum, the ethanol–liquid N_2 bath was removed and replaced by a metal dewar containing pure liquid N_2. This allowed the tube to be safely sealed while the solution remained frozen. The neck was then sealed with an oxygen–propane torch about 4 cm above the joint with the main body of tube, while pulling on the neck from above. The combination of the thicker walls and the vacuum allowed the tubes to be sealed with relative ease even by inexperienced glassblowers. After sealing, the tube neck was annealed in a small, fitted cylindrical oven at 560°C for about 1 h while the tube body remained immersed in liquid N_2. This step proved to be essential for removing the stresses in the seal resulting from the use of thicker walled glass, which could cause tube bursting. After tube annealing, samples were digested and distilled following the procedure given in [16]. Total Os blanks by this technique were typically around 5 pg.

Three types of samples were used for Re analyses: sediment leachates; bulk rocks dissolved by the Carius Tube technique; and, in one case, a bulk rock dissolved in concentrated HF–HNO_3. For sediment leachates, a sufficient quantity of concentrated H_2SO_4 was added to the Re aliquot (removed as described above) to produce a 5 N H_2SO_4 solution. Re was then separated from this solution using the two-column technique currently in use at DTM [16]. For bulk rock samples dissolved by the Carius Tube technique, Re was extracted by the same procedure, starting with the liquid residue remaining after the first dissolution step. Finally, Re was extracted from the sample dissolved in HF–HNO_3 using two successive resin columns. In each, the sample was loaded and washed in 0.8 N HNO_3 and eluted with 8 N HNO_3. Total procedural blanks for all three types of samples were quite variable, but averaged about 15 pg per g sample.

Os and Re analyses were performed on a Finnigan MAT 262 mass spectrometer operating in negative ion mode, using the negative thermal ionization technique (NTIMS) [17,18]. During several of the analyses, indicated in italics in Table 1, the peak at mass 233 was significant (> 1% of the mass 235 peak). In most of these cases not enough sample powder remained to allow the analysis to be repeated. However, the lack of systematic correlations between masses 233 and 235 during most runs suggests that this peak was not usually composed primarily of $^{185}ReO_3$. Thus the data given in Table 1 were not corrected for possible Re interferences. Use of $^{187}ReO_3$ corrected data would not change any of the results or conclusions of this study.

4. Results

Os isotopic compositions, and Os and Re concentrations, are listed in Table 1. Os isotopic ratios for both leachates and whole-rock samples are plotted as a function of sediment age [19,20] in Fig. 3, which also displays the seawater Os curve. The Os isotopic ratio of the most recent leachate, with an age of 0.9 m.y., is indistinguishable from values inferred for recent seawater [21,22]. With increasing sediment age, the $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of leachable Os from the Bengal Fan increases. This contrasts markedly with the seawater Os curve, which shows a decrease in $^{187}Os/^{188}Os$ with increasing age. This curve was originally determined by the same leaching technique employed in the current study, so the divergence is not the result of an analytical artifact. Also, the possible effect of dissolution of cosmic dust particles by this leaching procedure, noted by Peucker-Ehrenbrink et al. [3], is not important in this case because of the very high sedimentation rates in the Fan. Great variations in Os isotopic ratio occur at the lithologic boundary at 7.4 m.y., but the general tendency for increasing $^{187}Os/^{188}Os$ with depth continues down into the underlying unit. Finally, near the bottom of the section, the trend is reversed, and $^{187}Os/^{188}Os$ starts to decrease with increasing depth.

The bulk sediment $^{187}Os/^{188}Os$ ratios, obtained by the Carius Tube technique, are generally equal to or lower than those of the corresponding leachates, while the Os concentrations are 3–5 times higher (Table 1). Since the bulk compositions include the leachable components, presumably derived from interaction with seawater and/or porewater, $^{187}Os/^{188}Os$ ratios of the detrital components of the bulk sediments must be still lower. However, the number of bulk rock analyses is limited and the ratios are quite variable, suggesting that more radiogenic detrital compositions may exist that have not

Table 1
Os isotopic data and Os and Re concentrations of leachates and bulk sediments of the Bengal Fan

Sample	Depth (mbsf)	Age (Ma)	Type	$^{187}Os/^{188}Os$	$^{187}Os/^{186}Os$	^{188}Os (ppt)	[Os] (ppb)	[Re] (ppb)
Hole 717C								
18X CC 6-7	140.56	0.9	Leach	0.941 ± .006	7.82	1.38	0.012	
			CT					0.46
26X 2 85-86	209.85	1.9	Leach	1.018 ± .025	8.46	3.08	0.026	
45X 4 80-81	393.30	5.0	Leach	1.141 ± .013	9.48	1.63	0.014	
			CT	*1.228 ± .042*	10.20	9.31	0.080	2.32
54X 6 99-100	481.99	6.5	Leach	1.209 ± .010	10.04	1.86	0.016	
			Leach 2nd	1.174 ± .010	9.75	1.93	0.017	
			HF–HNO_3					1.15
			CT					1.02
57X CC 33-35	511.66	7.0	Leach	0.995 ± .008	8.27	5.09	0.043	11.31
			CT					11.35
			CT 2nd	*0.862 ± .007*	7.16	9.02	0.075	12.04
59X 7 28-29	530.28	7.3	Leach	*0.876 ± .008*	6.84	3.04	0.036	
60X 3 2-3	533.52	7.4	Leach	*0.942 ± .016*	7.83	3.32	0.028	
60X CC 5-6	539.55	7.4	Leach	*1.678 ± .041*	13.94	2.20	0.020	1.06
65X 4 85-86	583.35	7.9	Leach	1.400 ± .014	11.63	7.56	0.067	
90X 1 115-116	810.35	9.5	Leach	1.316 ± .009	10.94	2.18	0.019	
			Leach 2nd	1.314 ± .028	10.92	3.88	0.034	
			CT	1.054 ± .006	8.75	12.78	0.108	0.20
Hole 718C								
69X 1 83-84	656.13	13.0	Leach	*1.605 ± .031*	13.33	1.73	0.016	
			Leach 2nd	1.524 ± .019	12.67	2.70	0.024	
			CT	1.313 ± .005	10.91	7.38	0.064	
84X 1 76-77	798.56	14.8	Leach	1.479 ± .057	12.29	1.48	0.013	0.52
88X 3 117-118	839.97	15.3	Leach	*1.424 ± .011*	11.83	2.03	0.018	
			CT	*0.293 ± .007*	2.44	9.75	0.075	0.58
90X 1 112-113	855.92	15.5	Leach	1.394 ± .016	11.58	1.42	0.013	

[Os] = total concentration; CT = Carius Tube digestion. Age calculated from [19], corrected according to [20]. Suffix 2nd in sample type indicates analysis of a second powder split. $^{187}Os/^{186}Os$ obtained from $^{187}Os/^{188}Os$ by dividing by 0.12035. $^{187}Os/^{188}Os$ values in italics represent analyses for which the mass 233 peak exceeded 1% of the mass 235 peak. As discussed in text, in most cases this peak was probably not composed mainly of $^{185}ReO_3$, so no Re correction was made to the data.

been measured. Detrital Os concentrations, obtained by subtracting the presumably hydrogenous leachable Os component from the bulk rock concentrations, range from about 0.03 to 0.08 ppb, and thus are entirely consistent with the observed range of terrigenous sedimentary Os concentrations (0.015–0.09 ppb) [23].

Leachable Os concentrations range from 0.012 to 0.067 ppb (Table 1). Repeat analyses of three powder splits resulted in very good agreement in one case (within 0.001 ppb, sample 717C 054X 06 99-100), but in differences of 0.008 and 0.015 ppb in the other two cases. Concentration reproducibility depends not only on powder homogeneity but also on exact replication of the leaching procedure and, perhaps even more importantly, on equal efficiency of spike and sample distillation yields. Thus, it is not surprising that some variation is observed for duplicate analyses. Nevertheless, it is apparent that typical leachable Os concentrations average around 0.02 ppb, and that this value does not change in a systematic manner with depth or age. In contrast, the two Ganges river sediment leachates analyzed by Pegram et al. [1] had Os concentrations of 0.003 and 0.005 ppb, much lower than those of any of the samples analyzed here. This could reflect a mineralogical difference between sediments collected in rivers and in the distal portion of the Fan, as the latter may contain a higher proportion of fine clay particles perhaps capable of absorbing Os. It may also result

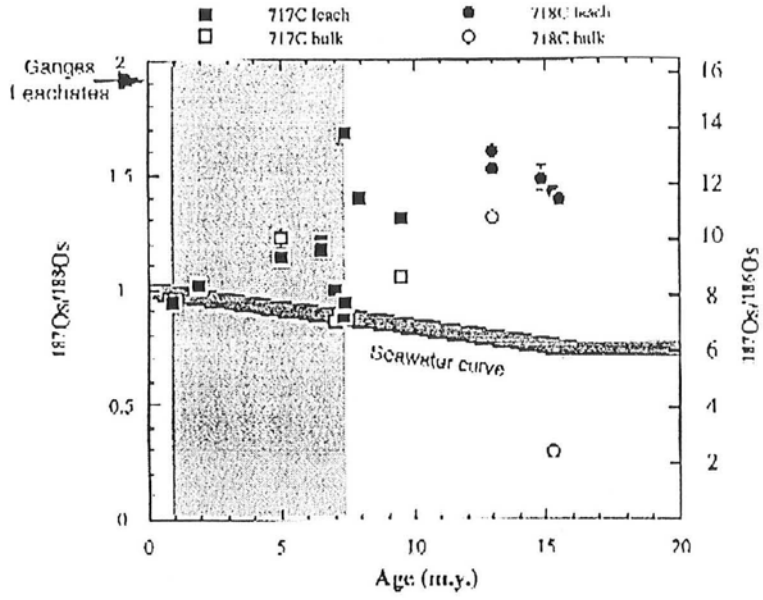

Fig. 3. Os isotopic results from H_2O_2–H_2SO_4 leachates (filled symbols) and bulk sediment samples (open symbols). The Os seawater evolution curve, as defined in [3], is included for reference. Also shown are results of Ganges River sediment leachates obtained by the same leaching technique [1]. The period from 0.9 to 7.4 m.y. with unusual sedimentological properties is shaded.

from a higher abundance of ferromanganese phases in the Fan sediments or from the greater amount of time available for Os scavenging on the sea floor compared to in a river bed. Finally, it may simply reflect a higher Os concentration in seawater than in river water.

Re concentrations, obtained by all three methods described above, are in most cases 1 ppb or lower. For sample 717C 54X 06 99-100, good agreement was found between bulk sediment Re concentrations obtained by two different methods (HF–HNO_3 and Carius Tube dissolutions), suggesting that both techniques yield reliable results. Re contents are somewhat higher and more variable in the interval from 0.9 to 7.4 m.y. (Fig. 4). This is not surprising since this section contains higher and more variable organic carbon contents [13] (Fig. 2), and Re concentrations have been shown to be closely linked to this parameter [5]. One sample taken from this section (717C 57X CC 33-35) contains about 11 ppb Re. This very high concentration was obtained both by two separate bulk sediment (Carius Tube) digestions and by leaching. Due to the unexpectedly high concentration, this sample was seriously underspiked, making it impossible to distinguish the Re concentrations in the whole rocks and the leachate accurately. Nevertheless, it is apparent that the great majority of

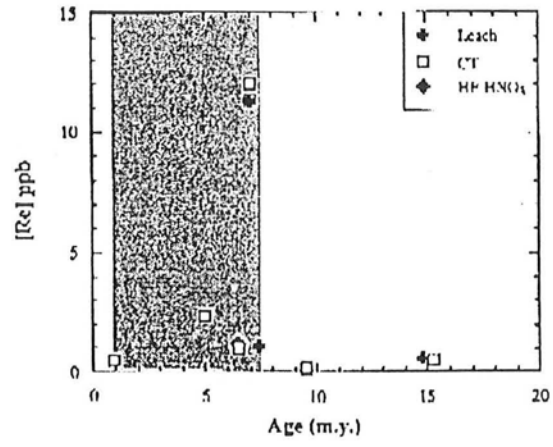

Fig. 4. Re concentrations obtained by several techniques versus depositional age. In the two cases where Re concentrations were obtained by different techniques from the same sample, the results are nearly identical. Re concentrations during the period from 0.9 to 7.4 m.y. were somewhat higher than those from elsewhere in the section. CT = Carius Tube digestion.

the Re in this sample was contained in leachable phases.

5. Discussion

5.1. Contribution of leachable Himalayan-derived Os to seawater

Fig. 3 demonstrates that, as the sediment surface is approached, the isotopic composition of leachable Os approaches that of present-day seawater, implying that this component is indeed of marine origin. In contrast, the two analyses that exist of Ganges River sediment leachates, extracted by the same leaching technique, are much more radiogenic [1]. This suggests that the leachable Os from river sediments is replaced by seawater-derived Os prior to sediment burial in the Fan. While it is true that the leachable Os concentrations of the Fan sediments are higher than those of the river sediments, a mass balance calculation demonstrates that the observed isotopic composition cannot result from simple masking of the river component by a more abundant marine component. Assuming that the two Ganges samples [1] are representative, the river component has a leachable Os concentration of about 4 ppt, with $^{187}Os/^{188}Os \sim 1.94$. Production of an Os composition similar to that of the uppermost sample (12 ppt, $^{187}Os/^{188}Os = 0.941$; see Table 1) by simple dilution would require addition of 8 pg of Os with a $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of 0.44. This ratio is clearly much lower than that of recent seawater, implying that the simple dilution hypothesis can be rejected. This suggests that leachable Os from river sediments is indeed almost completely removed prior to sediment burial, thus providing a potentially important source of radiogenic Os to the world's oceans.

The possible importance of this process can be evaluated by comparison with the results of Ravizza and Esser [5]. These authors devised a simple model in which the size of the seawater common Os reservoir (taken as $\sim 6.3 \times 10^6$ mol, equivalent to an Os concentration of ~ 0.85 pg/l) and the common Os flux to the oceans (taken as ~ 460 mol/yr) were assumed to remain constant. They calculated that, under these conditions, about 2×10^8 moles of excess radiogenic ^{187}Os are required to explain the increase in the seawater $^{187}Os/^{188}Os$ ratio over the past 16 million years. This figure can be compared with the total amount of ^{187}Os delivered to the oceans by release of leachable Os from Himalayan river sediments. Assuming that the two Ganges analyses cited above are typical, and taking the sediment flux from the Ganges–Brahmaputra system to be 1.06×10^9 t/yr [9], a current Himalayan-derived ^{187}Os flux of ~ 5.75 mol/yr can be calculated. In the Ravizza and Esser model, the essentially linear rate of increase in the $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of seawater observed over the past 16 m.y. requires a linear rate of increase in the flux of excess ^{187}Os over the same time period. Thus, we further assume that the Himalayan ^{187}Os flux has increased linearly from 0 to 5.75 mol/yr. In this case, the integrated amount of leachable ^{187}Os delivered by the Ganges–Brahmaputra system over the past 16 m.y. was $\sim 4.6 \times 10^7$ mol, about 23% of the amount required to explain the increase in the marine $^{187}Os/^{188}Os$ ratio.

The uncertainties in the preceding calculation must be emphasized. The Ravizza and Esser estimate of the total amount of radiogenic Os required to explain the rise in the marine Os ratio depends on the flux into and the total size of the oceanic Os reservoir. Both of these values are presently only poorly constrained. Furthermore, the assumption that the common Os reservoir can be treated as a steady-state system is questionable. In particular, Pegram et al. [1] stress the importance of variations in non-radiogenic Os inputs, such as dissolution of meteoritic detritus and alteration of abyssal peridotites. Finally, the river Os composition used in the calculation, based on only two samples [1], may not be representative of Himalayan-derived sediments. Nevertheless, the above discussion suggests that release of leachable Os from Ganges–Brahmaputra sediments explains a substantial part of the increase in the oceanic $^{187}Os/^{188}Os$ ratio over the past 16 m.y. The role played by Himalayan erosion in this increase may be even greater if significant quantities of Os are delivered as dissolved species in Ganges–Brahmaputra river waters, or if, as suggested below, thermoconvective mobilization of radiogenic Os in Bengal Fan sediments occurs. A more rigorous evaluation of the importance of the Himalayas depends on tighter constraints on all of the fluxes that influence the marine Os budget.

5.2. The $^{187}Os/^{188}Os$ Bengal Fan record compared to the deep ocean sedimentary record

5.2.1. Increase in $^{187}Os/^{188}Os$ with sediment age

A striking feature of the sediment leachate data is that the $^{187}Os/^{188}Os$ ratio increases markedly with age, in contrast to the seawater Os ratio which decreases with increasing age. One possible explanation of this trend could be partial retention of radiogenic, river-derived Os in the older sediments. As suggested above, the approach of the $^{187}Os/^{188}Os$ ratio towards the current marine value near the surface of the sedimentary column implies that the leachable Os component of sediments delivered by the Ganges–Brahmaputra system was completely replaced by marine Os prior to sediment burial. However, it is possible that such total Os exchange only occurred when sediment burial rates were relatively low, such as during the period from 0.9 to 7.4 m.y. (Fig. 2). During this time the leachable Os record would reflect the marine composition, modified by radiogenic increase due to the expected high average Re content of this interval (see below), with the fine scale Re variations smoothed out by hydrothermal circulation. In contrast, during earlier times when sedimentation rates were higher (Fig. 2), hydrogenous Os exchange with seawater may have been only partial, since the time available before burial would have been shorter. Thus, prior to 7.4 m.y., the leachable Os record may reflect a mixture of marine and river-derived components. In this case, the apparent continuation of the trend of increasing $^{187}Os/^{188}Os$ across the 7.4 m.y. lithologic boundary would be only coincidental.

This interpretation of the data seems unlikely for several reasons. First, the most recent sample, 717C 18X CC 006-007, is actually slightly younger than the lithologic boundary at 0.9 m.y. and was deposited during a period of high sedimentation rate. Nevertheless, it accurately reflects the seawater Os ratio at that time, implying that the marine signature can be imprinted on the leachable phases even when sediment burial rates are quite high. Second, the leachable Os concentrations of samples older than 7.4 m.y. are similar to those of younger samples, and much higher than the leachable Os concentration of Ganges river sediments (about 4 ppt [1]). Assuming there has been no drastic change in the river Os concentration, this suggests that the great majority of the leachable component is of marine origin, even for samples deposited before 7.4 m.y. Addition of such large proportions of marine Os would produce $^{187}Os/^{188}Os$ ratios much lower than those observed, even if all of the river-derived hydrogenous Os were retained. Third, sedimentation rates prior to 7.4 m.y. in Hole 718C, where the 4 earliest samples were collected, are only moderately higher than such rates during the 0.9–7.4 m.y. slow sedimentation period in Hole 717C. Finally, the higher sedimentation rates in the earlier period were accompanied by higher silt to clay ratios. This would increase the permeability of the sediments and, perhaps, counterbalance the effect of higher burial rates on the time available for Os exchange with seawater. For all of these reasons, the possibility of direct burial of river-derived leachable Os without total or extensive exchange with seawater seems very unlikely.

If, as seems more likely, the $^{187}Os/^{188}Os$ ratio of the leachable Os were equal to that of seawater at the time of sediment burial, the discrepancy with the seawater evolution curve must result from post-depositional processes. One such process might be in situ radiogenic ingrowth resulting from high Re contents. Given the measured Os concentrations in the leachates, and the ages of the sediments, it can be shown that the Re concentrations required to produce such an effect fall generally in the range of 5–25 ppb. While such Re concentrations are high, they are not unreasonable, especially for sediments deposited under low O_2 conditions [24]. To test this possibility we measured the Re contents in several leachates and bulk sediment samples. The results (Table 1, Fig. 4) show that, with the exception of one sample (717C 057X CC 33-35), the Re concentrations are much too low to explain the high $^{187}Os/^{188}Os$ ratios by simple in situ radioactive decay.

Another possibility is that the increase in $^{187}Os/^{188}Os$ with age results from progressive alteration of radiogenic bulk sediments. To test this possibility we measured the bulk rock Os ratios of sediments for which sufficient sample powder remained. In 4 of the 5 cases, the bulk rock Os isotopic ratio was actually lower than that of the corresponding leachate. Thus in situ alteration of bulk sediments also cannot explain the high $^{187}Os/^{188}Os$ ratios of the associated leachates.

5.2.2. Exchange with radiogenic os delivered by thermo-convective circulation?

While in situ radioactive decay and sediment alteration both seem incapable of explaining the increase in $^{187}Os/^{188}Os$ with depth, it is possible that radiogenic Os could be brought in from elsewhere in the sedimentary pile. A recent study [25] has shown that a strong thermo-convective system exists in the distal part of the Bengal Fan, with lateral downslope flow rates as high as 1 m/yr. If this water flux carries radiogenic Os capable of exchanging with Os in the hydrogenous phases, it may produce the high $^{187}Os/^{188}Os$ ratios observed in the leachates. Such radiogenic Os could come from alteration of more radiogenic bulk sediments. While the few bulk sediments analysed (Table 1) have relatively low $^{187}Os/^{188}Os$ ratios, recent measurements [26] indicate that some Ganges River sediments are very radiogenic.

Another plausible source of mobile ^{187}Os could be radiogenic decay of Re-bearing sediments sequestered in the organic rich zone from 0.9 to 7.4 m.y. The amount of ^{187}Os available from this source can be estimated from the total Re content in this section. The few Re measurements we have from this zone show great variability, in accordance with the variability in organic carbon content [13] (Fig. 2). Nevertheless, the average total organic carbon (TOC) content in this interval is 1.5 wt% [10,13]. Comparison with the sedimentary Re versus organic carbon correlation noted by Ravizza and Esser [5] suggests an average Re concentration of about 12 ppb for this zone, similar to the Re content of sample 717C 057X CC 33-35. Using this estimate, and the average grain density (~ 2.75 g/cm^3) and porosity ($\sim 48\%$) of this zone in Hole 717C [10], it can be calculated that this 400 m thick section contains about 0.00068 g Re/cm^2 surface area. Radioactive decay of this Re will produce about 1.56×10^{-10} mol/cm^2 of ^{187}Os in 4.15 m.y., the average age of the sediments in this depth range. This can be compared with the number of moles of excess ^{187}Os required to explain the divergence between the Bengal leachate curve and the seawater evolution trend. The variation in the number of moles/cm^3 of ^{188}Os with depth can be approximated, assuming a mean leachate ^{188}Os concentration of 2.82 ppt (average from Table 1), a mean grain density of 2.75 g/cm^3 [10], and the measured porosity gradients for Holes 717C (from 0.9 to 9.5 m.y.) and 718C (from 9.5 m.y. to 15.5 m.y.) [10]. Using this ^{188}Os gradient, the difference between the Bengal leachate $^{187}Os/^{188}Os$ record and the seawater Os curve, and the depth versus age curves for Holes 717C and 718C, it can be shown that the Bengal leachate curve represents an excess of about 1.3×10^{-9} mol of $^{187}Os/cm^2$ with respect to the seawater curve. This is about 8 times the amount of ^{187}Os available from the decay of ^{187}Re in the organic rich section of Hole 717C.

Thus the organic-rich zone of Hole 717C does not contain enough Re to explain the ^{187}Os excess in the directly underlying sediments. However, the main component of thermo-convective flow is lateral, rather than vertical [25]. Thus such flow will bring radiogenic Os from further upslope in the fan, where the organic rich section should be much thicker. Furthermore, uncertainties in the relationship between organic carbon and Re concentration [5], as well as in the average TOC of the zone of interest, suggest that the estimated average Re content could be off by a factor of two or more. Thus radiogenic production of ^{187}Os in the organic-rich zone, coupled with strong thermo-convective flow, may explain a large part of the increase in the leachable $^{187}Os/^{188}Os$ ratio with depth. In addition, a non-negligible amount of ^{187}Os may be produced below the 7.4 m.y. boundary. In this zone the measured Re concentrations are quite low (Table 1), but the mean TOC is 0.4%, suggesting an average Re concentration of 3 ppb if the organic carbon–Re relationship [5] can be extrapolated into this concentration range.

If redistribution of radiogenic Os by thermo-convective flow is an important process, the increase in Os isotopic ratio below the organic-rich zone implies that the flow patterns allow excess ^{187}Os to be carried to lower stratigraphic levels in the downstream direction. In addition, the extreme variations in $^{187}Os/^{188}Os$ at 7.4 m.y. may reflect perturbations in the flow patterns associated with this lithologic boundary. The apparent decrease in $^{187}Os/^{188}Os$ at ages greater than 13 m.y. may reflect a decreasing influence of this flow with depth.

The plausibility of the process suggested here depends on the mobility of radiogenic Os during diagenesis. Sediment diagenesis has been proposed previously to explain the radiogenic Os isotopic ratio

of a phosphatic crust from the Peru continental margin [27]. Furthermore, the platinum group elements Ir and Pt, as well as Re, have been shown to be mobile during diagenesis in the vicinity of redox boundaries [28]. The rapidly varying organic carbon content in the section from 0.9 to 7.4 m.y. suggests that redox gradients are strong in this zone, and may have served to promote Os mobility. This seems particularly likely for radiogenic Os. The parent isotope, ^{187}Re, is very strongly retained by organic matter. If the daughter, ^{187}Os, has a lesser affinity for organic material, it may be mobilized and carried away by thermoconvective flow.

Finally, radiogenic Os, derived either from alteration of sediments in the Fan or from decay of ^{187}Re in the organic-rich zone, and carried into the oceans by hydrothermal convection, may provide another source of Himalayan-derived ^{187}Os to seawater.

6. Summary and conclusions

Two observations are evident from this study of Bengal Fan sediments. First, near the sediment surface the isotopic ratio of leachable Os reflects that of seawater. In contrast, leachable Os from Ganges River sediments has much higher ^{187}Os/^{188}Os ratios [1]. Thus, this radiogenic Os is apparently completely released prior to sediment burial, providing an important source of ^{187}Os to the oceans. Simple modelling of this process suggests that it can explain a substantial part of the rise in the seawater ^{187}Os/^{188}Os ratio observed over the past 16 m.y.

The second observation is that the ^{187}Os/^{188}Os ratio of leachable Os increases with increasing sediment age, in contrast with the decrease with age observed in the seawater record. This increase with depth is unlikely to result from partial retention of river-derived radiogenic Os in the leachable component, and instead probably reflects post-depositional processes. The low to moderate Re contents of these sediments indicate that the discrepancy with the seawater curve cannot be explained by simple in situ radiogenic ingrowth since sediment deposition. Similarly, for 4 of the 5 samples analyzed, the bulk rock ^{187}Os/^{188}Os ratio is actually lower than that of the corresponding leachate, indicating that the radiogenic leachate compositions also cannot be explained by in situ sediment alteration. Instead, we suggest that the excess ^{187}Os was brought in from elsewhere in the sedimentary pile. This suggestion is supported by the presence of an active thermo-convective flow pattern, with a strong downslope component, in the distal portion of the Fan [25]. The ultimate source of the radiogenic Os might then be alteration of radiogenic sediments derived from ancient source rocks or post-depositional radioactive decay of Re in organic-rich sediments further upslope in the Fan.

Finally, the divergence between the results obtained on Bengal Fan sediments and those obtained in the open ocean [2] by the same leaching technique suggest that Os sediment leachate data from continental margin deposits must be interpreted with caution.

Acknowledgements

We thank Steve Shirey for sharing his experience and expertise in the Carius Tube technique, and Bertrand Jacquier for his perseverance and ingenuity in implementing this technique at CRPG. We also gratefully acknowledge technical assistance from Catherine Spatz, and helpful suggestions from Greg Ravizza. This manuscript benefitted greatly from reviews by Karl Turekian and two anonymous referees. This study was financed in part by the CNRS program (DBT) 'Fleuve et Erosion', and represents CRPG contribution no. 1255 and INSU DBT no. 77. *[MK]*

References

[1] W.J. Pegram, B.K. Esser, S. Krishnaswami, K.K. Turekian, The isotopic composition of leachable osmium from river sediments, Earth Planet. Sci. Lett. 128 (1994) 591–599.

[2] W.J. Pegram, S. Krishnaswami, G.E. Ravizza, K.K. Turekian, The record of seawater ^{187}Os/^{186}Os variation through the Cenozoic, Earth Planet. Sci. Lett. 113 (1992) 569–576.

[3] B. Peucker-Ehrenbrink, G. Ravizza, A.W. Hofmann, The marine ^{187}Os/^{186}Os record of the past 80 million years, Earth Planet. Sci. Lett. 130 (1995) 155–167.

[4] G. Ravizza, Variations in the ^{187}Os/^{186}Os ratio of seawater over the past 27 million years as inferred from metalliferous carbonates, Earth Planet. Sci. Lett. 118 (1993) 335–348.

[5] G. Ravizza, B.K. Esser, A possible link between the seawater osmium isotope record and weathering of ancient sedimentary organic matter, Chem. Geol. 107 (1993) 255–258.

[6] M.R. Palmer, J.M. Edmond, The strontium isotope budget of the modern ocean, Earth Planet. Sci. Lett. 92 (1989) 11–26.
[7] F.M. Richter, D.B. Rowley, D.J. DePaolo, Sr isotope evolution of seawater: the role of tectonics, Earth Planet. Sci. Lett. 109 (1992) 11–23.
[8] J.R. Curray, Sediment volume and mass beneath the Bay of Bengal, Earth Planet. Sci. Lett. 125 (1994) 371–383.
[9] J.D. Milliman, P.M. Syvitski, Geomorphic/tectonic control of sediment discharge to the ocean: the importance of small mountainous rivers, J. Geol. 100 (1992) 525–544.
[10] J.R. Cochran, D.A.V. Stow, et al., Sites 717–718–719, Distal Bengal fan, Proc. ODP Init. Rep. 116 (1989).
[11] A. Bouquillon, C. France-Lanord, A. Michard, J.-J. Tiercelin, Sedimentology and isotopic chemistry of the Bengal fan sediments: the denudation of the Himalaya, Proc. ODP Sci. Results 116 (1990) 43–58.
[12] C. France-Lanord, L. Derry, A. Michard, Evolution of the Himalaya since Miocene time: isotopic and sedimentologic evidence from the Bengal Fan, in: P.J. Treloar, M. Searle (Eds.), Himalayan Tectonics, Geol. Soc. London Spec. Publ. 74 (1993) 603–621.
[13] C. France-Lanord, L.A. Derry, $\delta^{13}C$ of organic carbon in the Bengal fan: source evolution and transport of C3 and C4 plant carbon to marine sediments, Geochim. Cosmochim. Acta 58 (1994) 4809–4814.
[14] L.A. Derry, C. France-Lanord, Neogene Himalayan weathering history and river $^{87}Sr/^{86}Sr$: Impact on the marine Sr record, Earth Planet. Sci. Lett. 142 (1996) 59–74.
[15] L. Reisberg, A. Zindler, F. Marcantonio, W. White, D. Wyman, B. Weaver, Os isotope systematics in ocean island basalts, Earth Planet. Sci. Lett. 120 (1993) 149–167.
[16] S.B. Shirey, R.J. Walker, Carius tube digestion for low-blank rhenium–osmium analysis, Anal. Chem. (1995), in press.
[17] R.A. Creaser, D. Papanastassiou, G.J. Wasserburg, Negative thermal ion mass spectrometry of osmium, rhenium, and iridium, Geochim. Cosmochim. Acta 55 (1991) 397–401.
[18] J. Volkening, T. Walczyk, K.G. Heumann, Osmium isotope determinations by negative thermal ionization mass spectrometry, Int. J. Mass Spec. Ion Phys. 105 (1991) 147–159.
[19] S. Gartner, Neogene calcareous nannofossil biostratigraphy, Leg 116 (Central Indian Ocean), Proc. ODP Sci. Results 116 (Central Indian Ocean) (1990) 165–187.
[20] S.C. Cande, D. Kent, A new geomagnetic polarity time scale for the late Cretaceous and Cenozoic, J. Geophys. Res. 97 (B10) (1992) 13917–13951.
[21] B.K. Esser, K.K. Turekian, Accretion rate of extraterrestiral particles determined from osmium isotope systematics of Pacific pelagic clay and manganese nodules, Geochim. Cosmochim. Acta 52 (1988) 1383–1388.
[22] G. Ravizza, K.K. Turekian, Application of the $^{187}Re-^{187}Os$ system to black shale geochronometry, Geochim. Cosmochim. Acta 53 (1989) 3257–3262.
[23] B.K. Esser, K.K. Turekian, The osmium isotopic composition of the continental crust, Geochim. Cosmochim. Acta 57 (1993) 3093–3104.
[24] D. Colodner, J. Sachs, G. Ravizza, K. Turekian, J. Edmond, E. Boyle, The geochemical cycle of rhenium: a reconnaissance, Earth Planet. Sci. Lett. 117 (1993) 205–221.
[25] A. Ormond, J. Boulègue, P. Genthon, A thermoconvective interpretation of heat flow data in the area of Ocean Drilling Program Leg 116 in a distal part of the Bengal Fan, J. Geophys. Res. 100 (1995) 8083–8095.
[26] A.-C. Pierson-Wickmann, L. Reisberg, C. France-Lanord, A Re–Os study of leachates and bulk sediments from the Bengal Fan and Himalayan rivers (abstract), in: EUG 9, Strasbourg, 1997.
[27] G. Ravizza, Rhenium–osmium geochemistry of modern and ancient organic-rich sediments, Thesis, Yale Univ., 1991.
[28] D.C. Colodner, E.A. Boyle, J.M. Edmond, J. Thomson, Post-depositional mobility of Pt, Ir and Re in abyssal sediments, Nature 358 (1992) 402–404.

Annexe 2

Tableaux de données

Tableau 1 : Composition chimique en éléments majeurs de roches source

Echant.	SiO_2	$A_{l2}O_3$	Fe_2O_3	MnO	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	Pf	Total
NA 178	15.26	6.42	1.59	0.02	1.33	40.4	0.27	1.15	0.33	0.25	32.93	99.95
NA 181	57.31	14.19	13.15	0.03	1.92	1.82	2.56	3.65	0.89	0.14	3.75	99.41
NL 58	61.43	14.11	6.17	0.11	5.00	5.82	1.02	3.25	0.90	0.36	1.13	99.3
NL 59	73.94	10.53	5.43	0.08	2.59	0.48	1.66	2.82	0.97	0.18	0.94	99.62
NL 93	82.60	8.19	1.85	0.07	0.58	1.76	2.01	0.66	0.33		0.52	98.57
NL 146	74.46	12.06	4.44	0.08	1.08	0.66	2.10	3.76	0.63	0.10	0.68	100.68
NL 413	75.27	11.59	4.52	0.07	1.94	0.96	2.25	2.09	0.84	0.00		100.43
NL 512	71.34	11.34	6.23	0.10	2.15	1.07	2.18	2.68	1.25	0.28	0.83	99.45
NL 75	79.74	9.65	2.69	0.05	0.65	1.16	2.37	1.62	0.44	0.00	0.69	99.75
NL 136	69.44	14.07	6.07	0.10	1.78	1.16	2.25	2.92	0.98	0.23	0.92	99.92
NL 3	80.71	9.33	2.59	0.04	0.51	0.25	1.11	3.53	0.35		1.23	99.6
NL 4	53.6	24.36	6.95	0.05	2.55		0.29	6.78	0.72		4.55	99.85
AP 9	81.13	8.52	3.11	0.02	1.58		0.05	2.32	0.21	2.14		99.08
AP 874	55.39	24.47	5.77	0.06	1.55		0.49	6.96	0.5		4.81	100
NL 1	66.51	10.13	2.36	0.02	0.93		0.06	5.83	0.42		12.9	99.16
MO 370	71.12	15.18	2.14	0.00	1.25	0.01	0.08	4.73	0.60	0.01	4.83	99.95
AP 825	68.21	12.41	2.46	0.03	2.12	0.56	0.78	2.62	0.57		10.59	100.35
AP 207	27.15	3.1	1.12	0.1	14.95	21.79	0.02	1.68	0.02	0.2	29.5	99.43
AP 811	33.6	2.76	2.87	0.18	14.01	25.26	0.62	0.32	0.23	0.2	19.64	99.49
AP 865	24.93	1.57	2.83	0.1	14.32	21.05	0	0.72	0.2	0.2	32.91	98.63
AP 867	13.91	1.22	0.6	0.06	17.88	25.08	0.12	0.36	0.12	0.2	39.41	98.76

Tableau 2 : Composition chimique en éléments traces de roches source

Echant.	NA 178	NA 181	AP 207	AP 811	AP 865	AP 867	MO 370
As	6.33						1.39
Ba	73.93	349	358	402	91	67	677.96
Be	0.72						2.08
Bi	0.03						0.68
Cd	0.25						0.11
Ce	53.54						11.11
Co	8.50	30	48	52	44	36	2.37
Cr	46.04	70	73	47	53	37	98.77
Cu	8.00	<10	131	<10	17	<10	13.44
Dy	3.20						1.65
Er	1.42						0.94
Eu	1.00						0.44
Ga	10.32						20.86
Gd	3.60						1.40
Hf	1.50						1.66
Ho	0.56						0.35
La	25.50						11.59
Lu	0.24						0.17
Mo	0.24						13.00
Nb	6.89						11.86
Nd	22.84	59					9.27
Ni	17.27	45	55	44	51	34	15.46
Pb	9.48						6.52
Pr	5.67						2.75
Rb	38.21	65					175.77
Sb	0.24						0.77
Sm	4.15	12.6					1.89
Sn	1.74						2.46
Sr	1168.37	239	66	80	62	57	14.73
Ta	0.52						1.06
Tb	0.62						0.24
Th	6.94						13.01
Tm	0.23						0.15
U	1.00	185	58	72	75	46	3.79
V	63.16						785.68
W	57.87						8.46
Y	19.15						9.80
Yb	1.50						0.91
Zn	15.25	126					30.29
Zr	63.90						121.23
In	0.16						0.08
Ge	0.64						1.66

Tableau 3 : Composition chimique en éléments majeurs des sols.

Echant.	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MnO	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	Pf	Total
Sol de la HHC												
MO 33 0-10	51.07	14.955	7.09	0.07	2.17	0.68	0.78	1.99	0.81	0.29	18.96	98.85
MO 33 20-30	63.84	12.6	5.23	0.04	1.78	0.57	1.28	1.51	0.60	0.13	12.37	99.91
MO 33 40-50												
MO 33 60-70	64.72	13.46	6.37	0.02	1.17	0.34	0.83	1.73	0.90	0.14	10.11	99.79
MO 33 100-110	65.67	16.01	6.48	0.08	2.52	0.53	1.22	1.58	0.75	0.20	4.67	99.71
MO 33 180-190	64.71	16.18	7.10	0.08	2.96	0.46	1.38	2.16	0.80	0.15	3.76	99.74
Sol du LH												
MO 122 0-20	63.46	16.04	6.30	0.06	0.80	traces	0.15	2.41	0.67	0.12	9.85	99.9
MO 122 50-60	62.46	18.25	7.84	0.02	0.76	0.08	0.13	2.45	0.71	0.14	6.90	99.7
MO 122 120-140	58.72	20.16	9.40	0.03	0.82	0.11	0.13	2.45	0.81	0.18	6.90	99.7
MO 122 180	60.62	19.71	7.80	0.04	1.78	0.02	0.20	4.98	0.57	0.13	4.13	100
Narayani												
MO 219 0-10	61.28	14.20	5.81	0.08	2.60	2.51	1.28	3.63	0.68	0.19	7.40	99.66
MO 219 20-30	61.56	15.24	5.62	0.07	2.68	2.04	1.49	3.69	0.71	0.23	6.41	99.74
MO 219 50-60	69.38	10.25	4.04	0.05	1.85	4.33	1.07	2.64	0.53	0.12	5.56	99.82
MO 219 80-90	67.51	10.44	4.01	0.04	2.04	5.34	1.17	2.59	0.53	0.13	6.06	99.86
Sol sur schistes noirs												
MO 601 0-10	59.20	14.95	7.09	0.05	3.18	0.67	0.66	4.52	0.64	0.14	8.79	99.89
MO 601 10-20	61.15	15.27	7.21	0.05	3.23	0.55	0.68	4.53	0.64	0.13	6.45	99.89
MO 601 20-50	59.95	16.29	7.43	0.04	4.01	0.48	0.57	4.86	0.67	0.12	5.47	99.89
MO 601 bedrock	48.76	26.46	6.63	0.00	2.98	0.07	0.53	8.11	0.77	0.07	5.51	99.89
MO 602 0-20	66.77	14.30	6.34	0.06	1.49	0.24	0.57	4.07	0.52	0.12	5.38	99.86
MO 602 20-40	62.22	15.70	7.03	0.20	1.70	0.29	0.59	4.04	0.60	0.12	7.40	99.89
MO 602 40-60	64.11	15.49	6.72	0.17	1.62	0.25	0.60	3.99	0.59	0.06	6.29	99.89
MO 602 60-80	65.29	15.67	6.48	0.07	1.70	0.22	0.57	4.31	0.60	0.09	4.88	99.88

Tableau 4 : Composition chimique en éléments traces du sol MO 33 de la HHC.

Echant.	MO 33 0-10	MO 33 20-30	MO 33 60-70	MO 33 100-110	MO 33 180-190
As	7.51	4.39	8.73	3.31	1.00
Ba	380.27	295.11	322.84	296.33	417.08
Be	1.93	1.84	1.98	1.70	1.99
Bi	0.47	0.26	0.55	0.15	0.05
Cd	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Ce	62.01	56.70	119.06	92.93	94.90
Co	15.81	11.63	7.70	16.41	18.92
Cr	120.09	86.07	110.31	117.68	123.31
Cu	33.92	17.85	13.56	19.71	21.77
Dy	4.44	4.04	5.84	5.98	6.26
Er	2.57	2.72	2.70	3.59	3.06
Eu	1.08	0.92	1.60	1.37	1.61
Ga	22.80	17.53	25.36	21.30	23.20
Gd	4.50	4.39	6.50	6.07	6.62
Hf	4.59	5.09	9.60	6.48	6.56
Ho	0.99	0.92	1.20	1.39	1.34
La	29.59	28.57	60.43	47.18	48.00
Lu	0.37	0.37	0.43	0.56	0.52
Mo	0.61	0.32	0.82	0.34	0.11
Nb	13.82	10.82	18.29	14.15	13.08
Nd	24.04	23.97	46.37	39.97	38.33
Ni	54.52	35.48	27.76	49.66	58.04
Pb	20.67	14.00	19.38	12.38	9.68
Pr	6.47	6.29	12.19	9.79	10.21
Rb	112.15	75.10	102.05	89.35	133.78
Sb	0.48	0.23	0.40	0.24	0.23
Sm	5.15	4.68	9.09	7.86	8.44
Sn	4.18	2.95	4.61	3.44	4.01
Sr	52.24	51.98	51.74	44.74	43.37
Ta	1.36	1.05	1.71	1.32	1.18
Tb	0.75	0.70	1.03	0.99	1.02
Th	11.31	10.53	24.08	18.14	18.74
Tm	0.39	0.40	0.42	0.58	0.49
U	3.15	2.71	4.79	3.67	3.55
V	128.17	97.44	134.51	116.26	124.02
W	2.32	1.90	2.78	3.79	1.15
Y	26.38	27.40	29.75	36.64	33.79
Yb	2.50	2.52	3.15	3.93	3.70
Zn	87.13	55.64	38.29	71.24	86.05
Zr	181.89	186.99	352.08	238.51	243.61
In	0.05	0.04	0.04	0.04	0.04
Ge	1.15	1.10	1.53	1.41	1.38

Tableau 5 : Composition chimique en éléments traces du sol MO 122 du LH.

Echant.	MO 122 0-20	MO 122 50-60	MO 122 120-140	MO 122 180
As	13.59	20.42	27.95	24.26
Ba	466.16	451.78	424.24	653.00
Be	2.69	2.52	2.86	4.98
Bi	0.76	0.98	1.24	0.45
Cd	0.08	0.09	0.07	0.10
Ce	99.35	106.41	154.47	57.04
Co	12.30	11.20	13.42	7.09
Cr	86.63	97.63	112.61	82.79
Cu	30.01	37.92	53.71	103.29
Dy	3.87	2.94	4.15	2.00
Er	2.12	1.88	2.39	1.30
Eu	0.96	0.81	1.07	0.61
Ga	23.12	26.44	29.62	28.6
Gd	4.37	3.43	4.49	2.18
Hf	6.74	5.76	5.79	3.64
Ho	0.78	0.68	0.85	0.44
La	33.48	27.98	40.54	41.56
Lu	0.378	0.33	0.38	0.31
Mo	0.95	1.15	1.63	1.53
Nb	15.36	15.93	17.67	13.67
Nd	26.98	22.28	31.64	20.67
Ni	47.32	53.19	65.68	27.79
Pb	26.53	33.49	40.16	29.21
Pr	7.54	6.23	8.85	7.34
Rb	153.21	156.32	163.48	246.19
Sb	1.08	1.34	1.67	0.96
Sm	5.43	3.94	6.03	2.98
Sn	5.41	6.26	6.32	8.32
Sr	32.10	31.10	36.63	52.46
Ta	1.58	1.62	1.73	1.53
Tb	0.64	0.51	0.69	0.35
Th	20.98	24.91	26.42	18.51
Tm	0.34	0.28	0.35	0.22
U	5.24	6.31	7.20	6.11
V	93.23	109.07	128.49	94.77
W	3.55	3.84	3.98	4.36
Y	23.54	18.78	25.18	13.08
Yb	2.35	2.06	2.40	1.77
Zn	53.63	55.98	66.75	108.77
Zr	259.52	232.22	229.70	151.21
In	0.08	0.17	0.07	0.10
Ge	1.31	1.53	1.73	1.45

Tableau 6 : Composition chimique en éléments traces du sol MO 219 développé sur des alluvions quaternaires.

Echant.	MO 219 0-10	MO 219 20-30	MO 219 50-60	MO 219 80-90
As	12.11	8.80	9.91	7.63
Ba	635.27	688.35	436.39	441.23
Be	4.11	3.28	2.82	3.12
Bi	0.62	0.71	0.52	0.46
Cd	0.18	0.20	0.21	0.20
Ce	94.36	117.87	90.18	85.19
Co	13.08	13.29	9.10	8.90
Cr	68.92	81.12	50.21	51.56
Cu	36.01	27.74	22.24	19.58
Dy	5.35	6.43	4.76	4.19
Er	2.95	3.28	2.49	2.20
Eu	1.33	1.70	1.23	1.09
Ga	20.23	21.92	14.18	14.11
Gd	5.94	7.23	5.53	5.01
Hf	6.83	9.07	7.55	7.00
Ho	1.06	1.22	0.88	0.81
La	46.12	56.73	42.71	39.48
Lu	0.45	0.52	0.38	0.34
Mo	1.02	0.80	0.67	0.57
Nb	14.06	17.48	11.97	11.50
Nd	39.35	46.34	35.55	34.16
Ni	31.32	34.01	24.86	23.38
Pb	22.83	25.34	20.86	18.43
Pr	10.15	12.61	9.29	8.92
Rb	167.25	185.77	129.36	129.54
Sb	1.98	1.42	1.59	1.03
Sm	7.10	8.54	6.42	6.28
Sn	4.42	5.10	3.28	3.31
Sr	79.15	92.73	105.81	126.39
Ta	1.41	1.72	1.22	1.22
Tb	0.95	1.07	0.82	0.76
Th	18.40	22.17	15.77	14.79
Tm	0.41	0.49	0.36	0.34
U	4.05	4.87	3.47	3.07
V	94.64	89.86	61.74	59.47
W	3.48	3.84	3.05	2.97
Y	32.96	36.96	28.74	25.01
Yb	2.82	3.31	2.41	2.22
Zn	71.70	70.62	56.17	52.74
Zr	254.45	329.43	288.12	260.20
In	0.06	0.06	0.05	0.03
Ge	1.53	1.51	1.31	1.19

Tableau 7 : Composition chimique en éléments traces des sols MO 601 et MO 602 développés sur des schistes noirs du LH.

Echant.	MO 601 0-10	MO 601 10-20	MO 601 20-50	MO 601 bedrock	MO 602 0-20	MO 602 20-40	MO 602 40-60	MO 602 60-80
As	12.76	13.98	15.83	233.61	23.71	27.29	24.54	26.19
Ba	504.70	504.43	515.22	627.30	445.89	565.80	549.28	598.09
Be	2.53	3.21	3.24	5.11	3.20	3.56	2.98	3.31
Bi	0.44	0.53	0.45	0.39	0.59	0.73	0.71	0.72
Cd	0.14	0.26	0.18	0.21	0.20	0.52	0.39	0.20
Ce	103.98	103.80	105.43	116.31	85.08	95.71	94.64	97.63
Co	14.57	14.45	15.97	11.07	15.38	20.34	18.97	18.37
Cr	72.49	74.92	77.94	129.14	61.27	69.70	69.22	72.48
Cu	27.72	28.77	30.27	20.28	28.50	39.92	38.57	28.98
Dy	6.03	5.95	5.90	4.03	4.85	6.27	6.17	6.59
Er	3.49	3.51	3.40	2.61	2.69	3.20	3.28	3.51
Eu	1.59	1.42	1.54	1.20	1.09	1.48	1.48	1.57
Ga	20.68	20.72	21.55	37.14	19.90	21.04	21.18	21.65
Gd	6.66	6.35	6.61	4.88	5.38	7.14	6.85	6.96
Hf	6.06	6.29	6.35	4.85	5.08	5.31	5.89	5.95
Ho	1.20	1.27	1.18	0.83	1.01	1.24	1.23	1.34
La	53.02	52.19	53.78	61.89	41.98	47.68	48.46	48.24
Lu	0.56	0.53	0.52	0.43	0.45	0.45	0.44	0.55
Mo	1.32	1.39	1.09	1.11	2.22	2.01	1.81	1.65
Nb	13.72	13.35	13.94	14.83	10.33	12.16	12.18	13.11
Nd	42.51	42.20	43.66	43.22	34.07	39.17	38.61	40.64
Ni	33.51	34.28	33.31	18.56	35.80	58.30	51.69	46.94
Pb	27.15	29.89	23.14	23.48	35.40	42.81	42.09	32.07
Pr	11.64	11.79	11.83	12.64	9.19	10.73	10.43	10.90
Rb	236.60	228.99	237.88	431.08	224.15	237.88	242.33	252.88
Sb	2.41	2.01	2.46	2.23	2.65	3.10	2.85	3.47
Sm	8.11	7.99	8.21	6.92	6.68	8.36	7.91	8.10
Sn	3.47	3.15	3.39	5.07	3.46	4.01	4.29	4.54
Sr	31.71	31.43	20.15	19.40	43.04	42.37	41.36	33.97
Ta	1.33	1.38	1.42	1.48	1.16	1.39	1.37	1.44
Tb	1.04	0.97	0.96	0.74	0.83	1.15	1.07	1.04
Th	24.11	27.93	27.54	29.83	22.40	23.26	22.81	22.84
Tm	0.47	0.50	0.53	0.41	0.42	0.49	0.50	0.55
U	4.24	4.69	4.59	5.37	6.13	6.96	6.89	7.05
V	77.17	78.22	86.35	141.42	84.37	94.84	91.72	96.79
W	3.11	3.27	3.24	4.07	4.07	5.12	4.93	5.23
Y	38.16	38.38	37.56	25.61	30.22	36.94	36.31	39.12
Yb	3.22	3.64	3.44	2.82	2.94	3.28	3.14	3.33
Zn	100.64	98.65	110.38	108.40	92.23	112.71	110.04	95.64
Zr	245.39	243.43	239.02	190.44	189.59	198.37	211.68	216.72
In	0.09	0.09	0.11	0.11	0.09	0.10	0.08	0.08
Ge	1.95	1.90	2.07	3.10	1.86	2.02	2.20	2.58

Tableau 8 : Composition chimique en éléments majeurs des sédiments de rivière échantillonnés au Bangladesh.

Echant.	Meghna	BGP 5	BGP 6	BGP 11	BGP 14	BGP 34	BGP 36	BGP 82
Rivière	Upper Meghna	Ganges	Ganges	Tista	Brahmaputra	Meghna	Upper Meghna	Brahmapoutre
Localité	Japanese Bridge	Rajshahi	Rajshahi	Kaunia	Chilmari	Chor Fasson	Bhairab Bazar	Chilmari
SiO_2	75.24	66.04	78.45	73.72	73.02	63.23	74.65	76.51
Al_2O_3	10.12	11.91	7.86	12.22	11.88	15.47	10.34	10.30
Fe_2O_3	4.31	4.71	2.46	4.39	4.19	6.39	4.44	3.88
MnO	0.07	0.05	0.05	0.05	0.05	0.09	0.07	0.09
MgO	1.31	2.12	0.91	1.56	1.72	2.59	1.35	1.23
CaO	2.90	4.37	3.28	1.44	1.99	1.75	2.50	2.36
Na_2O	1.85	1.33	1.48	1.77	1.82	1.48	1.71	2.02
K_2O	1.87	2.64	1.83	2.55	2.50	3.02	1.90	1.99
TiO_2	0.74	0.65	0.57	0.58	0.53	0.81	0.75	0.57
P_2O_5	0.17	0.13	0.12	0.16	0.10	0.14	0.18	0.10
Pf	1.14	5.80	2.57	1.32	2.00	4.50	1.78	0.83
Total	99.72	99.75	99.57	99.76	99.80	99.47	99.67	99.89

Tableau 9 : Composition chimique en éléments majeurs des sédiments de rivière de bassins monolithologiques.

Echant.	Rivière	Localité	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MnO	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	Pf	Total
MO 81	Khota		72.00	11.84	9.20	0.40	1.79	1.22	1.25	0.88	0.42	0.23	0.55	99.78
MO 50	Chepe	Vallon	72.56	11.79	6.04	0.27	1.01	1.18	1.51	1.73	0.42	0.11	1.55	98.17
MO 29	Dordi	Taryda	65.33	12.10	4.26	0.09	1.94	7.57	1.91	2.46	0.52	0.13	3.52	99.83
KN 83	Tadi		75.02	11.85	3.76	0.07	1.05	1.39	1.57	2.50	0.45	0.08	1.26	98.99
MO 112	Isul k.	Bhuri G.	79.89	6.36	3.88	0.08	1.74	2.41	0.68	1.40	0.50	0.11	2.80	99.85
MO 109	Mati k.	Bhuri G.	85.18	7.19	2.34	0.02	1.04	traces	1.07	1.60	0.27	0.17	1.00	99.88
MO 102	Marsel k.	Darondi	81.82	8.82	2.98	traces	1.25	0.02	0.82	1.96	0.33	0.08	1.80	99.89
MO 207	Andi k.	Kali G.	78.27	6.04	2.66	0.06	2.46	2.49	0.16	2.19	0.39	0.13	5.15	100.00
NAG 4	Bijaipur	Kundahar	83.44	7.32	2.73	0.02	1.03	0.71	1.02	1.41	0.36	0.08	1.72	99.84
NAG 33	Kali G.	Koketani	51.15	8.12	3.21	0.02	1.29	17.96	0.96	1.79	0.43	0.13	14.67	99.73
NAG 29	Kali G.	Chairogaon	49.24	6.48	3.30	0.07	1.07	21.03	0.82	1.40	0.33	0.15	15.89	99.78
NAG 22	Marsyandi	source	43.33	15.41	5.60	0.04	2.10	13.07	0.51	3.72	0.80	0.16	14.95	99.69
NAG 20	Kali G.	Kagbeni	52.67	6.59	2.14	0.01	0.78	19.54	1.10	1.63	0.22	0.11	14.97	99.76
LO 100	Thini	amont Kali	44.76	10.10	3.94	0.03	1.95	19.24	0.72	2.16	0.53	0.14	16.14	99.70
LO 97	Narsing	Chhuksang	58.88	7.73	4.49	0.03	0.92	13.24	0.58	1.48	0.56	0.13	11.68	99.72
Nimu			69.28	15.47	2.54	0.03	1.02	2.99	3.86	3.13	0.35	0.11	1.11	99.89
Tsangpo			68.33	12.82	5.35	0.07	1.64	2.82	1.95	2.25	0.75	0.14	3.76	99.88

Tableau 10 : Composition chimique en éléments majeurs des sédiments de rivières himalayennes.

Echant.	Rivière	Localité	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MnO	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	Pf	Total
MO 5	Marsyandi	Phaligesangu	62.41	10.47	4.28	0.11	1.70	10.25	1.75	2.01	0.40	0.22	6.26	99.86
NAG 48	Narayani	Nayaran Ghat	67.22	8.83	3.42	0.05	2.13	7.61	1.34	2.10	0.46	0.13	6.13	99.42
NAG 46	Bheri	Dunai	46.41	7.93	5.38	0.07	2.55	18.14	0.66	1.62	0.50	0.16	16.31	99.73
NAG 44	Kali G.	Baglung	64.26	8.56	3.38	0.04	1.76	9.66	1.40	1.91	0.44	0.10	8.21	99.72
NAG 42	Kali G.	Tatopani	53.09	7.93	2.74	0.03	1.43	17.97	1.21	1.97	0.31	0.12	12.95	99.75
NAG 40	Ministi	Banskot	47.17	8.49	2.80	0.04	1.87	20.53	1.56	2.17	0.36	0.14	14.61	99.74
NAG 18	Rapti	Darbang	74.74	4.88	6.35	0.17	1.11	5.12	0.71	0.94	1.12	0.16	4.40	99.69
NAG 16	Sharda		80.34	8.35	4.45	0.05	1.01	0.33	0.52	1.85	0.54	0.05	2.25	99.74
NAG 13	Bheri	Sampujighat	72.51	6.85	3.07	0.04	2.21	5.64	0.84	1.73	0.39	0.08	6.41	99.77
NAG 6	Kali G.	Ramdi	62.22	7.60	4.39	0.08	2.43	11.06	1.18	1.65	0.55	0.16	8.41	99.73
LO 305	Ttrisuli		66.93	13.24	5.20	0.05	2.44	2.45	1.36	2.98	0.60	0.17	4.28	99.70
MO 217	Narayani	Narayani	68.48	8.44	3.25	0.05	1.77	7.80	1.48	1.89	0.48	0.23	5.97	99.84
MO 139	Trisuli	Trisuli	73.42	11.84	4.24	0.06	1.37	2.04	1.83	2.67	0.57	0.16	1.58	99.78
MO 132	Bhuri G.	Bhuri G.	80.77	7.84	2.12	0.02	1.21	2.17	1.62	1.57	0.21	0.09	2.32	99.94
MO 90	Darondi	Muchchok	75.03	9.89	6.34	0.16	1.43	1.93	1.80	1.17	0.87	0.15	1.06	99.83

Tableau 11 : Composition chimique en éléments traces des sédiments de rivière échantillonnés au Bangladesh.

Sample	Meghna	BGP 5	BGP 6	BGP 11	BGP 14	BGP 34	BGP 36	BGP 82
As	1.96	6.01	2.33	1.76	1.89	7.50	3.70	1.85
Ba	312.19	460.10	314.22	405.10	386.91	532.43	364.16	335.69
Be	1.75	2.26	2.15	2.31	2.24	2.89	2.02	1.96
Bi	0.17	0.42	0.17	0.89	0.29	0.60	0.16	0.25
Cd	0.20	0.12	0.29	0.10	0.07	0.05	0.17	0.21
Ce	140.72	84.16	158.49	122.66	81.81	97.72	136.48	112.82
Co	6.89	10.88	4.09	8.44	8.49	17.18	9.31	7.11
Cr	77.02	62.92	36.59	39.79	52.75	110.65	92.42	79.95
Cu	5.14	22.91	4.89	12.89	14.40	38.95	10.51	5.52
Dy	7.95	5.23	8.31	7.20	4.69	6.63	8.49	5.54
Er	4.46	2.77	4.41	3.89	2.57	3.47	4.54	3.00
Eu	1.72	1.23	1.67	1.52	1.23	1.65	1.70	1.32
Ga	12.96	17.12	10.05	16.91	15.27	24.57	15.50	13.10
Gd	9.80	6.01	10.46	8.20	5.70	6.98	9.45	6.59
Hf	14.98	8.38	21.02	10.78	7.08	6.70	17.23	6.20
Ho	1.73	1.16	1.74	1.48	0.98	1.41	1.75	1.28
La	69.53	41.66	77.73	61.30	40.64	47.88	68.18	56.77
Lu	0.71	0.46	0.70	0.59	0.39	0.52	0.72	0.51
Mo	0.28	0.30	0.10	0.15	0.12	0.32	0.14	0.19
Nb	12.30	13.34	11.09	12.36	9.79	16.98	14.71	10.00
Nd	59.71	35.83	67.80	53.49	35.99	42.28	57.20	41.32
Ni	18.75	27.67	9.94	16.44	22.39	55.85	26.29	20.67
Pb	17.32	20.19	18.01	20.50	20.33	26.07	21.39	19.75
Pr	15.63	9.31	18.29	14.28	9.36	11.22	15.47	12.50
Rb	72.90	139.68	86.94	132.24	113.99	181.22	97.81	83.98
Sb	0.22	0.62	0.44	0.26	0.27	0.55	0.19	0.43
Sm	10.67	7.00	12.92	10.11	6.62	8.65	11.30	7.80
Sn	3.04	4.88	4.56	5.01	3.09	5.10	4.66	2.58
Sr	175.68	120.13	113.37	92.39	148.40	139.43	185.30	184.90
Ta	1.46	1.49	1.79	1.62	1.16	1.64	1.55	1.17
Tb	1.40	0.94	1.58	1.29	0.85	1.12	1.48	0.87
Th	31.28	17.27	35.43	26.95	17.87	19.50	30.01	20.22
Tm	0.61	0.44	0.73	0.59	0.37	0.54	0.76	0.43
U	5.27	3.77	6.89	5.89	3.56	3.28	5.07	2.97
V	71.87	73.32	37.15	54.48	61.85	121.48	89.00	72.18
W	2.33	2.76	2.63	2.79	1.76	2.90	1.77	1.71
Y	42.64	30.89	46.92	41.23	26.43	36.86	47.68	29.52
Yb	4.27	3.00	4.78	3.85	2.57	3.54	4.65	3.17
Zn	35.16	55.48	24.17	44.43	43.72	87.22	56.01	40.98
Zr	547.13	298.41	689.37	356.44	243.83	248.56	623.94	226.38
In	0.04	0.03	0.02	0.04	0.04	0.06	0.03	0.19
Ge	1.32	1.55	1.38	1.50	1.35	1.76	1.55	1.32

Tableau 12 : Composition chimique en éléments traces des sédiments de rivière de bassins monolithologiques de la HHC (en grisé) et du LH.

Echant	MO 29	MO 81	MO 50	KN 83	NAG 4	MO 102	MO 109	MO 112	MO 207
As	3.30	1.78	8.89	0.94	3.49	2.76	2.52	4.22	4.64
Ba	462.38	194.88	404.25	498.26	222.62	330.48	278.65	506.43	232.40
Be	2.39	1.26	1.99	2.75	1.95	1.87	1.50	1.70	1.31
Bi	0.17	0.26	0.22	0.26	0.33	0.52	0.44	0.40	0.27
Cd	0.26	0.36	0.30	0.27	0.20	0.13	0.10	0.14	0.06
Ce	86.88	69.29	118.46	70.39	74.15	63.27	52.70	116.27	51.49
Co	9.25	9.74	7.97	7.23	5.16	6.86	5.69	6.74	6.09
Cr	50.45	62.48	40.99	58.04	25.90	40.51	28.71	29.01	31.96
Cu	13.05	13.64	13.01	13.67	10.11	12.80	12.95	14.80	14.76
Dy	6.29	13.04	9.89	4.48	3.28	3.22	2.44	4.93	2.19
Er	3.41	11.22	6.67	2.56	1.69	1.52	1.38	2.76	1.26
Eu	1.25	1.07	1.51	1.25	0.81	0.73	0.57	1.31	0.68
Ga	15.98	9.72	15.61	14.86	10.18	11.87	10.16	8.86	8.79
Gd	6.37	5.70	8.58	5.18	4.02	3.69	2.89	5.70	2.61
Hf	5.00	5.56	5.66	5.80	4.77	4.85	3.73	5.84	4.97
Ho	1.22	3.54	2.17	1.15	0.66	0.56	0.49	0.99	0.44
La	42.08	35.29	59.05	34.73	35.94	32.26	26.15	58.46	26.76
Lu	0.60	2.07	1.20	0.48	0.28	0.25	0.26	0.42	0.19
Mo	0.63	0.40	0.94	0.29	0.16	0.21	0.20	0.25	0.32
Nb	11.07	12.04	8.31	9.42	6.56	8.20	5.85	6.73	6.36
Nd	35.76	28.47	49.87	27.52	29.06	25.37	20.57	45.16	19.75
Ni	19.63	14.81	15.48	17.54	12.76	19.36	14.09	11.76	12.70
Pb	24.99	15.59	23.97	23.57	11.07	18.22	18.67	13.46	8.49
Pr	9.79	7.79	13.50	7.99	7.66	6.96	5.63	12.20	5.79
Rb	112.52	52.38	82.62	123.01	75.18	100.80	86.38	70.86	81.19
Sb	0.28	0.27	0.57	0.23	0.34	0.25	0.40	0.95	0.99
Sm	7.48	5.48	9.31	6.09	5.27	4.55	3.68	7.84	3.16
Sn	4.09	2.24	3.48	3.12	2.66	4.47	3.99	2.47	2.38
Sr	239.23	55.43	90.10	138.98	39.62	50.86	54.66	40.03	16.52
Ta	1.07	1.53	0.82	0.94	1.01	1.04	0.72	0.83	0.66
Tb	1.03	1.41	1.38	0.63	0.58	0.51	0.44	0.83	0.40
Th	19.40	16.84	22.74	13.67	13.39	13.30	10.34	16.55	8.38
Tm	0.58	2.15	1.19	0.36	0.23	0.24	0.25	0.44	0.19
U	3.32	2.97	3.19	2.88	3.19	2.99	2.39	3.10	2.06
V	62.38	57.00	51.89	60.41	24.93	32.72	23.92	39.23	42.27
W	2.49	2.14	3.22	1.97	1.22	2.62	1.56	1.84	1.32
Y	38.72	99.74	63.38	26.03	17.30	16.21	15.35	30.44	13.82
Yb	4.12	13.93	7.99	2.82	1.70	1.64	1.64	3.08	1.33
Zn	64.36	41.14	60.43	50.55	29.78	38.53	37.71	38.78	27.42
Zr	200.25	204.32	208.38	204.01	180.17	175.50	144.59	240.02	195.93
In	0.19	0.72	0.33	0.06	0.02	6.44	19.22	17.37	0.07
Ge	1.98	4.27	3.49	1.68	1.09	1.28	1.41	2.02	1.28

Tableau 13 : Composition chimique en éléments traces des sédiments de rivière des TSS.

Echant.	NAG 20	NAG 22	NAG 29	NAG 33	LO 97	LO 100	Tsangpo	Nimu
As	6.65	18.64	22.92	12.05	12.47	7.36	17.26	4.22
Ba	206.45	577.87	259.46	281.02	305.22	352.79	334.20	521.23
Be	4.73	2.70	9.33	3.09	1.93	2.35	2.11	2.00
Bi	0.27	0.23	0.42	0.31	0.20	0.24	0.32	0.29
Cd	0.18	0.59	0.39	0.28	0.38	0.34	0.16	0.10
Ce	37.03	118.12	67.87	73.45	92.13	79.98	93.54	40.21
Co	3.49	14.14	7.28	5.95	8.16	8.91	12.09	6.20
Cr	27.22	93.57	31.61	42.04	54.76	59.58	104.75	14.55
Cu	6.78	14.53	12.72	12.01	13.08	16.41	28.89	34.86
Dy	2.22	5.13	3.88	3.88	5.34	4.42	4.96	1.54
Er	1.15	2.62	2.10	2.04	2.73	2.51	2.69	0.73
Eu	0.65	1.47	0.73	1.05	1.26	1.11	1.39	0.69
Ga	8.80	20.68	8.87	10.99	11.54	13.50	15.64	17.74
Gd	2.80	5.82	4.62	4.80	5.59	4.92	5.88	1.93
Hf	3.04	9.24	12.78	7.55	13.15	9.26	9.43	2.39
Ho	0.45	1.06	0.81	0.84	1.13	1.03	1.01	0.27
La	17.62	59.34	32.20	36.53	42.47	39.32	46.27	20.92
Lu	0.16	0.43	0.42	0.34	0.45	0.43	0.40	0.11
Mo	0.39	1.41	0.50	0.50	0.72	0.56	0.55	0.68
Nb	5.68	15.77	12.11	9.98	13.08	12.60	12.58	4.91
Nd	16.44	46.20	27.72	31.05	40.37	32.54	37.85	15.17
Ni	16.07	32.11	23.77	24.18	27.57	30.64	51.04	7.31
Pb	19.24	189.55	30.42	20.42	18.65	23.89	22.93	36.71
Pr	4.07	12.82	7.20	7.88	10.09	8.69	10.59	4.36
Rb	88.96	136.12	69.51	89.33	70.20	97.32	107.29	132.64
Sb	0.35	6.22	0.56	0.51	0.95	0.50	1.50	0.62
Sm	3.28	7.72	5.52	5.79	7.51	5.87	7.46	2.80
Sn	2.50	2.55	191.57	5.85	2.10	2.39	2.19	0.96
Sr	306.06	209.54	305.12	296.91	235.66	364.02	195.72	571.28
Ta	0.59	1.40	6.71	1.35	1.09	1.11	1.25	0.47
Tb	0.39	0.90	0.71	0.69	0.92	0.77	0.90	0.25
Th	6.64	24.33	14.97	13.54	16.96	15.94	21.92	13.09
Tm	0.18	0.40	0.34	0.32	0.42	0.39	0.42	0.12
U	1.52	3.20	6.33	2.45	2.78	2.89	3.40	2.12
V	29.37	116.32	32.71	44.66	60.33	58.26	86.13	42.03
W	0.94	1.38	12.17	1.78	1.37	1.41	3.92	1.99
Y	12.92	25.78	24.33	21.11	29.45	25.00	28.37	7.96
Yb	1.14	2.81	2.48	2.15	2.85	2.81	2.85	0.78
Zn	31.20	151.86	40.89	41.29	56.00	52.28	67.20	44.74
Zr	112.91	343.40	494.41	278.28	523.65	338.72	365.18	82.14
In	0.02	0.05	0.00	0.04	0.04	0.04	0.07	0.06
Ge	1.02	0.91	1.26	1.06	1.11	1.04	1.32	0.79

Tableau 14 : Composition chimique en éléments traces de sédiments de rivières himalayennes.

Sample	LO 305	NAG 6	NAG 13	NAG 16	NAG 18	NAG 40	NAG 42	NAG 44	NAG 46
As	8.41	24.51	4.13	6.25	9.00	11.53	11.75	7.39	18.77
Ba	575.19	324.47	334.90	472.64	482.28	422.40	299.78	289.32	435.93
Be	3.47	2.63	1.30	1.24	0.71	2.89	6.05	2.49	0.98
Bi	0.68	0.99	0.22	0.18	0.48	1.43	0.67	0.35	0.22
Cd	0.20	0.35	0.05	0.07	0.24	0.31	0.22	0.05	0.08
Ce	108.15	107.90	55.42	51.00	123.91	63.52	57.36	56.65	93.87
Co	11.68	10.47	5.45	8.29	10.22	6.81	5.67	7.66	8.75
Cr	65.79	39.39	26.99	44.66	30.17	38.00	34.45	35.47	43.20
Cu	25.44	24.14	15.18	17.44	17.56	14.79	10.48	13.26	14.62
Dy	5.40	6.54	3.34	3.78	7.20	3.79	3.69	3.52	5.35
Er	2.57	3.52	1.82	2.21	4.23	2.06	1.99	1.92	3.03
Eu	1.37	1.51	0.88	0.89	1.83	0.98	0.85	0.93	1.37
Ga	18.52	10.63	8.79	11.88	6.54	11.85	11.12	11.36	10.63
Gd	6.28	6.85	3.53	3.39	7.55	4.35	4.09	3.83	6.22
Hf	6.73	7.81	5.45	6.09	23.47	4.71	4.47	4.04	5.72
Ho	1.14	1.43	0.72	0.85	1.62	0.87	0.80	0.76	1.19
La	54.85	52.50	27.57	26.38	61.75	31.10	28.14	27.93	45.46
Lu	0.40	0.61	0.30	0.39	0.84	0.33	0.34	0.27	0.48
Mo	0.75	0.66	0.32	0.41	0.52	0.30	7.06	0.33	0.35
Nb	17.14	11.43	8.04	12.05	16.44	8.94	7.56	7.65	9.80
Nd	44.21	44.27	22.77	22.00	52.75	26.22	24.01	24.29	39.09
Ni	30.70	30.37	14.83	20.05	16.66	22.69	19.99	17.53	24.85
Pb	23.79	18.49	10.88	14.63	12.38	19.31	20.12	16.02	21.00
Pr	11.54	11.52	6.15	5.90	14.07	6.74	6.28	6.29	10.09
Rb	154.69	76.40	74.30	87.40	42.29	108.34	103.79	90.09	66.41
Sb	0.85	1.04	0.89	0.65	1.05	0.64	0.58	0.55	1.20
Sm	7.63	8.64	4.41	4.15	9.89	4.97	4.65	4.85	7.80
Sn	4.68	4.83	1.81	1.91	1.89	3.20	3.93	2.62	2.48
Sr	97.32	191.80	97.61	36.70	73.38	403.29	322.28	199.72	291.09
Ta	1.53	1.92	0.90	1.17	2.14	0.92	0.81	0.88	0.94
Tb	0.94	1.15	0.54	0.59	1.23	0.66	0.61	0.58	0.94
Th	19.63	19.10	10.79	10.76	19.20	11.19	10.57	10.72	14.93
Tm	0.43	0.49	0.27	0.33	0.72	0.33	0.32	0.31	0.49
U	4.54	6.66	2.45	2.08	4.57	2.71	2.93	3.33	2.50
V	74.64	49.06	41.16	53.07	41.29	39.15	37.02	50.05	54.57
W	3.01	8.31	1.25	1.34	2.14	2.25	1.26	1.45	5.70
Y	29.02	36.69	18.94	21.92	42.21	23.49	21.59	19.46	31.36
Yb	2.75	3.77	1.96	2.41	5.09	2.08	2.15	1.79	3.23
Zn	71.17	37.74	31.34	50.05	30.12	36.29	41.29	37.32	39.65
Zr	262.58	306.78	208.95	235.68	799.60	186.19	166.30	152.83	229.76
In	0.05	0.03	0.02	0.03	0.03	0.03	0.03	0.02	0.03
Ge	1.77	1.58	1.31	1.46	1.56	0.96	1.23	1.25	1.29

Tableau 14 : Composition chimique en éléments traces de sédiments de rivières himalayennes (suite).

Echant.	MO 5	MO 90	MO 132	MO 139	MO 217	NAG 48
As	26.10	21.76	2.58	2.42	7.77	8.65
Ba	347.58	265.08	280.78	509.74	330.59	382.36
Be	5.86	1.60	2.38	2.52	2.36	2.79
Bi	0.85	0.53	0.29	0.46	0.62	0.50
Cd	0.16	0.30	0.15	0.17	0.29	0.20
Ce	75.02	180.87	49.98	97.29	108.10	90.16
Co	9.28	12.16	4.94	9.60	7.50	6.93
Cr	42.95	48.10	24.62	52.62	38.77	42.13
Cu	12.02	27.01	10.09	18.22	16.73	15.89
Dy	6.07	11.64	2.45	5.69	6.17	4.80
Er	3.73	6.52	1.33	2.97	3.14	2.54
Eu	1.05	2.39	0.64	1.35	1.32	1.15
Ga	13.53	10.62	9.99	17.29	12.17	12.74
Gd	5.49	12.45	2.81	6.13	6.96	5.99
Hf	4.11	10.46	2.75	6.37	9.45	6.62
Ho	1.30	2.31	0.46	1.09	1.19	0.99
La	37.08	91.36	25.63	47.96	54.23	45.64
Lu	0.62	1.08	0.21	0.44	0.49	0.37
Mo	0.65	0.54	0.21	0.34	0.47	0.82
Nb	9.80	19.98	4.95	11.81	11.12	9.86
Nd	31.89	78.37	19.59	39.25	45.01	37.79
Ni	17.32	19.17	10.45	21.84	14.55	19.79
Pb	25.79	19.49	16.15	29.29	20.53	17.10
Pr	8.55	21.43	5.38	10.81	11.86	9.91
Rb	115.82	58.28	73.75	139.11	96.33	104.72
Sb	0.55	1.63	0.29	0.52	0.71	0.71
Sm	6.35	15.73	3.42	7.47	8.30	6.96
Sn	7.66	3.26	2.39	5.66	5.21	4.05
Sr	197.06	74.49	95.04	121.13	194.62	166.73
Ta	1.16	2.46	0.56	1.30	1.35	1.28
Tb	0.99	1.94	0.40	0.93	1.03	0.85
Th	16.70	37.43	12.02	20.57	22.34	16.45
Tm	0.64	1.14	0.21	0.45	0.48	0.39
U	4.43	14.45	2.06	3.60	4.43	3.74
V	48.68	58.96	26.06	58.87	46.20	49.87
W	4.89	4.19	1.21	2.90	3.46	2.62
Y	40.20	63.77	14.20	32.92	37.41	27.22
Yb	4.37	7.27	1.35	2.96	3.50	2.54
Zn	55.01	50.03	33.36	62.70	47.22	40.64
Zr	163.02	361.74	110.72	248.97	359.64	260.70
In	0.22	31.61	11.66	7.02	9.00	0.03
Ge	2.30	2.54	1.24	1.89	1.57	1.50

Tableau 15 : Composition chimique en éléments majeurs des sédiments des carottages SO 93.

Echant. SO 93	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MnO	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	Pf	Total
27 KL 52-55	47.8	17.83	10.27	0.10	3.35	2.63	0.76	2.22	0.97	0.22	13.80	99.95
47 KL 728-732	61.86	14.61	6.23	0.09	2.60	3.81	1.49	3.20	0.74	0.21	5.46	100.30
86 KL 38-41	59.53	16.60	7.50	0.09	2.95	1.62	1.39	3.22	0.83	0.19	6.07	99.94
86 KL 817-820	54.83	19.39	8.79	0.12	3.38	1.07	1.09	3.66	0.96	0.20	6.46	99.95
96 KL 77-80	63.03	15.12	6.59	0.09	2.69	2.28	1.50	3.02	0.83	0.20	4.63	99.95
96 KL 1107-1111	52.89	19.40	8.77	0.12	3.33	1.49	0.98	3.56	0.91	0.22	8.28	99.95
118 KL 29-32	55.12	18.69	8.43	0.14	3.23	1.75	0.94	3.34	0.93	0.07	7.26	99.90
120 KL 348-349	51.07	19.71	8.73	0.12	3.39	2.30	0.76	3.69	0.89	0.12	8.27	99.05
120 KL 579-582	58.92	15.12	6.32	0.10	2.75	4.14	1.31	3.24	0.70	0.21	7.13	99.94
120 KL 787-789	58.69	15.84	7.11	0.11	3.04	3.41	1.24	3.17	0.76	0.09	6.69	100.15
120 KL 1114-1117	61.36	14.44	5.77	0.07	2.69	4.22	1.75	3.20	0.76	0.24	5.44	99.94
120 KL 1071-1072	62.29	15.04	6.45	0.10	2.21	1.99	1.22	2.62	0.84	0.17	7.01	99.94
126 KL 39-41	55.2	16.46	7.41	0.06	2.89	3.78	0.76	2.70	0.76	0.06	9.82	99.90
126 KL 178-180	55.14	16.84	7.58	0.08	2.89	3.70	0.89	2.83	0.83	0.09	9.47	100.34
126 KL 601-603	51.7	18.31	7.88	0.08	3.19	4.03	0.88	3.17	0.81	0.14	9.70	99.89
126 KL 801-803	51.91	17.78	8.37	0.07	3.28	3.92	0.74	2.88	0.78	0.07	10.10	99.90

Tableau 16 : Composition chimique en éléments traces des échantillons SO 93.

Echant. SO 93	27 KL 52-55	47 KL 728-732	86 KL 38-41	86 KL 817-820	96 KL 77-80	96 KL 1107-1111	118 KL 29-32
As	5.07	7.64	7.73	13.13	5.62	11.91	13.59
Ba	298.38	472.71	467.58	497.79	466.36	479.81	582.53
Be	1.90	2.60	2.43	3.16	2.34	2.94	3.60
Bi	0.34	0.57	0.68	1.06	0.53	1.18	1.53
Cd	0.46	0.08	0.06	0.07	0.23	0.10	.26
Ce	72.74	83.03	81.74	88.80	95.27	91.43	105.87
Co	25.86	15.50	20.40	23.90	16.92	22.41	27.33
Cr	166.56	109.83	124.71	147.69	108.45	132.39	160.65
Cs	4.54	6.61	7.74	9.68	6.23	9.75	19.68
Cu	85.57	25.54	36.97	55.20	30.64	58.44	66.03
Dy	3.96	5.12	5.23	5.46	5.63	5.39	6.71
Er	2.12	2.82	2.77	2.96	3.13	2.91	3.38
Eu	1.21	1.24	1.41	1.41	1.43	1.34	1.81
Ga	27.17	20.28	23.47	28.42	21.31	28.26	32.59
Gd	4.16	5.42	5.64	5.84	6.30	5.86	7.46
Hf	3.20	5.37	4.60	4.00	6.32	3.78	5.07
Ho	.74	1.03	1.09	1.14	1.19	1.18	1.31
La	33.26	40.90	40.09	42.16	46.01	44.42	51.66
Lu	0.32	0.41	0.48	0.53	0.53	0.53	0.57
Mo	0.62	1.91	0.39	0.53	0.32	0.56	0.54
Nb	12.41	13.58	14.53	16.68	14.80	16.56	19.04
Nd	27.95	33.41	33.30	36.25	37.51	37.03	44.00
Ni	92.46	44.84	64.96	77.95	50.34	72.30	93.65
Pbtotal	20.04	25.30	25.84	32.17	22.39	31.95	42.38
Pr	7.58	8.93	9.19	9.58	10.18	9.93	11.51
Rb	122.05	166.38	179.39	219.01	165.37	211.55	277.33
Sb	0.60	0.68	0.53	0.54	0.47	0.76	1.06
Sm	5.56	6.46	6.52	7.14	7.75	7.19	9.28
Sn	2.89	4.62	4.56	5.62	4.91	5.48	7.20
Sr	155.95	140.01	119.91	106.24	132.91	106.71	141.60
Ta	1.16	1.47	1.48	1.71	1.44	1.62	1.88
Tb	0.71	0.86	0.88	0.94	0.95	0.95	1.09
Th	16.18	18.62	19.59	22.40	19.87	22.35	26.51
Tm	0.34	0.45	0.49	0.54	0.50	0.47	0.52
U	2.29	3.19	3.00	3.37	3.42	3.66	4.44
V	157.04	92.72	115.76	142.66	103.75	139.69	165.96
W	1.43	2.86	2.86	3.85	2.91	3.67	4.57
Y	20.85	29.61	30.00	31.99	32.66	32.77	37.22
Yb	2.18	2.80	2.91	2.98	3.05	2.99	3.58
Zn	117.60	89.52	102.02	127.48	82.80	114.64	135.44
Zr	116.73	194.07	168.09	143.84	243.90	144.27	180.09
In	0.11	0.10	0.09	0.10	0.09	0.09	0.07
Ge	1.62	1.50	1.59	1.87	1.71	1.85	1.62

Tableau 16 : Composition chimique en éléments traces des échantillons SO 93.

Echant. SO 93	120 KL 348-349	120 KL 579-582	120 KL 787-789	120 KL 1114-1117	120KL 1071-1072	126 KL 39-41	126 KL 178-180	126 KL 601-603	126 KL 801-803
As	12.38	8.85	19.94	9.61	10.69	4.11	7.45	10.40	8.15
Ba	382.92	467.78	639.26	473.76	376.21	579.06	315.28	391.18	539.56
Be	2.64	2.23	3.93	2.41	1.73	2.53	2.55	2.62	2.76
Bi	1.15	0.74	1.23	0.55	0.39	0.76	0.47	0.54	0.79
Cd	0.06	0.51	0.17	0.10	0.31	0.61	0.19	0.31	0.60
Ce	69.48	78.81	99.74	100.94	77.79	78.21	68.41	76.44	87.30
Co	17.17	17.64	25.36	16.05	19.92	23.60	17.94	25.25	30.32
Cr	100.73	96.38	136.40	95.09	135.13	132.40	116.85	137.10	183.80
Cs	14.40	7.25	17.05	6.02	5.87	12.58	10.56	13.08	15.30
Cu	41.01	30.15	48.61	25.66	25.10	43.33	26.41	33.49	52.91
Dy	4.19	4.73	6.15	6.00	5.09	3.94	3.76	3.81	4.52
Er	2.23	2.55	3.41	3.33	2.72	2.35	2.16	2.40	2.62
Eu	1.07	1.27	1.68	1.42	1.28	1.24	1.04	1.12	1.29
Ga	20.90	21.25	28.00	20.41	19.38	22.95	19.36	24.21	29.34
Gd	4.76	4.91	6.82	6.44	5.29	4.79	4.72	4.69	5.00
Hf	2.47	4.53	5.19	6.60	5.50	4.21	3.59	3.19	3.60
Ho	0.82	0.97	1.26	1.19	1.03	0.84	0.77	0.82	0.89
La	34.76	37.05	49.09	49.15	36.64	37.21	33.27	35.56	41.25
Lu	0.30	0.43	0.51	0.59	0.47	0.36	0.32	0.33	0.37
Mo	0.71	0.58	0.84	0.74	0.40	0.18	0.39	0.40	0.39
Nb	11.81	13.13	17.51	14.86	13.56	12.18	11.39	12.08	13.41
Nd	26.68	31.89	40.17	42.23	31.94	30.44	26.27	28.80	32.39
Ni	55.64	50.96	72.90	40.22	77.18	108.38	75.34	95.49	137.82
Pbtotal	28.29	24.95	37.70	22.71	23.87	27.08	22.18	23.08	26.54
Pr	7.21	8.41	10.91	10.75	8.33	8.13	6.98	7.86	9.03
Rb	181.53	172.26	263.59	165.97	135.20	177.19	143.83	168.21	205.45
Sb	0.61	0.72	0.97	0.44	0.56	1.38	0.66	1.05	1.27
Sm	5.24	6.37	8.00	8.16	5.97	6.28	5.23	5.62	6.31
Sn	4.44	4.94	6.76	5.17	3.46	3.89	3.18	3.79	4.30
Sr	76.83	155.10	181.18	168.71	139.07	202.65	162.54	186.33	214.70
Ta	1.14	1.34	1.75	1.49	1.23	1.16	1.02	1.05	1.19
Tb	0.65	0.79	0.94	1.05	0.84	0.75	0.65	0.70	0.79
Th	16.20	16.49	22.40	20.70	15.58	16.55	13.93	14.63	17.01
Tm	0.31	0.36	0.50	0.50	0.42	0.36	0.33	0.38	0.43
U	2.65	2.81	4.35	3.46	2.80	4.82	3.03	3.35	4.33
V	105.64	98.43	141.84	92.70	115.68	138.25	119.60	151.70	185.62
W	2.74	2.82	3.99	2.82	2.65	2.56	2.20	2.32	2.84
Y	23.14	27.45	34.46	37.94	28.19	24.07	21.31	24.06	26.82
Yb	2.20	2.46	3.28	3.15	2.79	2.49	2.16	2.28	2.71
Zn	89.06	85.29	112.86	79.44	90.94	124.17	85.21	110.71	150.16
Zr	94.90	158.24	195.79	259.16	195.37	155.29	137.51	131.58	154.07
In	0.05	0.12	0.08	0.14	0.08	0.06	0.09	0.11	0.06
Ge	0.97	1.76	1.29	1.52	1.63	1.27	0.98	1.15	1.68

INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE
DE LORRAINE

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur CHABAUX François, Professeur, Ecole & Observatoire des Sciences de la Terre Strasbourg,

Monsieur BIRCK Jean-Louis, Directeur de Recherche, Institut de Physique du Globe Paris.

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Mademoiselle PIERSON-WICKMANN Anne-Catherine

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

"Le cycle de l'osmium et du rhénium pendant l'érosion himalayenne".

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : **"GEOSCIENCES"**

Fait à Vandoeuvre le, **20 juin 2000**
Le Président de l'I.N.P.L.,
J. HARDY

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 5 4 5 0 1
VANDŒUVRE CEDEX

TEL. 33/03.83.59.59.59
FAX. 33/03.83.59.59.59

Le cycle de l'osmium et du rhénium pendant l'érosion himalayenne

Cette étude a permis de déterminer la composition isotopique d'Os des trois principales formations himalayennes (TSS, HHC et LH) à partir de roches sources, ainsi que celle de sédiments de rivières qui représentent le produit d'érosion de la chaîne. Les formations du Haut Himalaya ont un rapport $^{187}Os/^{188}Os$ comparable à celui de la croûte continentale moyenne. Par contre, le LH se distingue par des rapports radiogéniques rencontrés dans deux lithologies distinctes : les schistes noirs et les marbres impurs du LH. Un mélange de trois pôles (silicates du Haut Himalaya + schistes noirs du LH + carbonates impurs du LH) permet d'expliquer les signatures des sédiments de rivières à la sortie de la chaîne ou dans le Gange. Les sédiments du Brahmapoutre montrent un rapport moins radiogénique que ceux du Gange, expliqué d'une part par la présence d'affleurement d'ophiolites dans le bassin versant du Brahmapoutre et d'autre part par l'absence de carbonates résiduels. L'origine des carbonates radiogéniques dans le LH est à relier au métamorphisme himalayen qui a permis la mobilisation d'Os et de Re à partir des schistes noirs radiogéniques du LH. L'altération à basse température étudiée à partir de sols a montré que les compositions isotopiques et les concentrations d'Os et de Re ne varient pas avec la profondeur. Cependant une perte importante d'Os et de Re a probablement lieu dans les premiers stades de l'altération, lors du passage de la roche saine au saprolite.

Les sédiments récents du Cône du Bengale montrent que l'érosion de la chaîne himalayenne est la source majeure des sédiments, surtout dans le cône actif. Cependant, dans le reste de la Baie du Bengale, cette source himalayenne peut être masquée par des sources secondaires, comme l'érosion de la chaîne indo-birmane ou l'érosion du Sri Lanka.

Il n'y a aucune preuve qu'une perte significative d'Os lors du transport ou après le dépôt dans le Cône se produise. Ceci implique que la contribution de l'érosion himalayenne au budget de l'Os marin est limitée à la phase dissoute, et donc insuffisante pour expliquer l'augmentation du rapport $^{187}Os/^{188}Os$ marin durant les 16 derniers Ma.

Cycle of Os and Re during the Himalayan erosion

This study allowed determination of the Os isotopic compositions of the three major Himalayan formations (TSS, HHC, LH), based on both source rocks and river sediments, which represent the erosional products of Himalayan erosion. The High Himalayan formations (TSS+HHC) have $^{187}Os/^{188}Os$ ratios (0.9 to 1.6) similar to that of average continental crust. In contrast, the LH includes very radiogenic Os isotopic ratios, found in black shales and some carbonates. River sediments are mixtures of three components: High Himalayan silicates, LH black shales and LH carbonates. Sediments from the Brahmaputra are less radiogenic than those from the Ganga, due to either the addition of an ophiolitic fraction or the absence of detrital carbonates in the sediments. The origin of the radiogenic Os isotopic compositions in LH carbonates is related to Himalayan metamorphism which mobilized Re and radiogenic Os from black shales and redistributed it in carbonates. Alteration at low temperature was studied in soil profiles. The concentrations of Re and Os, as well as the Os isotopic ratios, do not vary with depth. Nevertheless, an important loss of Re and Os occurs during the earlier stages of alteration, during the passage from source rock to saprolith.

Sediments from the Bengal Fan show that Himalayan erosion is the major source of detritic material, especially in the active fan. In the rest of the Bay of Bengal, the Himalayan source may be masked by secondary sources, such as the erosion of the Indo-Burman range or the Sri Lanka. There is no evidence for significant loss of Os during sediment transport or after deposition in the Fan. This implies that the contribution of Himalayan erosion to seawater is limited to that carried in dissolved form, which is not nearly sufficient to explain the increase of the $^{187}Os/^{188}Os$ seawater ratio during the past 16 Ma.