



HAL
open science

**Géochimie isotopique des gaz rares dans les roches
sédimentaires et les eaux souterraines de l'est du bassin
parisien : contribution aux transferts massiques
intrabassinaux**

Sarah Dewonck

► **To cite this version:**

Sarah Dewonck. Géochimie isotopique des gaz rares dans les roches sédimentaires et les eaux souterraines de l'est du bassin parisien : contribution aux transferts massiques intrabassinaux. Chimie. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2000. Français. NNT : 2000INPL021N . tel-01750406

HAL Id: tel-01750406

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01750406>

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.



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>

DOT NPL 021 N

**GEOCHIMIE ISOTOPIQUE DES GAZ RARES
 DANS LES ROCHES SEDIMENTAIRES ET LES EAUX
 SOUTERRAINES DE L'EST DU BASSIN PARISIEN
 CONTRIBUTION AUX TRANSFERTS MASSIQUES INTRABASSINAUX**

Sarah DEWONCK

THÈSE

PRÉSENTÉE AU

CENTRE DE RECHERCHES PÉTROGRAPHIQUES ET GÉOCHIMIQUES

DE NANCY POUR L'OBTENTION DU TITRE DE

DOCTEUR DE L' INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

SPÉCIALITÉ GÉOCHIMIE

SOUTENUE PUBLIQUEMENT LE 24 FÉVRIER 2000 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN :

Président : Christian FRANCE-LANORD

Rapporteurs : Norbert CLAUER

Directeur :

Examinateurs :

Invités :

Jean-Michel MATHAY

Jean-François ARANYOSSY

Yves BARTHELEMY

Igor TOLSTIKHIN

Directeur de Recherche, CRPG - Nancy

Directeur de Recherche, ULP Strasbourg

Professeur, Paris XI - Orsay

Professeur, ENSG - Nancy

Ingénieur, ANDRA - Châtenay Malabry

Ingénieur, ANTEA - Orléans

Ingénieur conseil, Washington

Ingénieur, ANTEA - Orléans

Professeur, Kola Institute Apatity (Russie)



D 136 019703 8

136019 7038

00INPL 021 N

(M) 2000 DEWONCK, S -

**GEOCHIMIE ISOTOPIQUE DES GAZ RARES DANS
LES ROCHES SEDIMENTAIRES ET LES EAUX
SOUTERRAINES DE L'EST DU BASSIN PARISIEN**

CONTRIBUTION AUX TRANSFERTS MASSIQUES INTRABASSINAUX

SARAH DEWONCK

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

**THESE PRESENTEE AU
CENTRE DE RECHERCHES PETROGRAPHIQUES ET GEOCHIMIQUES
DE NANCY POUR L'OBTENTION DU TITRE DE
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
SPECIALITE GEOCHIMIE**

SOUTENUE PUBLIQUEMENT LE 24 FEVRIER 2000

DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN :

| | | |
|------------------------------------|---|--|
| <u>Rapporteurs :</u> | Norbert CLAUER Philippe SARDA | Dir. de Recherche, Université Strasbourg Professeur, Paris XI - Orsay |
| <u>Directeur de thèse :</u> | Bernard MARTY | Professeur, ENSG - Nancy |
| <u>Examineurs :</u> | Eric FILLION Christian FRANCE-LANORD Jean-Michel MATRAY | Ingénieur, ANDRA - Châtenay Malabry Directeur de Recherche, CRPG - Nancy Ingénieur, ANTEA - Orléans |
| <u>Invités :</u> | Jean-François ARANYOSSY Yves BARTHELEMY Igor TOLSTIKHIN | Ingénieur conseil, Washington Ingénieur, ANTEA - Orléans Professeur, Kola Institute - Apatity (Russie) |

A mes Parents,

Remerciements

A l'aube de déposer ce mémoire, force est de constater que les premières heures d'angoisse passées en tête à tête avec mon sujet de thèse me semblent bien lointaines tant l'équipe qui s'est formée autour de cette étude au fil des 3 années écoulées, m'a témoigné de son soutien. C'est la raison pour laquelle je voudrais exprimer ma plus vive gratitude à toutes les personnes qui ont participé, de près ou de loin, à cette aventure.

Tout d'abord, je voudrais remercier Bernard MARTY, qui m'a fait confiance en me proposant un thème de recherche en interaction avec les problèmes environnementaux actuels et en adéquation avec la voie professionnelle que je souhaite suivre. Je lui suis également reconnaissante de m'avoir fait découvrir la géochimie isotopique des gaz rares et plus généralement le monde scientifique. Qu'il soit aussi remercié pour son soutien dans les moments importants et ses remarques généreuses et pertinentes lors de la lecture de ce mémoire.

Je tiens à remercier Jean-François ARANYOSSY, et à travers lui l'ANDRA, sans lesquels ces travaux n'auraient pu voir le jour. La confiance indéfectible, la liberté absolue et le soutien financier qu'ils m'ont accordés tout au long de ce projet m'ont permis de travailler dans une ambiance des plus favorables et de tester des hypothèses ou de vérifier des résultats parfois onéreux.

Je suis très honorée que Jean-François ARANYOSSY, Yves BARTHELEMY, Norbert CLAUER, Eric FILLION, Christian FRANCE-LANORD, Jean-Michel MATRAY, Philippe SARDA et Igor TOLSTIKHIN aient accepté de juger ce travail aux côtés de Bernard MARTY. Mon souhait serait que les membres du Jury prennent autant de plaisir à lire ce mémoire que j'en ai eu à le réaliser.

Mes remerciements s'adressent aussi à Eric FILLION pour son dynamisme et son engagement lors de la mise en œuvre de la collaboration avec ANTEA, à Yves BARTHELEMY pour m'avoir chaleureusement accueillie, en plein hiver, au sein de son équipe de modélisateurs à ANTEA-STO (Orléans), à Jacques WENDLING dont la contribution a été essentielle dans le développement du modèle « gaz rares » et qui, avec patience et enthousiasme, m'a familiarisé au logiciel MARTHE et à Jean-Michel MATRAY, pour sa disponibilité et ses suggestions.

L'étude des traces de fission n'aurait pu être réalisée sans le concours de l'Université de Munich et l'implication personnelle de Lutz HECHT. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

J'ai beaucoup apprécié l'intérêt porté par Igor TOLSTIKHIN à cette étude et je le remercie pour les discussions enrichissantes et les conseils fructueux qu'il m'a donnés à Nancy et à Apatity.

Je n'ai pas eu l'occasion de rencontrer très souvent Daniele PINTI au cours de ces 3 années, mais sa thèse et ses articles m'ont été d'une aide précieuse tout au long de mon apprentissage des gaz rares.

Que soit également souligné le rôle déterminant du CRPG dans cette étude. J'ai bénéficié d'un cadre de travail... idéal, je l'avoue volontiers, grâce à John LUDDEN, qui met à la disposition des étudiants des moyens analytiques et techniques de premier plan, et grâce au dévouement de tout le personnel du centre. Ainsi, je remercie Christian FRANCE-LANORD et Pierre COGET pour m'avoir enseigné l'analyse des isotopes stables, le laboratoire de chimie et le SARM pour la rapidité de leur service, André MULOT pour la fabrication de pièces sur mesure pour la nouvelle ligne d'extraction-purification des gaz rares, Robert LEHMANN pour la confection de lames minces ou épaisses, Chantal, Christelle, Corinne, Isabelle et Valérie pour leur efficacité dans le traitement des papiers administratifs, l'imprimerie pour la reproduction, toujours en urgence, de rapports et autre thèse, et le service général qui nous facilite le quotidien.

Un immense merci à toute l'équipe gaz rares du CRPG, qui s'est investie sans compter et toujours avec bonne humeur dans cette étude, et plus particulièrement à :

- Laurent ZIMMERMAN qui m'a initiée à la spectrométrie de masse et aux techniques de l'ultravide.
- Gregory SAUDER pour la construction et le développement de la nouvelle ligne d'extraction-purification de gaz rares, pour son assistance lors de l'analyse des gaz rares lourds, pour ses talents de programmation lors de l'étude des paléotempératures de recharge des eaux, et pour son dévouement même avec un pied plâtré !
- Pascal ROBERT qui veille sur le bon fonctionnement des spectromètres de masse, pallie aux caprices de l'électronique et me sauve des céramiques qui ont la fâcheuse tendance à devenir conductrices à haute température !
- Raphaël PIK pour m'avoir fait partager ses connaissances sur l'aquifère de l'Albien, pour son aide musculaire lors de prélèvements de roche, et pour sa bonne humeur contagieuse !
- Nicolas DAUPHAS pour mon perfectionnement en calculs statistiques.

Enfin, je voudrais saluer mes collègues de bureau qui ont enduré mes joies et mes peines durant cette triade et les remercier pour leur convivialité. Merci aussi à Nathalie pour les interminables collages de dernière minute et nos excursions improvisées, à Judith, pour les bons moments passés au LESH et surtout ceux à venir, à Jérôme pour nos joutes verbales, à Tix pour avoir écouté mes questions multiples et variées, et enfin à Catherine pour, entre autres, son poisson d'Avril hawaïen.

TABLE DES MATIERES

PREMIÈRE PARTIE : LES OUTILS ET LES OBJETS

CHAPITRE I : GÉOCHIMIE DES GAZ RARES

| | | |
|-------------|---|-----------|
| I. | ORIGINES DES GAZ RARES : LES DIFFÉRENTES COMPOSANTES | 21 |
| I.1. | LA COMPOSANTE PRIMITIVE..... | 21 |
| I.2. | LA COMPOSANTE NUCLÉAIRE..... | 21 |
| I.2.1. | <i>La composante radiogénique.....</i> | <i>21</i> |
| I.2.2. | <i>La composante nucléogénique.....</i> | <i>22</i> |
| I.2.3. | <i>La composante cosmogénique.....</i> | <i>24</i> |
| I.3. | LA COMPOSANTE TRITIOGÉNIQUE..... | 25 |
| II. | LES SOURCES DE GAZ RARES : LES DIFFÉRENTS RESERVOIRS..... | 26 |
| II.1. | LE RÉSERVOIR ATMOSPHÉRIQUE..... | 26 |
| II.2. | LE RÉSERVOIR CRUSTAL..... | 29 |
| II.3. | LE RÉSERVOIR MANTELLIQUE..... | 29 |
| II.4. | BILAN DES RAPPORTS ISOTOPIQUES DES DIFFÉRENTS RÉSERVOIRS..... | 31 |
| III. | LES GAZ RARES EN MILIEU SÉDIMENTAIRE | 31 |
| III.1. | ORIGINE DES GAZ RARES DANS LES EAUX SOUTERRAINES | 31 |
| III.2. | PROCESSUS DE TRANSFERT DES GAZ RARES..... | 32 |
| IV. | LES GAZ RARES : DES MARQUEURS CONSERVATIFS | 34 |
| IV.1. | INDICATEURS DE L'ORIGINE DES FLUIDES..... | 34 |
| IV.2. | INDICATEURS DU TEMPS DE RÉSIDENCE DES FLUIDES..... | 35 |
| IV.3. | INDICATEURS DE L'ÉPOQUE DE RECHARGE DES EAUX | 38 |

CHAPITRE II : LE BASSIN PARISIEN

| | | |
|------------|---|-----------|
| V. | CADRES GÉOLOGIQUE ET HYDROGÉOLOGIQUE | 43 |
| V.1. | MORPHOLOGIE, STRATIGRAPHIE ET TECTONIQUE..... | 43 |
| V.2. | LE RÉSEAU HYDROGÉOLOGIQUE..... | 49 |
| V.2.1. | <i>L'Albien</i> | <i>49</i> |
| V.2.2. | <i>Le Tithonien.....</i> | <i>49</i> |
| V.2.3. | <i>L'Oxfordien</i> | <i>49</i> |
| V.2.4. | <i>Le Dogger.....</i> | <i>50</i> |
| V.2.5. | <i>Le Trias.....</i> | <i>50</i> |
| VI. | CADRES HYDRODYNAMIQUE ET GÉOCHIMIQUE..... | 51 |
| VI.1. | AQUIFÈRE DE L'ALBIEN..... | 51 |
| VI.2. | AQUIFÈRE DU DOGGER..... | 53 |
| VI.3. | AQUIFÈRE DU TRIAS..... | 56 |

CHAPITRE III : PRINCIPE ANALYTIQUE

| | | |
|--------------|--|----|
| VII. | ÉCHANTILLONNAGE | 59 |
| VII.1. | LOCALISATION DES SITES..... | 59 |
| VII.2. | LES PRÉLÈVEMENTS..... | 62 |
| VII.2.1. | <i>Les prélèvements d'eaux souterraines</i> | 62 |
| VII.2.2. | <i>Les prélèvements de roches</i> | 62 |
| VIII. | EXTRACTION DES GAZ RARES DES ÉCHANTILLONS | 64 |
| IX. | PURIFICATION DE LA PHASE GAZEUSE EXTRAITE | 64 |
| IX.1. | PRÉSENTATION DE LA RAMPE DE PURIFICATION..... | 64 |
| IX.2. | SÉPARATION DES GAZ RARES PAR CRYOGÉNIE..... | 65 |
| IX.3. | PROCÉDURE TYPE..... | 66 |
| X. | SPECTROMÈTRE DE MASSE | 68 |
| X.1. | PRINCIPE..... | 68 |
| X.2. | LES CONTRIBUTIONS PARASITES..... | 70 |
| X.3. | CALIBRATION..... | 71 |
| XI. | PRÉSENTATION DES RÉSULTATS | 73 |
| XI.1. | CORRECTION DES DONNÉES..... | 73 |
| XI.2. | PRÉCISION SUR LES ANALYSES..... | 74 |
| XI.3. | REPRODUCTIBILITÉ..... | 74 |
| XI.4. | CORRECTION DU RAPPORT ISOTOPIQUE DE L'HÉLIUM..... | 75 |
| XI.5. | CALCUL DE LA FRACTION RADIOGÉNIQUE..... | 76 |

DEUXIÈME PARTIE : LES ROCHES SÉDIMENTAIRES DE L'EST DU BASSIN PARISIEN

CHAPITRE IV : LA PRODUCTION RADIOGÉNIQUE IN SITU DANS LES ROCHES RÉSERVOIRS

| | | |
|--------------|-------------------------|----|
| XII. | RÉSULTATS | 79 |
| XIII. | DISCUSSION | 81 |
| XIII.1. | ARGON..... | 81 |
| XIII.2. | HÉLIUM..... | 82 |

CHAPITRE V : CAPACITÉ DE MIGRATION DE He DANS LES ROCHES SÉDIMENTAIRES

| | | |
|-------------|--|----|
| XIV. | MOBILITÉ DE L'HÉLIUM À TEMPÉRATURE AMBIANTE | 87 |
| XV. | MOBILITÉ DE L'HÉLIUM EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE | 88 |
| XV.1. | MÉTHODOLOGIE..... | 88 |
| XV.2. | QUANTITÉS D'HÉLIUM LIBÉRÉ A CHAQUE PALIER DE TEMPÉRATURE..... | 88 |
| XV.3. | COEFFICIENTS DE DIFFUSION..... | 96 |
| XV.4. | EXPLOITATION DES RÉSULTATS À PARTIR DE DIAGRAMMES D'ARRHÉNIUS..... | 97 |

CHAPITRE VI : ORIGINE DE He DANS LES ROCHES SÉDIMENTAIRES

| | | |
|-------------|--|-----|
| XVI. | ANALOGIE ENTRE LE COMPORTEMENT DE He ET CELUI DE L'HYDROGÈNE DE L'EAU | 107 |
|-------------|--|-----|

| | |
|--|------------|
| XVII. ÉTUDE DE LA DISTRIBUTION DE L'URANIUM DANS LES ROCHES SÉDIMENTAIRES PAR TRACES DE FISSION | 108 |
| XVII.1. MÉTHODE ANALYTIQUE..... | 108 |
| XVII.2. L'URANIUM DANS LES GRÈS..... | 109 |
| XVII.3. L'URANIUM DANS LES CALCAIRES | 116 |
| XVII.4. L'URANIUM DANS LES ARGILITES..... | 122 |
| XVII.5. CONCLUSION | 122 |

CHAPITRE VII : CONCLUSIONS SUR LES CAPACITÉS DE MIGRATION DES RADIONUCLÉIDES DANS LES UNITÉS GÉOLOGIQUES DE L'EST DU BASSIN PARISIEN

TROISIÈME PARTIE : LES EAUX SOUTERRAINES DE L'EST DU BASSIN PARISIEN

CHAPITRE VIII : RÉSULTATS GÉOCHIMIQUES

| | |
|--|------------|
| XVIII. LES ISOTOPES STABLES DE L'OXYGÈNE ET DE L'HYDROGÈNE..... | 131 |
| XVIII.1. TITHONIEN..... | 132 |
| XVIII.2. DOGGER..... | 134 |
| XVIII.3. TRIAS..... | 135 |
| XIX. AGES ¹⁴C | 136 |
| XIX.1. ACTIVITÉ EN ¹⁴ C..... | 136 |
| XIX.2. DÉTERMINATION DES ÂGES RADIOMÉTRIQUES | 138 |
| XIX.3. RELATION ENTRE LES RAPPORTS DES ISOTOPES STABLES ET L'ÂGE DES EAUX..... | 139 |
| XIX.4. ESTIMATION DES VITESSES D'ÉCOULEMENT..... | 141 |
| XX. LES GAZ RARES | 142 |
| XX.1. DANS LE THITONIEN..... | 142 |
| XX.2. DANS LE DOGGER..... | 146 |
| XX.3. DANS LE TRIAS..... | 148 |

CHAPITRE IX : DISCUSSION

| | |
|--|------------|
| XXI. L'HÉLIUM RADIOGÉNIQUE DANS LES AQUIFÈRES : ORIGINE ET FLUX CRUSTAUX..... | 153 |
| XXI.1. DANS LE TRIAS..... | 153 |
| XXI.2. DANS LE DOGGER..... | 155 |
| XXII. DÉCOUPLAGE ENTRE L'HÉLIUM ET L'ARGON RADIOGÉNIQUES..... | 155 |
| XXIII. ORIGINE DE L'HÉLIUM-3 DANS LE TRIAS..... | 157 |
| XXIV. ISOLATION TRIAS/DOGGER | 161 |
| XXV. LES PALÉOTEMPÉRATURES DE RECHARGE DES EAUX | 162 |

CHAPITRE X : CONCLUSIONS SUR L'HYDRODYNAMIQUE DE L'EST DU BASSIN PARISIEN

**QUATRIÈME PARTIE : MODÉLISATION DES TRANSFERTS DE GAZ RARES DANS L'EST DU
BASSIN PARISIEN - IMPLICATIONS HYDRODYNAMIQUES**

CHAPITRE XI : CARACTÉRISTIQUES DU MODÈLE HYDRODYNAMIQUE UTILISÉ

| | | |
|--------------|---|------------|
| XXVI. | PRÉSENTATION DU MODÈLE..... | 170 |
| XXVI.1. | LE LOGICIEL MARTHE..... | 170 |
| XXVI.2. | PRINCIPE DU CODE DE CALCUL..... | 170 |
| XXVI.3. | DESCRIPTION SPATIALE DU MODÈLE..... | 171 |
| XXVI.4. | SIMULATION HYDRODYNAMIQUE DE RÉFÉRENCE..... | 172 |
| XXVI.5. | MODIFICATIONS SPATIALES DU MODÈLE REGIONAL..... | 173 |
| XXVI.6. | MODIFICATIONS HYDROGÉOLOGIQUES..... | 176 |
| XXVI.7. | LES CONDITIONS AUX LIMITES ET CONDITIONS INITIALES..... | 177 |

CHAPITRE XII : MODÉLISATION DE LA RÉPARTITION DES ISOTOPES DE GAZ RARES - ANALOGIES
AVEC LE MODÈLE NUMÉRIQUE DE BASE POUR LES IMPLICATIONS HYDRODYNAMIQUES

| | | |
|----------------|---|------------|
| XXVII. | LES RÉSULTATS DE MODÉLISATION..... | 179 |
| XXVIII. | ANALOGIES ENTRE LE MODÈLE ET LA GÉOCHIMIE DE L'HÉLIUM-4..... | 180 |
| XXVIII.1. | ALBIEN..... | 180 |
| XXVIII.2. | DOGGER..... | 184 |
| XXVIII.3. | TRIAS..... | 188 |
| XXIX. | ANALOGIES ENTRE LE MODÈLE ET LA GÉOCHIMIE DE L'HÉLIUM-3..... | 190 |
| XXIX.1. | DANS LE TRIAS..... | 190 |
| XXIX.2. | DANS LE DOGGER..... | 193 |
| XXIX.3. | DANS L'ALBIEN..... | 193 |
| XXX. | VALIDITÉ DU MODÈLE..... | 193 |

CHAPITRE XIII : CONCLUSIONS SUR LA MODÉLISATION DES TRANSFERTS MASSIQUES DANS LES
FORMATIONS AQUIFÈRES ET SEMI-PERMÉABLES DE L'EST DU BASSIN PARISIEN

| | |
|---------------------------------|------------|
| CONCLUSION GÉNÉRALE..... | 205 |
| BIBLIOGRAPHIE..... | 207 |
| ANNEXES..... | 221 |

Abstract

A research laboratory is being constructed at Bure (Meuse – France) to determine the potential of this geological repository for the storage of radioactive waste. As part of this installation, ANDRA has initiated several studies in order to define the natural properties of the designated zone. The rare gas geochemistry of the fluids and sediments, the stable isotopes (δD , $\delta^{18}O$) and the ^{14}C activity of the groundwaters from the eastern part of the Paris Basin has been used to characterise mass transfers in these aquitard and aquifer layers.

In the sedimentary layers, the mobility of trace elements is extremely variable: while argon is quantitatively retained (conservative behaviour), helium is very mobile (more than 90 % of the radiogenic He is lost). Nevertheless, helium left in the rock (a few percent) is clearly less mobile and only extracted by step heating. This difference in behaviour can be explained by the presence of different diffusion sites, each one characterised by a specific diffusion coefficient and activation energy. These sites are constrained by the study of the hydrogen isotopic ratios of the water extracted during rock dehydration steps and by examining fission tracks produced during irradiation of the samples. Helium can be dissolved in trapped water (porosity or structural water) and associated with the solid phases either adsorbed on the mineral surface (surface and grain boundary diffusion) or in included minerals (solid diffusion).

The groundwaters of the Dogger aquifer consist of a mixture of meteoric waters and fluids from the basement. The Trias aquifer contains these two components and is enriched in fluids with a mantle signature injected by large convective transfers between the crust and the sedimentary layers. The residence time of Triassic waters is in the range 2 to 30 000 years involving average velocities of 2.5 m/year. And, they were as low as 1.2 m/year near the Vittel fault, which effectively restricted these Triassic flows. The waters from the Dogger aquifer are considerably older (about 1 Ma), and may flow more slowly (0.05 m/year). The transfer of trace elements between the Dogger and Trias are quantitatively limited, implying that Liassic shales effectively isolate these two formations.

The validity of the geochemical results was tested by comparison with an hydrodynamic model. This numerical approach yields results that agree well with the natural data.

This study combines different techniques, which corroborate most of the conclusions based upon rare gas geochemistry results and provides complementary information about the hydrodynamic and diffusive transfers in the Paris Basin.

Key Words : Helium, diffusion, modelling, fission tracks, hydrodynamic flows.



Introduction

Le 30 décembre 1991, une loi relative à la gestion des déchets envisage la possibilité de stocker des déchets radioactifs de vie longue (légalement, des déchets de type B et C) en couches géologiques profondes. L'ANDRA (Agence Nationale de gestion des Déchets Radioactifs) est chargée de mener à bien ce programme d'études. En 1996, trois sites sont alors proposés pour l'implantation de laboratoires souterrains d'expérimentation (le Gard, la Vienne et l'Est), le gouvernement a décidé en 1998 de n'en retenir qu'un seul : celui de l'Est. Toutefois, une autre zone cible, en environnement granitique, reste à définir.

Notre étude est focalisée sur le site de Bure, situé à la limite des départements de la Haute-Marne et de la Meuse. Le laboratoire de recherches sera construit au sein des argilites du Callovo-Oxfordien, qui semblent présenter de bonnes capacités de confinement de par leurs faibles perméabilités.

Une bonne connaissance des transferts massiques horizontaux et sub-verticaux dans les aquifères et les semi-perméables de l'Est du Bassin de Paris est indispensable pour apprécier l'impact potentiel des aménagements, et évaluer les circulations fluides à l'échelle régionale et locale. Le stockage de déchets radioactifs dans une formation de faible perméabilité, dans laquelle la température pourrait augmenter significativement, peut favoriser la production de gaz dans la zone de confinement. Ces gaz peuvent donc induire des modifications de la pression et de la température du médium hôte, et contribuer, non seulement à sa dégradation, mais aussi à la dispersion de radionucléides au-delà de la barrière géologique.

L'ANDRA a initié de nombreuses études visant à caractériser les propriétés minéralogiques, géophysiques, géomécaniques et géochimiques des roches et des fluides régionaux afin d'acquérir une meilleure connaissance des propriétés naturelles de la zone cible. Notre étude concerne la géochimie isotopique des gaz rares dans les fluides et les sédiments, et les isotopes stables de la molécule d'eau et du ^{14}C dans les eaux souterraines de l'Est du Bassin Parisien.

Les gaz rares (hélium, néon, argon, krypton et xénon), constituent un ensemble de traceurs isotopiques naturels particulièrement performants du fait de leur manque de réactivité vis à vis des espèces chimiques et de leur faible abondance. Leur signature isotopique permet d'identifier les réservoirs d'origine et des mélanges éventuels. Comme certains isotopes de gaz rares sont produits par la radioactivité naturelle et que leur temps de demi-vie est de l'ordre du milliard d'années, ils constituent des chronomètres potentiels à l'échelle des temps géologiques. L'ensemble de ces qualités font qu'ils sont impliqués dans divers domaines de recherches, aussi bien fondamentaux qu'appliqués :

En science de la Terre, ils dévoilent les secrets de la dynamique de notre planète en permettant de caractériser les différents réservoirs (lithosphère, manteau, noyau) et les transferts de matière qui ont provoqué cette différenciation. Il est alors possible de discuter de l'intensité et de la chronologie de ces événements. Les gaz rares apportent ainsi des renseignements sur la genèse de l'atmosphère et sur le dégazage de la Terre (Brown, 1952 ; Ozima and Kudo, 1972 ; Hamano and Ozima, 1978 ; Allègre et al., 1986 ; Tolstikhin and Marty, 1998).

Dans les études de fluides de sub-surface (Mazor and Bosch, 1987 ; Andrews, 1985a), ils permettent de caractériser les fluides intrabassinaux (eau, gaz, pétrole) : origine, temps de résidence, époque de recharge, vitesse d'écoulement, échanges avec les roches encaissantes, mécanismes de transfert, flux verticaux (perte ou gain)...

Cette thématique s'est fortement développée depuis plusieurs années, d'autant plus que les applications sont nombreuses :

- l'exploitation et la gestion rationnelle des aquifères pour leurs ressources en eau potable et/ou leur propriété géothermique (par exemple, le Dogger du Bassin Parisien : Marty et al., 1993) requiert une quantification des flux entrant et sortant, et une estimation des vitesses de circulation des fluides.
- les pétroliers cherchent à comprendre les circulations hydrodynamiques à travers les couches sédimentaires, car les mécanismes de migration des huiles, produites dans les roches mères sont directement liés à l'hydrodynamisme dans les bassins (Pinti, 1993; Ballentine and O'Nions, 1991 et 1994 ; Pinti and Marty, 1995 ; Hiyagon and Kennedy, 1992 ; Ballentine et al., 1996).
- le stockage souterrain de gaz s'effectuant dans des niveaux aquifères isolés par des couches semi-perméables, il est essentiel de bien contraindre les transferts massiques dans ces formations (Ballentine et al., 1991 ; Ballentine, 1991).
- Dans le cadre de stockage de déchets radioactifs à vie longue en couche géologique profonde, il est nécessaire de caractériser la migration des fluides à grande échelle, surtout dans le cas de bassins multi-aquifères, sur des périodes de temps en adéquation avec la durée de nocivité de ces déchets. La première étude appliquée est celle de Marine (1979), qui utilise l'hélium comme traceur des circulations des eaux profondes dans des roches métamorphiques de Caroline du Sud. Dans le Nord de la Suisse, la NAGRA (Swiss National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste) a initié une étude de gaz rares sur les roches sédimentaires et cristallines, et les minéraux constitutifs de ces roches, dans le but d'étudier les processus de transferts isotopiques entre roches et fluides (Tolstikhin et al., 1996).

L'objet de cette thèse s'inscrit dans ce dernier contexte et propose :

- i) un inventaire des différentes sources de gaz rares,
- ii) une discussion sur les mécanismes de migration des isotopes,
- iii) une quantification des flux injectés dans les aquifères,
- iv) un modèle de circulation 3D multi-couches des fluides dans la partie orientale du Bassin Parisien.

Le mémoire est organisé en 4 parties principales :

- La première partie résume brièvement les principes de base de la géochimie des gaz rares (les réservoirs, les processus de transfert, l'utilisation de ces traceurs) et décrit succinctement la structure, la stratigraphie, la tectonique et le réseau hydrogéologique de l'Est du Bassin de Paris. Le but de ces 2 chapitres est de mettre en évidence les éléments essentiels à l'interprétation de nos résultats analytiques et non de réécrire l'histoire de la géochimie des gaz rares ou celle du Bassin Parisien, disponibles dans les références bibliographiques mentionnées. La description des méthodes de prélèvements, de l'instrumentation et des protocoles de mesures pratiqués clôt cette partie introductive.

- La seconde partie s'est intéressée aux processus de transfert roche-eau des isotopes de gaz rares. La comparaison des quantités de ^4He et $^{40}\text{Ar}^{*1}$ mesurées dans des roches extraites de carottes sédimentaires avec celles calculées pour une production radioactive de U-Th et K depuis l'âge de sédimentation de ces mêmes roches montre que l'hélium radiogénique n'est pas retenu quantitativement dans les roches sédimentaires, contrairement à l'argon radiogénique. Ces observations nous ont conduit à étudier le comportement diffusif de l'hélium pour des roches de lithologie variée (argiles, grès et calcaire). En fonction de la température, différents profils de diffusion apparaissent, chacun caractérisé par une énergie d'activation propre. L'analyse des variations du rapport isotopique de l'hydrogène, élément léger comme He, lors de la déshydratation des échantillons de roche et l'étude des traces de fission laissées par l'uranium, élément parent de He, permettent de proposer des sites de diffusion distincts.

- La troisième partie de ce travail est focalisée sur les circulations hydrodynamiques dans les aquifères profonds de l'Est du Bassin Parisien. La signature géochimique des eaux souterraines du Trias, du Dogger et du Tithonien permet de dresser un premier bilan quant à l'origine, aux mélanges et aux temps de résidence des eaux souterraines concernées.

- La quatrième partie intègre les informations déduites de l'étude des roches et des eaux souterraines dans un modèle d'écoulement numérique, en trois dimensions, multi-couches, développé par ANTEA. Le couplage de nos données géochimiques avec un modèle hydrodynamique nous a permis de palier à l'hétérogénéité des forages disponibles, qui constituait un frein majeur à l'envergure de cette étude et rendait l'interprétation hydrodynamique à l'échelle régionale délicate. Le bon accord entre l'approche géochimique et numérique a permis d'affermir les conclusions tirées des parties II et III.

Un bilan général sur les transferts dans les aquifères et les aquitards de l'Est du Bassin de Paris parachève ce mémoire.

¹ L'étoile spécifique qu'il s'agit de l'argon-40 produit radiogéniquement par capture électronique de ^{40}K , en excès de l'argon 40 de l'atmosphère.

PREMIERE PARTIE :

PRESENTATION DES OUTILS

ET DES OBJETS

Cette première partie présente une vue synthétique de l'outil principalement utilisé au cours de cette étude, la géochimie des gaz rares (Ch I). Les différents processus de production et les différents réservoirs géochimiques sont décrits. Leurs modes de transferts dans un bassin sédimentaire, et plus particulièrement dans les aquifères de ce dernier sont également abordés. Les informations apportées par l'étude des gaz rares (traceurs d'origine, du temps de résidence et d'époques de recharge des fluides souterrains) sont ensuite documentés.

Les caractéristiques géologiques, hydrogéologiques et géochimiques de la zone étudiée, le Bassin Parisien et plus précisément sa partie orientale, constituent le thème du chapitre II.

La méthodologie adoptée pour l'échantillonnage, l'analyse par spectrométrie de masse et la présentation des données est développée dans le chapitre III.

Chapitre I : Géochimie des gaz rares

I. ORIGINES DES GAZ RARES : LES DIFFERENTES COMPOSANTES

I.1. LA COMPOSANTE PRIMITIVE

Lors de l'accrétion de la Terre, les gaz rares de la nébuleuse proto-solaire, produits par processus de nucléosynthèse (réactions nucléaires et radioactivité) ont été piégés dans la matière terrestre. Suite à l'évolution physique et chimique de la Terre (dégazage, formation de la croûte terrestre, différenciation du manteau), les gaz rares terrestres sont contenus dans trois grands réservoirs : l'atmosphère, la croûte et le manteau. Ces réservoirs sont en constante évolution car :

- i) ils interagissent entre eux ;
- ii) certains isotopes de gaz rares sont produits continuellement par la radioactivité ;
- iii) quelques isotopes s'échappent en continu de l'atmosphère vers l'espace.

I.2. LA COMPOSANTE NUCLEAIRE

Certains isotopes de gaz rares sont créés par réactions nucléaires naturelles. Ces réactions sont de trois types, chacun définissant une composante isotopique particulière :

- i) la production radiogénique ;
- ii) la production nucléogénique ;
- iii) la production cosmogénique.

I.2.1. La composante radiogénique

Cette composante regroupe les réactions de fission, de décroissance radioactive de type α et β , et de décroissance par capture électronique (Tableau 1).

Le taux de production total d'hélium-4, $P(^4\text{He})$, correspond à la somme des taux de production dus à la décroissance de ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th :

$$P(^4\text{He}) = 8 [^{238}\text{U} (e^{\lambda_1 t} - 1)] + 7 [^{235}\text{U} (e^{\lambda_2 t} - 1)] + 6 [^{232}\text{Th} (e^{\lambda_3 t} - 1)]$$

Les valeurs des constantes de désintégration λ_1 , λ_2 et λ_3 sont spécifiées dans le Tableau 1. En considérant un rapport de $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ de 137.8 (valeur actuelle), la production de ^4He exprimée en mol/g_{roche} . an est obtenue directement à partir des concentrations en U et Th (en ppm) de la roche (Zartman et al., 1961) :

$$P(^4\text{He}) = 5.39 \times 10^{-18} [\text{U}] + 1.28 \times 10^{-18} [\text{Th}]$$

De même, le taux de production de ^{40}Ar par capture d'un électron de la couche K du potassium-40 peut être déterminé par l'équation :

$$P(^{40}\text{Ar}) = \frac{\lambda_e}{\lambda} {}^{40}\text{K} (e^{\lambda t} - 1)$$

où λ ($= 5.543 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$) représente la somme des constantes de décroissance de ^{40}K en $^{40}\text{Ca}^*$ (λ_b) et en $^{40}\text{Ar}^*$ ($\lambda_e = 0.581 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$).

La production radiogénique d'argon-40, en mol/g_{roche} . an, peut être également calculée à partir de la concentration en K de la roche en ppm :

$$P(^{40}\text{Ar}) = 1.73 \times 10^{-22} [\text{K}]$$

| Nuclide père | Type de décroissance | Production (atome/atome) | Constante de décroissance (a^{-1}) | Taux product° mole / g . a | Nucléide fils | Demi-vie (Ga) |
|--------------------------------|----------------------|--------------------------|---|-----------------------------|-------------------|---------------|
| <i>Radio-nucléides</i> | | | | | | |
| ^{238}U | α | 8 | 1.55125×10^{-10} | 5.18×10^{-12} [U] | ^4He | 4.47 |
| ^{238}U | fission | 3.5×10^{-8} | 1.55125×10^{-10} | 2.28×10^{-20} [U] | ^{136}Xe | 4.47 |
| ^{235}U | α | 7 | 9.4895×10^{-10} | 2.11×10^{-13} [U] | ^4He | 0.704 |
| ^{232}Th | α | 6 | 4.9475×10^{-11} | 1.28×10^{-12} [Th] | ^4He | 14.01 |
| ^{40}K | capture électronique | 0.1024 | 5.5407×10^{-10} | 1.73×10^{-16} [K] | ^{40}Ar | 1.25 |
| <i>Radio-nucléides éteints</i> | | | | | | |
| ^{129}I | β | 1 | 4.63×10^{-8} | - | ^{129}Xe | 0.017 |
| ^{244}Pu | fission | 7.0×10^{-5} | 8.45×10^{-9} | - | ^{136}Xe | 0.082 |

Tableau 1 : Les principales réactions radiogéniques (Ozima et Podosek, 1983) et les constantes de décroissance associées (Steiger and Jäger, 1977).

1.2.2. La composante nucléogénique

Ce sont (Tableau 2):

- des réactions de type (α, n) : noyaux des éléments légers + particule α → création d'un neutron
- des réactions de type (n, α) : noyaux des éléments légers + neutron → création d'une particule α
- des réactions de type (n, p) : noyaux des éléments légers + neutron → création d'un proton

| Cible | Réaction | Produit | Taux de production (mole/g . a) | Ref. |
|--------------------|---------------------------------------|--------------------|--|---------|
| ${}^6\text{Li}$ | $(n,\alpha){}^3\text{H}(\beta^-)$ | ${}^3\text{He}$ | $(2.69 \times 10^{-4}[\text{U}] + 6.4 \times 10^{-5}[\text{Th}])[\text{Li}] \times 10^{-23}$ | [1],[2] |
| ${}^{17}\text{O}$ | (α,n) | ${}^{20}\text{Ne}$ | $(3.12 \times 10^{-4}[\text{U}] + 1.7 \times 10^{-4}[\text{Th}]) \times 10^{-22}$ | [3] |
| ${}^{18}\text{O}$ | (α,n) | ${}^{21}\text{Ne}$ | $(3.5 \times 10^{-4}[\text{U}] + 1.62 \times 10^{-3}[\text{Th}]) \times 10^{-21}$ | [3] |
| ${}^{24}\text{Mg}$ | (n,α) | ${}^{21}\text{Ne}$ | $(4.82 \times 10^{-5}[\text{U}] + 2.68 \times 10^{-5}[\text{Th}]) \times 10^{-22}$ | [3] |
| ${}^{25}\text{Mg}$ | (n,α) | ${}^{22}\text{Ne}$ | $(1.38 \times 10^{-4}[\text{U}] + [\text{Th}]) \times 10^{-23}$ | [3] |
| ${}^{19}\text{F}$ | $(n,\alpha){}^{22}\text{Na}(\beta^+)$ | ${}^{22}\text{Ne}$ | $1.92 \times 10^{-30}[\text{U}][\text{F}]$ | [3] |
| ${}^{35}\text{Cl}$ | (α,p) | ${}^{38}\text{Ar}$ | - | [4] |
| ${}^{36}\text{Cl}$ | (β) | ${}^{36}\text{Ar}$ | - | [5] |

Tableau 2 : Les principales réactions nucléogéniques ([1] Morrisson and Pine, 1955 ; [2] Andrews, 1985 ; [3] Ballentine, 1991 ; [4] Wetherill, 1954 ; [5] Fontes et al., 1991) et les taux de production associés (Steiger and Jäger, 1977) pour des concentrations élémentaires en ppm.

Prenons l'exemple de ${}^3\text{He}$: des neutrons thermalisés, provenant de la fission spontanée des isotopes d'uranium, réagissent avec le lithium-6 pour produire du tritium, qui se transforme en ${}^3\text{He}$ par décroissance de type β^- :



L'équation de la production en ${}^3\text{He}$ donnée dans le tableau 2 est une approximation tenant compte des compositions moyennes pour les roches terrestres. Dans le détail, il faut considérer le taux de production neutronique, et surtout l'absorption de neutrons par des cibles autres que ${}^6\text{Li}$. Ainsi, le taux de production de ${}^3\text{He}$ nucléogénique peut être estimé d'après (Andrews and Kay, 1982 ; Zito et al., 1980 ; Mamyryn and Tolstikhin, 1984) :

$$P({}^3\text{He}) = \phi \cdot \frac{\sigma_{\text{Li}} \cdot [\text{Li}]}{\sum_i^n \sigma_i \cdot [i]}$$

Li : concentration en Li (atome/g)

ϕ : flux de neutrons (n/cm²)

σ : section efficace de capture des neutrons (cm²)

Le rapport de production radiogénique ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ est déterminé par (Morrisson and Pine, 1955 ; Mamyryn and Tolstikhin, 1984) :

$$\frac{{}^3\text{He}}{{}^4\text{He}} = n_f \left\{ \frac{\sum_k q_k S_k N_k}{\sum_i S_i N_i} \right\} P_{i^0} \left[\frac{\sigma_{\text{Li}} N_{\text{Li}}}{\sum_i \sigma_i N_i} \right]$$

avec : n_f : neutrons produits par la fission ($n_f = 1.15$)
 q : rendement neutronique des réactions (α, n)
 S : capacité d'arrêter un élément
 N : nombre d'atomes par gramme de roche
 σ : section de capture des neutrons (cm^2)
 P_e : probabilité qu'un neutron atteigne la gamme d'énergie épithermale ($P_e = 0.8$)

Remarque : Par analogie, nous associerons au terme de production radiogénique, l'hélium dérivé de l'ensemble des réactions radiogéniques et nucléogéniques.

1.2.3. La composante cosmogénique

Cette composante résulte de la production d'isotopes tels que ^3He et de ^{21}Ne (Tableau 3 ; Marti and Craig, 1987) :

- par interaction d'un flux de rayonnement cosmique à haute énergie avec les noyaux des atomes stables (réactions de spallation). Les isotopes sont produits dans la haute atmosphère c'est-à-dire dans la stratosphère et dans la troposphère (Libby, 1946).
- par capture des muons dans les premiers mètres sous la surface (Lal and Peters, 1967 ; Takagi, 1970 ; Lal, 1987 ; Lal, 1988).
- par réactions photonucléaires (Takagi, 1970).

| Isotope | Demi-vie (a) | Cible |
|---|--------------|---------------------|
| ^3He | 12.3 | O, Mg, Si, Fe (N,O) |
| ^{20}Ne , ^{21}Ne , ^{22}Ne | Stable | Mg, Al, Si, Fe |
| ^{36}Ar , ^{38}Ar | Stable | Fe, Ca, K |
| ^{78}Kr , ^{80}Kr , ^{82}Kr , ^{83}Kr | Stable | Rb, Sr, Zr |
| $^{124-132}\text{Xe}$ | Stable | Te, Ba, La, Ce, I |

Tableau 3 : Les isotopes cosmogéniques et leurs cibles (Lal, 1988).

La production d'hélium-3 cosmogénique est dépendante de la capacité des neutrons et des muons à pénétrer dans la roche. En pratique, elle est importante uniquement dans les roches situées dans les premiers mètres et devient rapidement négligeable par rapport aux autres sources (Figure 1). Ce taux de production est de l'ordre de 10^2 atomes par gramme à la surface de la Terre pour des latitudes moyennes. Kurz (1986) et Marti and Craig (1987) expliquent les rapports isotopiques $^3\text{He}/^4\text{He}$ très élevés, jusqu'à 2600 Ra, mesurés dans des olivines de laves d'Hawaï, par la présence de ^3He cosmogénique, et non pas par la présence d'hélium primordial comme il est habituellement considéré pour de tels échantillons. De nombreux travaux sont venus corroborer ces observations et ^3He cosmogénique est devenu une méthode fiable de datation des surfaces morphologiques (Licciardi et al., 1999).

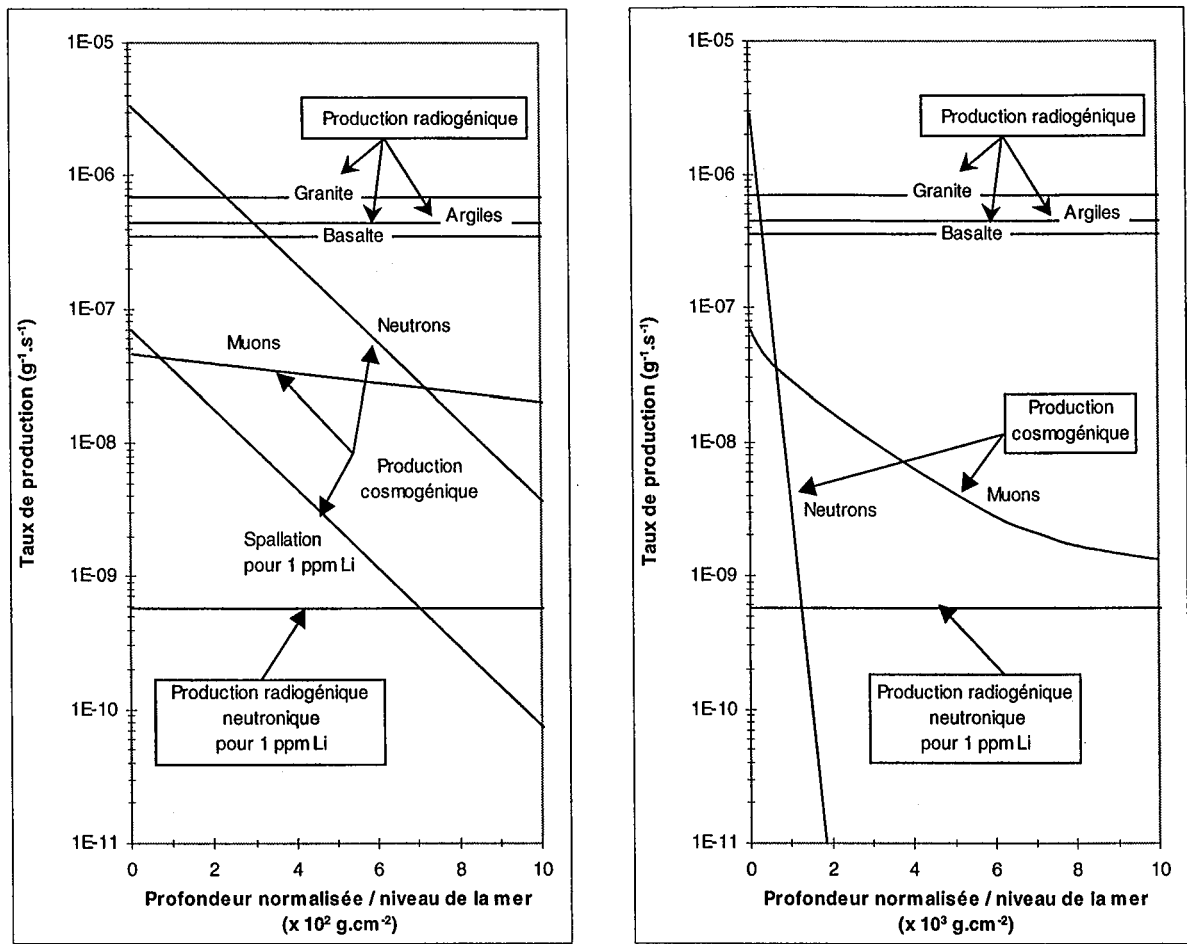


Figure 1 : Taux de production en ^3He en fonction de la profondeur des roches pour un médium donné d'après Lal (1987). Afin d'obtenir la profondeur de production, il est nécessaire de multiplier la profondeur normalisée par la densité du médium considéré.

Le taux de production cosmogénique dans un basalte à la surface de la Terre (Figure 1) est d'environ 2.3×10^{-6} atom/g · s. Cette valeur diminue exponentiellement avec la profondeur (Lal, 1987).

I.3. LA COMPOSANTE TRITIOGENIQUE

Dans l'hémisphère Nord, les essais nucléaires des années 1950 - 1960 ont entraîné une production importante de tritium. Ces tests ont engendré la formation de ^3He par décroissance de ^3H ($t_{1/2}=12.44$ ans). Le tritium incorporé dans le cycle de l'eau modifie le rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$, notamment des précipitations, des eaux de rivières et des eaux des aquifères superficiels (Tolstikhin and Kamenskiy, 1969 ; Schlosser et al., 1989).

II. LES SOURCES DE GAZ RARES : LES DIFFÉRENTS RESERVOIRS

II.1. LE RESERVOIR ATMOSPHERIQUE

L'air est composé d'un mélange de gaz rares (Figure 2 et Tableau 4), dont les caractéristiques reflètent des processus complexes tels que i) la capture de gaz primordiaux dans l'atmosphère primitive ii) le dégazage du manteau et de la croûte, iii) la production cosmogénique par spallation iv) et les pertes de gaz dans la haute atmosphère (Figure 3).

| | ^4He | ^3He | ^{40}Ar |
|--|---------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
| Flux total de dégazage ($\text{mol}/\text{m}_{\text{TT}}^2 \cdot \text{an}$) | $4.7 - 10 \times 10^{-7}$ | $7.9 - 9.1 \times 10^{-12}$ | $0.04 - 1.0 \times 10^{-6}$ |
| Temps de résidence (Ma) | 1.8 - 4.0 | 0.28 - 0.32 | conservatif |

Tableau 4 : Bilan des flux de dégazage des différentes sources d'hélium-4, d'hélium-3 et d'argon-40 arrivant dans l'atmosphère et temps de résidence associés (d'après Torgersen et al., 1989). M_{TT} désigne la surface terrestre totale.

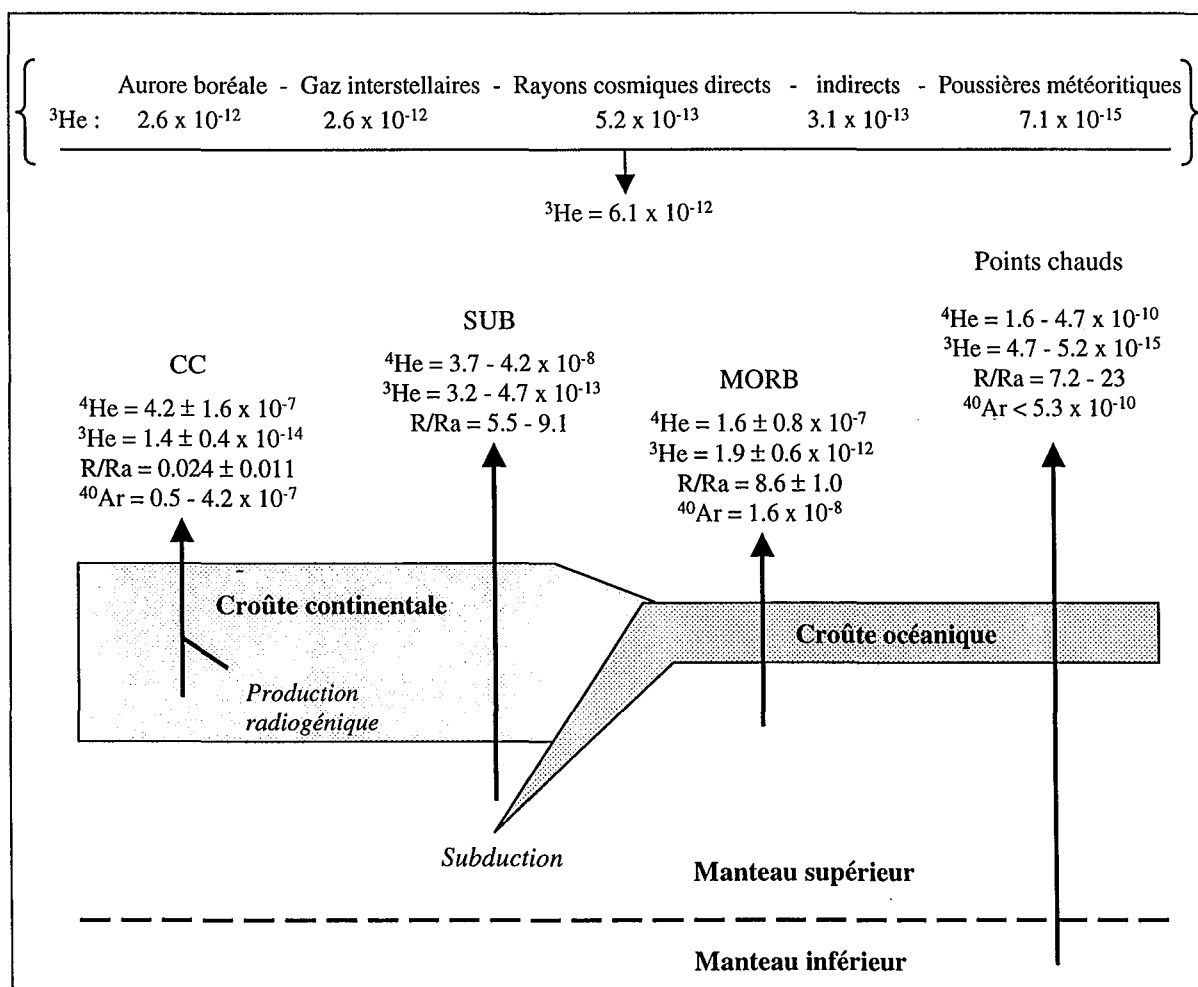


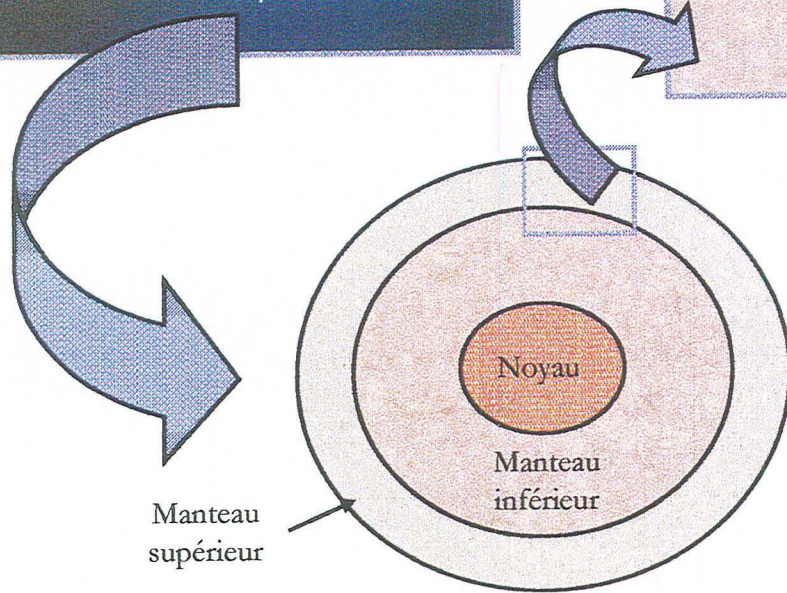
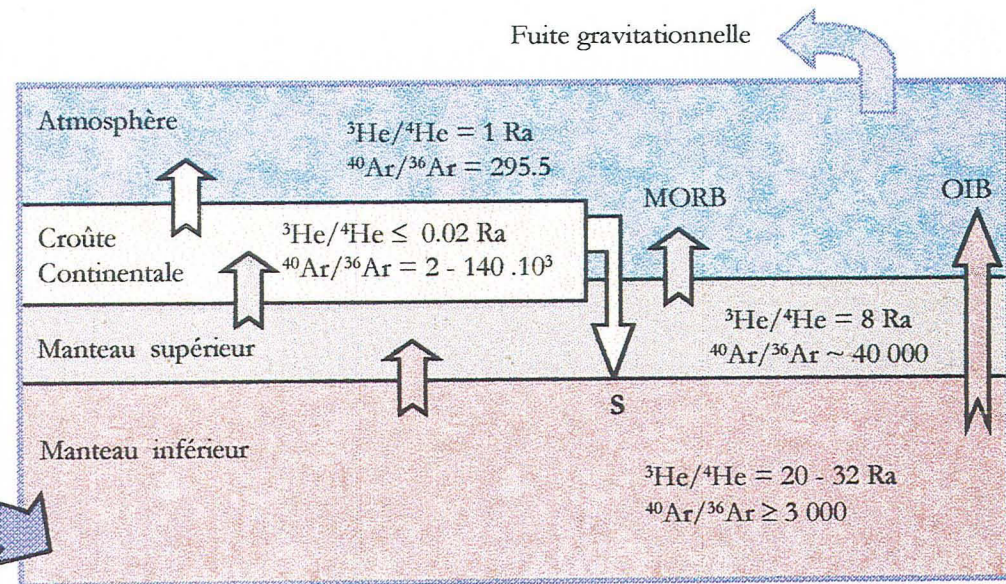
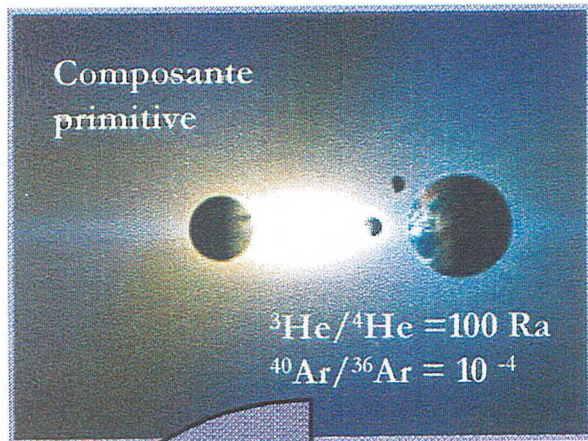
Figure 2: Inventaire des flux de dégazage de l'hélium-4, de l'hélium-3 et de l'argon-40, exprimés en $\text{mol}/\text{m}_{\text{TT}}^2/\text{a}$, parvenant dans l'atmosphère (d'après les données compilées dans Torgersen, 1989). [CC : flux extraits de la croûte continentale ; points chauds : flux extraits des basaltes des îles océaniques ; MORB : flux extraits des basaltes des rides médio-océaniques ; SUB : flux extraits des arcs volcaniques].

Les concentrations de gaz rares sont faibles et constantes (Tableau 5 et Tableau 6 : He : 5.239 ± 0.005 ppm en volume) à la surface de la Terre. Ces deux caractéristiques vont se révéler essentielles dans leur rôle de traceurs géochimiques (cf. IV).

| Isotope | rapport | normalisation | abondance atomique |
|----------------------------|------------------|---------------|--------------------|
| | isotopique | alternative | en pour cent |
| Helium ^a | | | |
| 3 | 1.399 ± 13 | 1 | 0.000 140 |
| 4 | 10^6 | 714 800 | ~ 100 |
| Néon ^b | | | |
| 20 | 100 | 9.800 | 90.50 |
| 21 | 0.296 ± 2 | 0.0290 | 0.268 |
| 22 | 10.20 ± 8 | 1 | 9.23 |
| Argon ^c | | | |
| 36 | $0.337 8 \pm 6$ | 1 | 0.3364 |
| 38 | 0.0635 ± 1 | 0.1880 | 0.0632 |
| 40 | 100 | 295.5 | 99.60 |
| Krypton ^{d, e, f} | | | |
| 78 | $0.608 7 \pm 20$ | 1.994 | 0.3469 |
| 80 | $3.959 9 \pm 20$ | 12.973 | 2.2571 |
| 82 | 20.217 ± 4 | 66.23 | 11.523 |
| 83 | 20.136 ± 21 | 65.97 | 11.477 |
| 84 | 100 | 327.6 | 57.00 |
| 86 | 30.524 ± 25 | 100 | 17.398 |
| Xénon ^{d, e} | | | |
| 124 | $0.353 7 \pm 11$ | 2.337 | 0.0951 |
| 126 | $0.330 0 \pm 17$ | 2.180 | 0.0887 |
| 128 | 7.136 ± 9 | 47.15 | 1.919 |
| 129 | 98.32 ± 12 | 649.6 | 26.44 |
| 130 | 15.136 ± 12 | 100 | 4.070 |
| 131 | 78.90 ± 11 | 521.3 | 21.22 |
| 132 | 100 | 660.7 | 26.89 |
| 134 | 38.79 ± 6 | 256.3 | 10.430 |
| 136 | 32.94 ± 4 | 217.6 | 8.857 |

Tableau 5 : Les isotopes de gaz rares et leurs caractéristiques dans l'air (Ozima and Podosek, 1983). ^a Mamyrin et al., 1970; ^b Eberhardt et al., 1965; ^c Nier, 1950; ^d Basford et al., 1973; ^e Nier, 1950.

1) ACCRETION



2) DIFFERENCIATION

Légende :

MORB : Basaltes des rides médio-océaniques

OIB : Basaltes des îles océaniques

S : subduction

Figure 3 : Formation des 4 réservoirs de gaz rares et leurs interactions

| Gaz | Masse atomique | Fraction volumique | Quantité totale (moles) |
|---------|----------------|----------------------------------|-------------------------|
| Air sec | 28.9644 | 1 | 1.767×10^{20} |
| Hélium | 4.0026 | $5.24 \pm 0.05 \times 10^{-6}$ | 9.262×10^{14} |
| Néon | 20.179 | $1.818 \pm 0.004 \times 10^{-5}$ | 3.213×10^{15} |
| Argon | 39.948 | $9.34 \pm 0.01 \times 10^{-3}$ | 1.65×10^{18} |
| Krypton | 83.80 | $1.14 \pm 0.01 \times 10^{-6}$ | 2.015×10^{14} |
| Xénon | 131.30 | $8.7 \pm 0.1 \times 10^{-8}$ | 1.537×10^{13} |

Tableau 6 : Les gaz rares atmosphériques (Vermiani, 1966).

L'hélium a un temps de résidence géologiquement court, de l'ordre du million d'années dans l'atmosphère (Tableau 4) du fait qu'il s'en échappe facilement² (Kockarts, 1973 ; Banks and Holtzer, 1968). Ces pertes sont compensées par les flux sortant au niveau des dorsales océaniques, des gaz volcaniques et des fumerolles (Lupton, 1983 ; Mamyrin and Tolstikhin, 1984) et par dégazage crustal.

Cependant, l'abondance et le rapport isotopique de l'hélium ($^3\text{He}/^4\text{He}$) dans l'atmosphère sont considérés comme uniformes à l'échelle humaine (Mamyrin et al., 1970). Le temps de mélange dans l'atmosphère étant de 10 ans, le rapport isotopique de l'hélium peut être assimilé à une constante égale à $1.386 \pm 0.010 \times 10^{-6}$ (Lupton, 1983). Cette valeur est une moyenne de 2 rapports mesurés précédemment par Mamyrin et al. (1970) à Leningrad $^3\text{He}/^4\text{He} = 1.399 \pm 0.013 \times 10^{-6}$ et Clarke et al. (1976) au Canada $^3\text{He}/^4\text{He} = 1.384 \pm 0.006 \times 10^{-6}$. Ce rapport, noté par convention Ra, est pris comme référence car il est universellement utilisé comme standard en spectrométrie de masse. Ainsi, les rapports isotopiques de He, noté R, sont normalisés à la valeur atmosphérique et exprimés sous la forme R/Ra.

II.2. LE RESERVOIR CRUSTAL

La croûte terrestre est enrichie en éléments radioactifs tels que ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K , qui produisent des isotopes de gaz rares comme ^4He , ^3He et $^{40}\text{Ar}^*$ (cf. I.2 ; Jacobsen and Wasserburg, 1979 ; O'Nions et al., 1979 ; O'Nions and Oxburgh, 1988).

La prédominance de la production radiogénique dans la croûte et son caractère dégazé en éléments volatils issus du manteau imposent une signature isotopique caractéristique à ce réservoir (Figure 3) : $^3\text{He}/^4\text{He} \approx 0.02 \text{ Ra}$ et $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} = 2 - 140 \times 10^3$.

II.3. LE RESERVOIR MANTELLIQUE

L'hélium du manteau terrestre est caractérisé par un enrichissement en ^3He , du fait de l'incorporation d'hélium primitif ($\text{R}/\text{Ra} \approx 10^2$) lors de la formation de notre planète (Figure 3). Deux équipes (Clarke et al., 1969 ; Mamyrin et al., 1969) ont publié, la même année, la découverte d'une signature d'hélium mantellique dans des fluides et des gaz volcaniques. Les fluides ayant enregistré cette caractéristique sont concentrés dans

² Effet Jeans : sa faible masse favorise sa fuite gravitationnelle.

des zones de volcanisme (Craig et al., 1978 ; Lupton, 1983 ; Wakita and Sano, 1983 ; Hooker et al., 1985 ; Matthews et al., 1987 ; Giggenbach et al., 1993) ou d'extension continentale (O'Nions and Oxburgh, 1983 ; Mamyrin and Tolstikhin, 1984 ; Oxburgh et al., 1986 ; Oxburgh and O'Nions, 1987 ; Griesshaber et al., 1992 ; Marty et al., 1992 ; Polyak and Tolstikhin, 1985).

Les basaltes des rides médio-océaniques (Mid-ocean Ridge basalts ou MORB) présentent des valeurs R/R_a peu variables autour de 8 (Kurz and Jenkins, 1981 ; Kyser and Ryson, 1982 ; Marty and Ozima, 1986) alors que les laves des points chauds, dont les basaltes d'îles océaniques (Ocean Island Basalt ou OIB) peuvent atteindre 32 (Loihi Seamount – Hawaï- Kurz et al., 1982 ; Craig et Rison, 1982). Ces observations (Figure 4) permettent de proposer que les MORB sont issus d'un manteau supérieur uniformément dégazé et homogène, alors que les laves des points chauds réfléchissent l'image du manteau inférieur hétérogène et plus « primitif » (O'Nions and Oxburgh, 1983 ; Allègre et al., 1983 ; Kaneoka and Takaoka, 1985 ; Staudacher et al., 1989 ; Poreda and Farley, 1992 ; Farley et al., 1992 ; Hanan and Graham, 1996).

Le manteau est également caractérisé par des enrichissements spécifiques en certains isotopes tels que $^{20-21}\text{Ne}$ (Craig and Lupton, 1976 ; Sarda et al., 1988 ; Ozima and Zashu, 1988 et 1991 ; Marty, 1989 ; Hiyagon et al., 1992) et $^{129, 131-136}\text{Xe}$ (Boulos and Manuel, 1971 ; Staudacher and Allègre, 1982). L'excès en ^{20}Ne ne peut s'expliquer par la présence d'une composante de type solaire dans le manteau, différente de celle de l'atmosphère (Honda et al., 1991 ; Marty, 1989 ; Hiyagon et al., 1992). La production nucléogénique explique, par ailleurs, l'origine de l'excès de ^{21}Ne . Les anomalies positives en $^{129, 131-136}\text{Xe}$ sont interprétées comme la conséquence de la production radiogénique des radionucléides à vie courte ^{129}I ($t_{1/2} = 17\text{ Ma}$) et ^{244}Pu ($t_{1/2} = 82\text{ Ma}$).

Les rapports isotopiques $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ dans les MORB sont élevés (Sarda et al., 1985 ; Poreda and Farley, 1992 ; Ozima and Zanhle, 1993 ; Farley and Craig, 1994 ; O'Nions and Tolstikhin, 1994 et 1996 ; Poricelli and Wasserburg, 1995) et peuvent être supérieurs à 28 000 (Staudacher et al., 1989). Les rapports $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ mesurés dans des OIB (Kaneoka et al., 1978 ; Kyser and Ryson, 1982 ; Allègre et al., 1983) plus bas que ceux observés dans les MORB (Jambon et al., 1985 ; Allègre et al., 1986) semblent confirmer l'hypothèse d'un manteau profond moins dégazé.

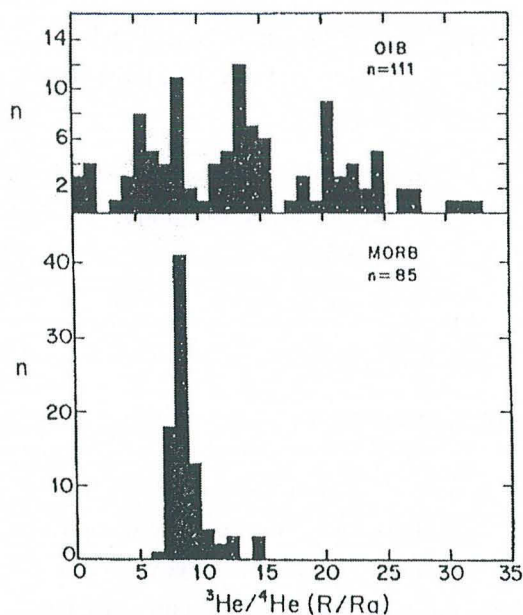


Figure 4 : Comparaison entre les rapports isotopiques de He dans les MORB et dans les OIB (Zindler and Hart, 1986).

II.4. BILAN DES RAPPORTS ISOTOPIQUES DES DIFFERENTS RESERVOIRS

Le Tableau 7 résume les rapports isotopiques de He, Ne et Ar dans les 4 réservoirs de gaz rares :

| Réservoir | $^3\text{He}/^4\text{He}$ | $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ | $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ | $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ | $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ |
|--------------|---------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|
| Atmosphère | 1 [1] | 9.80 [2] | 0.0290 [2] | 0.188 [3] | 295.5 [3] |
| Croûte | 0.014 [4] | 0.3 [5] | 3.5 [4] - 0.47 [5] | - | >10 ⁴ [4] |
| Manteau sup. | 7.9 [6] | 13.2 [7] | 0.06 [7] | - | ≈ 40 000 [8] |
| Manteau inf. | < 36 [9] | ≈ 9.8 [7] | 0.029 - 0.0038 [7] | - | ≥ 3 000 [10] |

Tableau 7 : Composition isotopique des différents réservoirs ([1] Lupton, 1983 ; [2] Eberhardt et al., 1965 ; [3] Ozima and Podosek, 1983 ; [4] Torgersen and Clarke, 1987 ; [5] Hunemohr, 1989 ; Kennedy et al., 1990 ; [6] Allègre et al., 1983 ; Marty and Ozima, 1986 ; [7] Sarda et al., 1988 ; O'Nions and Tolstikbin, 1994 ; Poricelli and Wasserburg, 1995 ; [8] Allègre and Moreira, 1996 ; [9] Kurz et al., 1983 et 1987 ; [10] Poreda and Farley, 1992 ; Ozima and Zamble, 1993 ; Farley and Craig, 1994 ; O'Nions and Tolstikbin, 1994 et 1996 ; Poricelli and Wasserburg, 1995).

III. LES GAZ RARES EN MILIEU SEDIMENTAIRE

III.1. ORIGINE DES GAZ RARES DANS LES EAUX SOUTERRAINES

Au niveau des zones de recharge des aquifères, les eaux météoriques se chargent en gaz rares atmosphériques en proportions variables (Figure 5). Les quantités de gaz dissoutes à l'équilibre dépendent de la solubilité de chacun des gaz, de la température moyenne et de l'altitude de la zone de recharge (cf. IV.3). Les gaz dissous s'infiltrent et percolent en équilibre continu avec l'air dans la zone non-saturée jusqu'à la partie aquifère. Une fois entrés dans la zone saturée, les gaz sont isolés de l'atmosphère. La composante atmosphérique peut être également introduite dans le réseau hydrogéologique par incorporation, hors équilibre, de microbulles au niveau de la zone de recharge, ou plus simplement, par contamination.

Les eaux météoriques peuvent aussi contenir des isotopes de gaz rares d'origine cosmogénique et tritiogénique (e.g. ^3He). Cependant, l'apport cosmogénique (cf. I.2.3.) devient rapidement négligeable devant la production radiogénique et ne constitue pas une source quantitative d'hélium dans les fluides du Bassin Parisien (Marty et al., 1993) et l'apport tritiogénique (cf. I.3.) est mesurable exclusivement dans les nappes aquifères superficielles, donc dans des eaux jeunes ayant un temps de résidence de quelques dizaines d'années (Carter and Mogishi, 1977).

Au fur et à mesure de son cheminement dans l'aquifère, l'eau se charge en gaz rares d'origine crustale. La roche de porosité, constitutive de l'aquifère, contient des quantités d'uranium, de thorium, de lithium et de potassium qui, via la radioactivité naturelle, produisent respectivement ^4He , ^3He , et $^{40}\text{Ar}^*$. Dans certains cas (régions volcaniques et/ou de tectonique active), les eaux peuvent contenir des gaz rares issus du manteau.

En résumé, les principales sources de gaz rares dans les eaux souterraines sont l'atmosphère, la croûte et parfois le manteau.

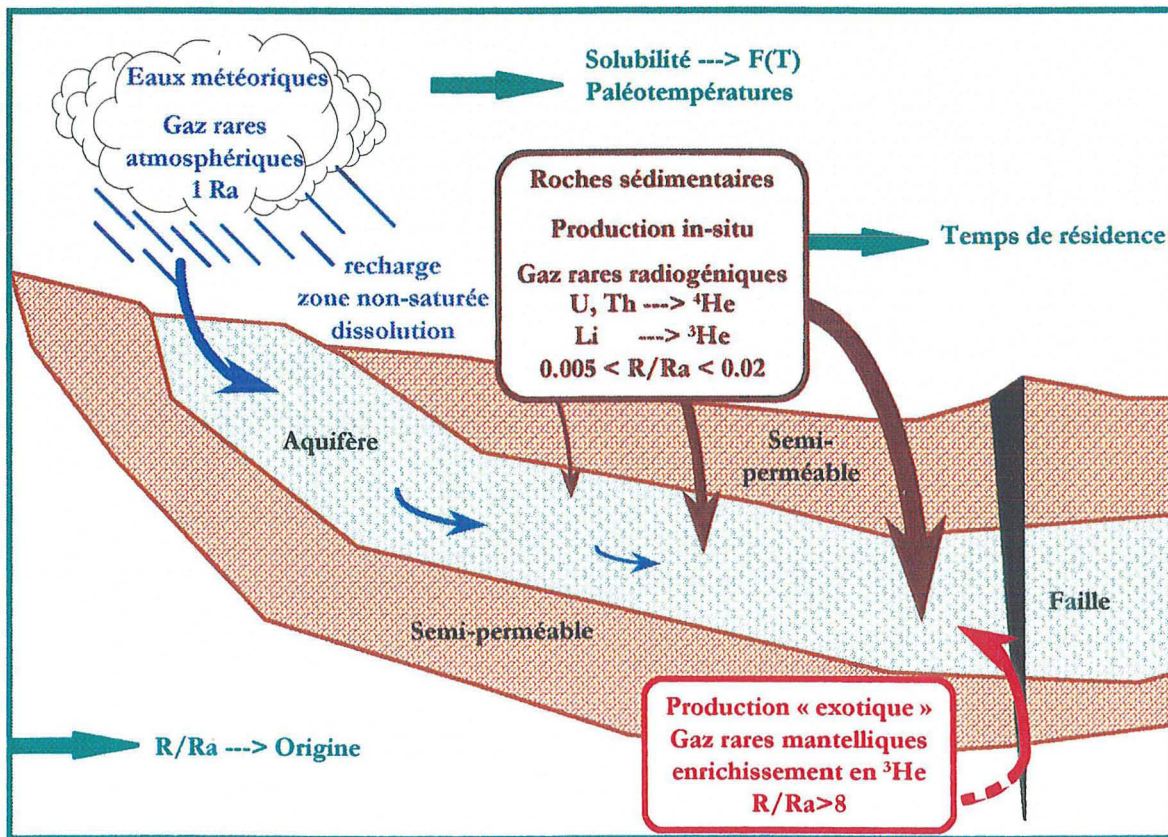


Figure 5: Bilan des sources d'hélium et de leur signature isotopique dans un bassin sédimentaire.

III.2. PROCESSUS DE TRANSFERT DES GAZ RARES

Les formations sédimentaires, milieux poreux saturés en eau, sont constituées de différentes phases qui participent au transfert des gaz rares :

- En phase dissoute, les mécanismes sont :

✓ *la convection* : le gaz dissous est entraîné par le fluide en mouvement en suivant la loi de Darcy.

✓ *la dispersion* : à l'échelle macroscopique, le gaz dissous se disperse aléatoirement sous l'effet de l'hétérogénéité du champ des vitesses intergranulaires.

✓ *la diffusion moléculaire* : ce processus est lié au mouvement brownien (agitation des molécules qui passent d'une zone à forte concentration à une autre plus faible). Il est régi par la première loi de Fick.

- En phase gazeuse, des bulles formées à partir d'un liquide sursaturé en gaz dissous peuvent être un vecteur de transport.

- En phase solide, les processus de transfert des gaz vers le fluide sont :

✓ *l'énergie de recul des particules α* produites lors de réactions de décroissance radioactive. Les particules de ^4He peuvent parcourir entre 30 et 100 μm (Andrews, 1977), favorisant ainsi l'extraction de l'hélium des minéraux. Les dommages des traces de fission facilitent la migration de He, surtout pour les grains de taille micro à millimétrique, taille typique des matrices rocheuses en environnement sédimentaire. L'argon, disposant d'une énergie de recul nettement inférieure, reste à proximité des isotopes parents.

✓ *la diffusion rapide* le long des ciments secondaires. L'énergie des particules α permet à l'hélium d'atteindre les plans de faiblesse de la roche. L'hélium peut alors diffuser facilement et rapidement dans cette zone fragile.

✓ *la diffusion solide* dans les grains. Ce paramètre est fonction du coefficient de diffusion, qui est directement relié à la température, la taille des grains, le temps de diffusion et à la distribution des isotopes parents. L'uranium et le thorium étant essentiellement concentrés dans des minéraux accessoires, c'est-à-dire dans des zones de faiblesse pour la roche, l'hélium se trouve préférentiellement en bordure de fracture et donc au contact d'un fluide. Par opposition, l'argon reste dans les minéraux majeurs, hôtes de potassium (Torgersen, 1980 ; Honda et al., 1982 ; Torgersen and O'Donnell, 1991; voir également chapitre IV)

✓ *l'altération physico-chimique des roches* (Torgersen, 1980 ; Torgersen et al., 1989).

L'ensemble de ces mécanismes favorise la mise en solution préférentielle de He par rapport à Ar, et permet un fractionnement du rapport de production $^4\text{He}/^{40}\text{Ar}^*$ dans les fluides souterrains (Zartmann, 1963 ; Ballentine and O'Nions, 1994 ; Pinti and Marty, 1995). L'ampleur de ce découplage est d'autant plus importante que la taille des grains est petite et que les isotopes parents sont en bordure de grains.

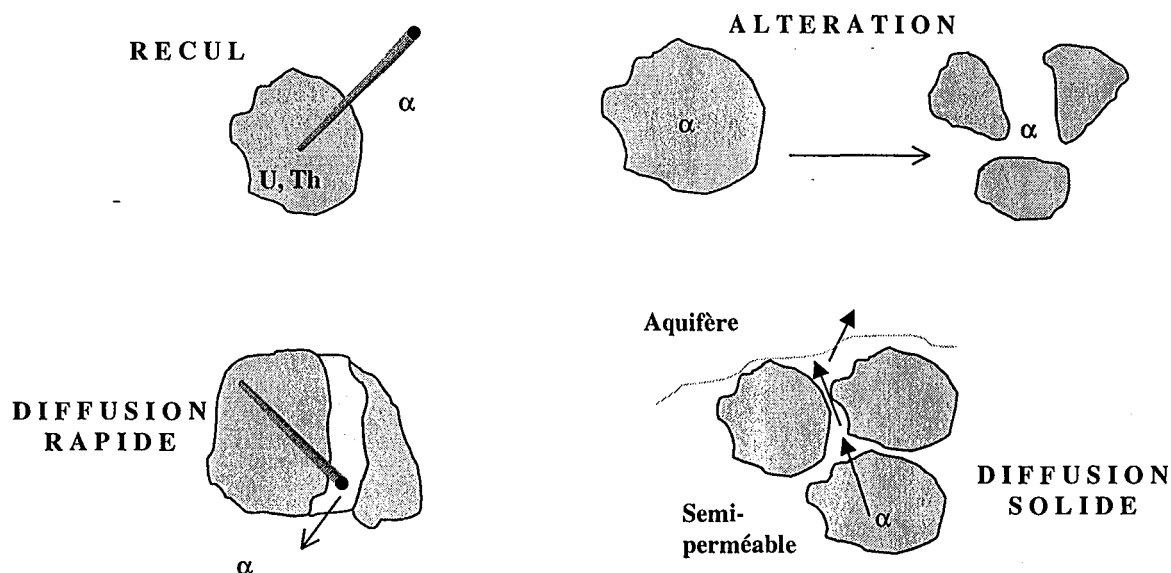


Figure 6 : les différents mécanismes de transferts des gaz rares (énergie de recul des particules α ; altération des minéraux ; diffusion rapide dans les plans de faiblesse de la roche ; diffusion solide dans les grains de la roche).

IV. LES GAZ RARES : DES MARQUEURS CONSERVATIFS

Depuis deux décennies, les gaz rares sont fréquemment utilisés pour étudier les processus qui affectent la géochimie des eaux souterraines dans divers sites géologiques : Bassin Pannonien - Hongrie (Martel et al., 1989 ; Stute et al., 1992), Bassin Molassique (Andrews et al., 1985), Molasse Alpine (Tolstikhin et al., 1996), Great Artesian Basin - Australie (Torgersen and Clarke, 1985), Valles Caldera – Nouveau Mexique (Smith and Kennedy, 1985), Mirror Lake – New Hampshire (Torgersen et al., 1994 et 1995), granite de Stripa – Suède (Andrews et al., 1982), Alberta Basin - Canada (Bottomley et al., 1984), Bassin Palo Duro - Texas (Zaikowski et al., 1987), Suisse du Nord (Pearson, 1991), Mer du Nord (Hooker et al., 1985b ; Ballentine et al., 1996), Angleterre (Andrews and Lee, 1979 ; Andrews, 1985), Bassin Parisien (Marty et al., 1988 et 1993 ; Pinti et al., 1995 et 1997 ; Castro et al., 1998).

IV.1. INDICATEURS DE L'ORIGINE DES FLUIDES

Chacune des trois principales sources d'hélium dans les fluides (atmosphérique, crustale et mantellique) peut être identifiée par sa composition isotopique spécifique en hélium (Andrews et al., 1988) :

- L'hélium atmosphérique est caractérisé par un rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ de 1 Ra.
- Dans la croûte et les roches sédimentaires, le rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ est compris entre 0.005 et 0.02 Ra, car il est fortement dépendant de la composition (U, Th, Li) de la source.
- Le manteau étant enrichi en ^3He , les rapports isotopiques de l'hélium y sont élevés (≥ 8 Ra).

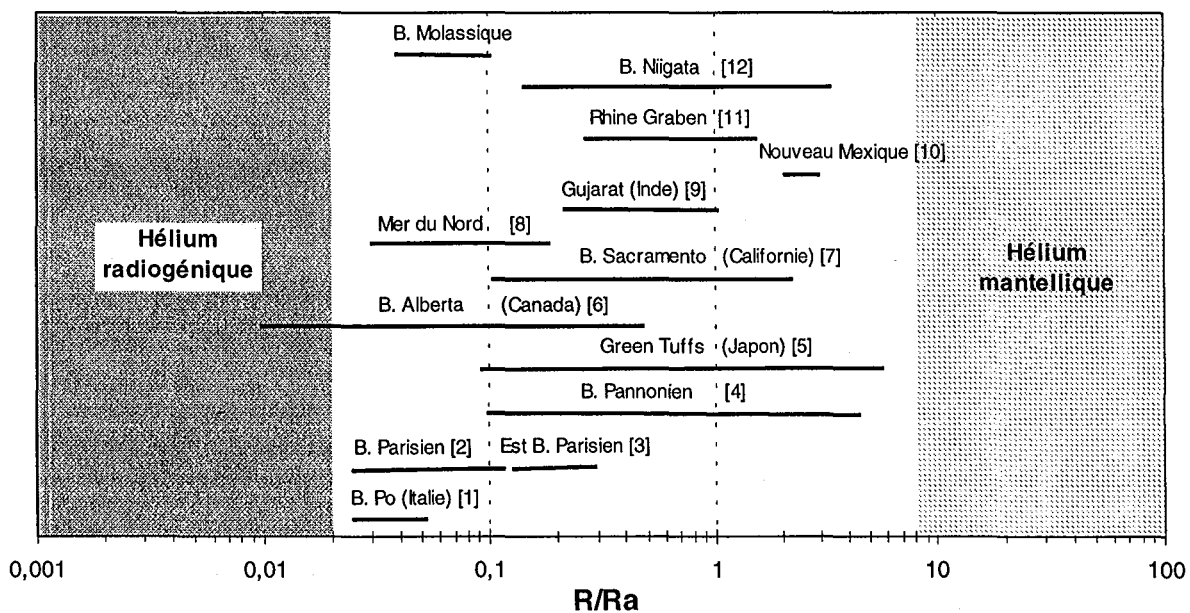


Figure 7: Synthèse des rapports isotopiques des fluides des bassins anciens et récents ([1] Elliot et al., 1993 ; [2] Marty et al., 1993 ; Pinti, 1993 ; [3] cette étude ; [4] Martel et al., 1989 ; Ballentine et al., 1991 ; [5] Wakita and Sano, 1983 ; [6] Bottomley et al., 1984 ; Hiyagon and Kennedy, 1992 ; [7] Jenden et al., 1988 ; [8] Hooker et al., 1985b ; [9] Murty, 1992 ; [10] Staudacher, 1987 ; [11] Griesshaber et al., 1992 ; [12] et [13] Oxburgh et al., 1986).

En environnement continental, le domaine crustal étant épais et enrichi en U-Th, le signal mantellique est dilué par la composante radiogénique. Néanmoins, l'écart important entre les valeurs radiogéniques (0.02-0.005 Ra) et mantelliques (≥ 8 Ra) permet de détecter une contribution d'hélium du manteau même très minime. La présence d'un signal mantellique dans un fluide crustal peut indiquer que la

zone concernée est toujours soumise à une tectonique active via un volcanisme de faille ou de Graben (Alsace, Massif Central, Sicile, Eifel), impliquant vraisemblablement la génération de magmas en profondeur.

Une synthèse des compositions isotopiques de He dans les fluides de bassins anciens et récents (Figure 7) témoigne d'une variation très importante des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$.

Le signal d'origine de l'hélium dans un aquifère peut être modifié au fur et à mesure du cheminement des eaux, s'il s'opère un mélange entre des fluides de types différents (eaux jeunes et mobiles/ eaux vieilles et stagnantes) et des connections entre aquifères (Stute and Schlosser, 1993).

D'autre part, l'étude des rapports entre isotopes produits par la radioactivité permet de mettre en évidence des mélanges entre aquifères, comme dans le cas de ceux du Dogger et du Trias du Bassin Parisien pourtant séparés par le Lias imperméable (Figure 8).

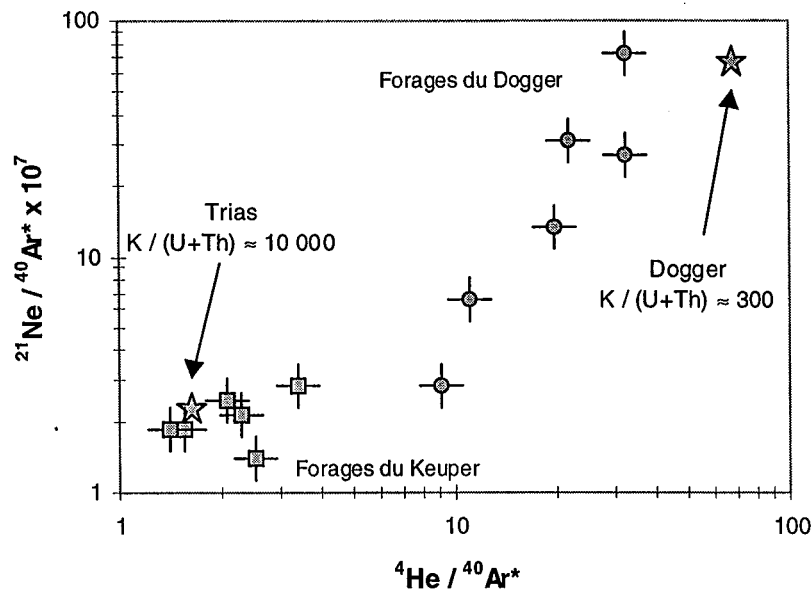


Figure 8 : Relation entre les rapports d'abondance radiogénique $^4\text{He}/^{40}\text{Ar}^*$ et $^{21}\text{Ne}/^{40}\text{Ar}^*$. Les étoiles indiquent les sources de gaz rares radiogéniques. Ce diagramme montre l'apport d'une composante triasique (carrés) dans les eaux du Dogger (ronds) (D'après Pinti and Marty, 1998).

IV.2. INDICATEURS DU TEMPS DE RESIDENCE DES FLUIDES

S'il existe plusieurs techniques permettant de dater des eaux récentes, le cas des eaux souterraines anciennes est beaucoup plus critique (Figure 9). Les traceurs géochimiques usuels ne correspondent pas à la gamme d'âges rencontrée ($t_{1/2}$ (^3H): quelques dizaines d'années) ou sont inefficaces devant la trop forte minéralisation des eaux (^{14}C dilué par les carbonates). Le déséquilibre radioactif entre ^{234}U et ^{238}U est adéquat du point de vue temps, mais la chimie de l'uranium est si complexe durant la diagenèse que son utilisation reste délicate. D'autres méthodes telles que ^{36}Cl (Bentley et al., 1986 ; Andrews et al., 1986) et ^{129}I (Fabryka-Martin et al., 1985), avec des gammes d'application de 10^5 ans, sont en cours d'étude, mais elles ne sont pas encore parfaitement calibrées et supposent des eaux peu chargées en halogènes.

Comme les gaz rares possèdent de nombreux isotopes radiogéniques (^4He , ^3He , ^{21}Ne , ^{40}Ar) produits *in situ* dans les roches sédimentaires, métamorphiques et plutoniques et que la durée de demi-vie des radionucléides parents est de l'ordre du milliard d'années, ils sont potentiellement adaptés à ce type d'études.

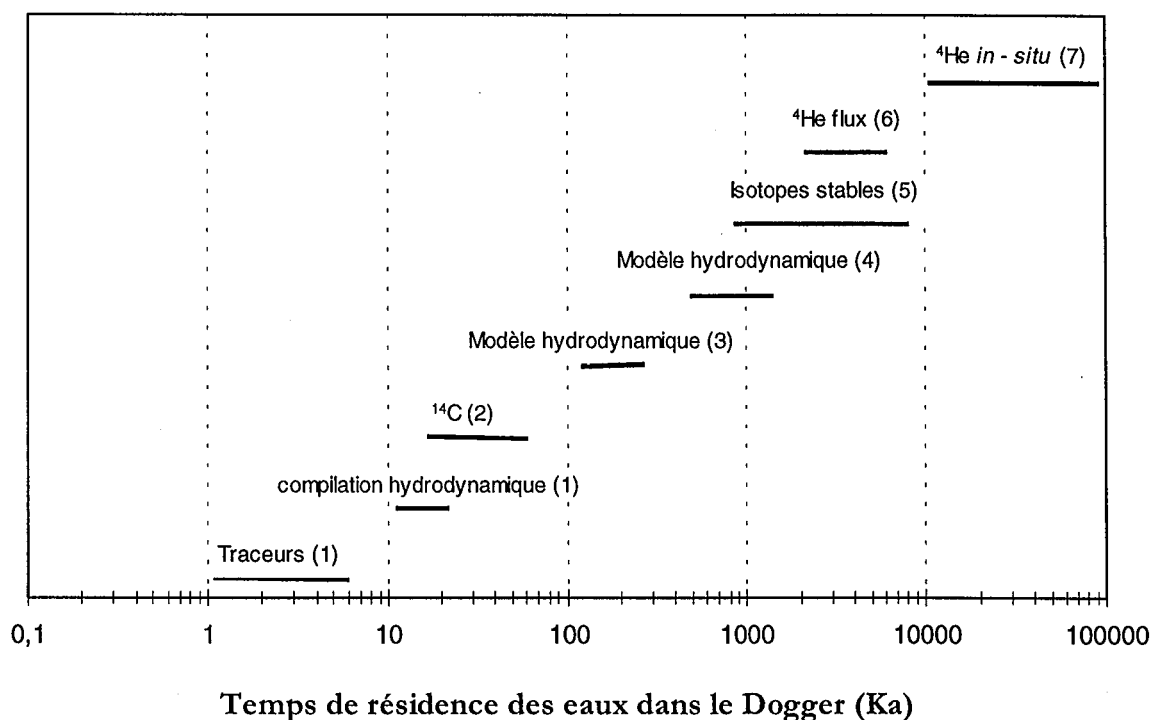


Figure 9 : Compilation des méthodes de datation utilisées pour dater les eaux du Dogger Parisien et des âges associés ([1] Aubertin, 1987 ; [2] Rojas, 1990 ; [3] Wei et al., 1990 ; [4] Menjoz et al., 1993 ; [5] Worden and Matray, 1995 ; [6] Marty et al., 1993 ; [7] Marty et al., 1988). D'après Pinti and Marty, 1998.

L'hélium-4 radiogénique, comme outil de datation des eaux souterraines, a fait l'objet de plusieurs études (Andrews and Lee, 1979 ; Andrews et al., 1985 ; Ballentine et al., 1991 ; Bottomley et al., 1990 ; Heaton, 1981 ; Martel et al., 1989 ; Marty et al., 1988 et 1993 ; Pinti and Marty, 1995 ; Solomon et al., 1996 ; Torgersen and Clarke, 1985). La très faible abondance d'hélium dans l'air (5.24 ppm) permet une détection aisée des apports de ^4He dérivés de la radioactivité naturelle dans les eaux (par exemple, les eaux du centre du Dogger Parisien contiennent en moyenne 3×10^{-8} mol/g de ^4He , alors que l'abondance initiale de ^4He atmosphérique dans une eau de surface est de 2×10^{-12} mol/g). Ces apports deviennent rapidement majoritaires et reflètent alors l'accumulation d'hélium au cours du temps.

L'atmosphère est le seul réservoir contenant du néon-20 et comme aucune réaction connue ne permet d'en produire en quantités significatives, ^{20}Ne est utilisé pour corriger les valeurs d'hélium d'une éventuelle contamination atmosphérique (microbulles d'air entraînées dans la zone non-saturée hors équilibre) au moyen du rapport He/Ne atmosphérique égal à 0.318 ou de celui de dissolution dans l'eau (i.e. He/Ne = 0.254 pour une eau à 10°C).

Si l'on suppose une production de ^4He constante dans le temps, que tout l'hélium radiogénique produit dans les roches réservoir est injecté dans les fluides de formation, et une évolution en système clos, le temps de résidence pour ces fluides est donné par (Marine, 1979) :

$$t = \frac{He \times \varnothing \times \rho}{d \{ (\alpha \times [U]) + (\beta \times [Th]) \}}$$

t : âge de l'eau en années

\emptyset : porosité totale de la roche ($\text{cm}^3 \text{H}_2\text{O} / \text{cm}^3$ de roche)

d : masse volumique de la roche (g / cm^3 de roche)

ρ : masse volumique de l'eau (g / cm^3)

He : concentration ^4He radiogénique (mol / g)

[U] et [Th] : concentration d'U et de Th dans la roche (g / g de roche)

α : taux de production de He à partir de U ($= 5.31 \times 10^{-12} \text{ mol} / \text{g U} \cdot \text{an}$)

β : taux de production de He à partir de Th ($= 1.28 \times 10^{-12} \text{ mol} / \text{g Th} \cdot \text{an}$)

La comparaison de méthodes de datation indépendantes (Figure 9) montre que les âges calculés à partir des abondances d'hélium sont supérieurs à ceux obtenus par d'autres méthodes (Aubertin, 1987 ; Wei et al., 1990 ; Menjot et al., 1993 ; Fouillac et al., 1990 ; Matray et al., 1994 ; Worden and Matray, 1995) laissant supposer d'autres sources d'hélium que la radioactivité naturelle de la roche de porosité.

Les autres sources peuvent correspondre à :

- des contributions d'hélium pouvant provenir d'horizons inférieurs comme, par exemple, la croûte continentale (Andrews et al., 1984 ; Torgersen and Clarke, 1985). Il est possible de calculer le flux d'hélium issu des formations sous-jacentes grâce à l'équation suivante (Andrews et al., 1985) :

$$F = \frac{\phi \times h \times [\text{He}] \times \rho}{t_r}$$

[He]: abondance en He (mol / g) corrigée de l'apport atmosphérique à l'équilibre au niveau de la zone de recharge ($2.12 \times 10^{-12} \text{ mol} / \text{g}$) et de l'apport radiogénique dans l'aquifère en considérant un système fermé.

F : flux d'hélium ($\text{mol} / \text{cm}^2 \cdot \text{an}$)

ϕ : porosité ($\text{cm}^3 \text{H}_2\text{O} / \text{cm}^3$ roche)

h : épaisseur de l'aquifère (cm)

t_r : temps de résidence en années

- de l'hélium stocké dans des minéraux détritiques et altérés dans un environnement de basse température (Torgersen, 1980 ; Philipps, 1981) ;

- la coexistence possible d'eaux vieilles et stagnantes enrichies en ^4He avec des eaux jeunes et mobiles pauvres en ^4He (Tolstikhin et al., 1996).

En conclusion, la datation des eaux souterraines à partir des abondances en ^4He n'est pas directe : il n'est pas vraisemblable de considérer un aquifère comme un système fermé et les transferts verticaux (diffusion, drainance, accidents tectoniques) peuvent jouer un rôle aussi important que les transferts horizontaux (écoulements) dans un bassin sédimentaire. Leur estimation est indispensable pour décrire la géochronologie des systèmes dynamiques interactifs que sont les aquifères profonds.

L'argon étant produit par décroissance de ^{40}K ($t_{1/2} = 1.25 \text{ Ga}$), il est envisageable de calculer des temps de résidence en système fermé à partir de la concentration en $^{40}\text{Ar}^*$:

$$t = \frac{1}{\lambda} \cdot \ln \left[\frac{{}^{40}\text{Ar}^*}{\frac{\lambda}{\lambda_e} \cdot {}^{40}\text{K}} + 1 \right] = \frac{{}^{40}\text{Ar}^* \cdot \Phi \cdot \rho}{1.73 \times 10^{-22} \cdot {}^{40}\text{K} \cdot d}$$

t : temps de résidence (a)

λ et λ_e : constantes de décroissance de ^{40}K (a^{-1})

${}^{40}\text{Ar}^*$: concentration de Ar en excès de Ar atmosphérique dans l'eau (mol/g)

${}^{40}\text{K}$: concentration dans la roche réservoir (mol/g)

Φ : porosité totale de la roche ($\text{cm}^3 \text{ H}_2\text{O} / \text{cm}^3$ de roche)

d : masse volumique de la roche (g / cm^3 de roche)

ρ : masse volumique de l'eau (g / cm^3)

Toutefois, la forte concentration d'argon dans l'atmosphère (9 340 ppm) comparée à celle des autres gaz rares et sa solubilité accrue par rapport à He (Figure 10) font que les eaux des aquifères affichent un « bruit de fond » atmosphérique en argon important, dans lequel une faible production radiogénique est difficilement détectable. En outre, l'argon s'échappe beaucoup moins facilement de la matrice rocheuse que l'hélium (Ballentine and O'Nions, 1994). Par conséquent, Ar est moins employé que He pour la datation.

L'isotope radiogénique $^{21}\text{Ne}^*$ est rarement considéré pour la datation, car le taux de production est extrêmement faible dans les roches crustales (10^7 fois inférieur à celui de He). Cependant, quelques études l'ont utilisé pour dater des eaux très anciennes ($10^7 - 10^8$ ans) circulant dans des roches cristallines (Bottomley et al., 1990 et 1984).

IV.3. INDICATEURS DE L'EPOQUE DE RECHARGE DES EAUX

Une seconde méthode, basée sur les abondances de gaz rares atmosphériques et indépendante de celle basée sur les isotopes radiogéniques de gaz rares, permet d'estimer l'âge des eaux (Mazor, 1972 ; Andrews and Lee, 1979 ; Herzberg and Mazor, 1979 ; Rudolph et al., 1984 ; Zaikowski et al., 1987 ; Deak et al., 1987 ; Stute and Sonntag, 1989 ; Stute and Schlosser, 1993 ; Pinti et Marty, 1995 ; Pinti and Marty, 1997).

L'eau de recharge, percolant dans la zone non-saturée, est en équilibre continu avec l'air . Ainsi, elle dissout des gaz rares atmosphériques, en quantité fixée par la loi de Henry :

$$F = k \cdot X$$

avec F : fugacité du gaz (atm)

k : coefficient de Henry (atm^{-1}), dépendant de la température et de la composition du solvant ;

X : fraction molaire de gaz dans la phase liquide

La solubilité des gaz rares est contrôlée par deux paramètres :

- la température : plus elle est élevée, plus les quantités dissoutes sont faibles ;
- la pression partielle de gaz : plus l'altitude³ de recharge est élevée, moins les gaz se dissolvent.

La solubilité des gaz rares a été bien étudiée dans l'eau pure (Morrisson and Johnstone, 1954 ; Douglas, 1964 ; Murray and Riley, 1970 ; Weiss, 1970 ; Benson and Krause, 1976 ; Potter and Clynne, 1978 ; Crovetto et al., 1982) et dans des solutions salées (Eucken and Hertzberg, 1950 ; Morrisson and Johnstone, 1955 ; Ben-Naim and Egel-Thal, 1965 ; Clever and Holland, 1968 ; Gardiner and Smith, 1972 ; Borina and Samoïlov, 1974 ; Smith and Kennedy, 1983). Ces études montrent que la solubilité des gaz rares lourds est plus importante que celle des gaz rares légers (Figure 10) et que la salinité fait chuter la solubilité d'environ 20% pour de l'eau de mer comparée à de l'eau pure (Konig Von, 1963 ; Weiss, 1971 ; Smith and Kennedy, 1983) et de 80% pour des saumures comparables à celles de la Mer Morte.

Ainsi, connaissant précisément les abondances de Ne, Ar, Kr et Xe dans les eaux souterraines, la salinité de la solution et la topographie de la zone de recharge, il est possible de calculer une température de recharge indépendante pour chaque gaz rare. Pour des eaux salées (< 26% en poids NaCl) de température inférieure à 65°C, Smith et Kennedy (1982) proposent à partir de l'équation empirique de Setschenow :

$$\ln X(Z) = \ln X_0(Z) - [Mk \times MX]$$

et de celle habituellement considérée pour paramétrer la solubilité dans l'eau pure (Weiss, 1970) :

$$\ln X_0(Z) = A_1 + A_2/Z + A_3/Z^2$$

la relation suivante :

$$\ln X(Z) = D_1 + D_2/Z + D_3/Z^2$$

X : fraction molaire de gaz dans le liquide (mol_{gaz}/mol_{total})

Z : température en Kelvin/100

M : molarité de la solution en NaCl (mol/l)

k : coefficient de Henry (atm⁻¹)

A_{1,2,3} : coefficients expérimentaux de solubilité dans l'eau pure (Tableau 8)

D_{1,2,3} = A_{1,2,3} - (M x B_{1,2,3}) : coefficients de solubilité des gaz rares dans l'eau salée (Tableau 8).

| Coefficients | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|----------------|----------|----------|----------|----------|----------|
| A ₁ | -41.4611 | -52.8573 | -57.6661 | -66.9928 | -74.7398 |
| A ₂ | 42.5962 | 61.0494 | 74.7627 | 91.0166 | 105.2100 |
| A ₃ | 14.0094 | 18.9157 | 20.1398 | 24.2207 | 27.4664 |
| B ₁ | -10.0810 | -11.9556 | -10.6951 | -9.9787 | -14.5524 |
| B ₂ | 15.1068 | 18.4062 | 16.7513 | 15.7619 | 22.5255 |
| B ₃ | 4.8127 | 5.5464 | 4.9551 | 4.6181 | 6.7513 |

Tableau 8 : Coefficients de solubilité des gaz rares (Clever, 1979a ; 1979b ; 1980 ; Smith and Kennedy, 1983).

³ : la pression atmosphérique moyenne est déterminée à partir de la topographie de la zone de recharge.

La solubilité peut être exprimée sous forme de concentration, C , en $\text{cm}^3 \text{ STP}/\text{cm}^3 \text{ H}_2\text{O}$:

$$C = X \cdot (22.414/18.016) \cdot \rho_{\text{H}_2\text{O}} \cdot P$$

Avec $\rho_{\text{H}_2\text{O}}$: densité de l'eau ($1\text{g}/\text{cm}^3$) ;

P : pression partielle de gaz en atm (Tableau 6) ;

22.414 : volume molaire ($\text{cc STP}/\text{mol}$) ;

18.016 : masse molaire (g/mol).

La solubilité des gaz rares lourds est beaucoup plus sensible aux variations de température que celle des gaz rares légers (Figure 10). C'est pourquoi Ar, Kr et Xe sont préférentiellement utilisés en tant que paléothermomètres. L'hélium n'est jamais employé car les quantités de He radiogénique sont en général supérieures à celles de He atmosphérique, même pour des eaux jeunes.

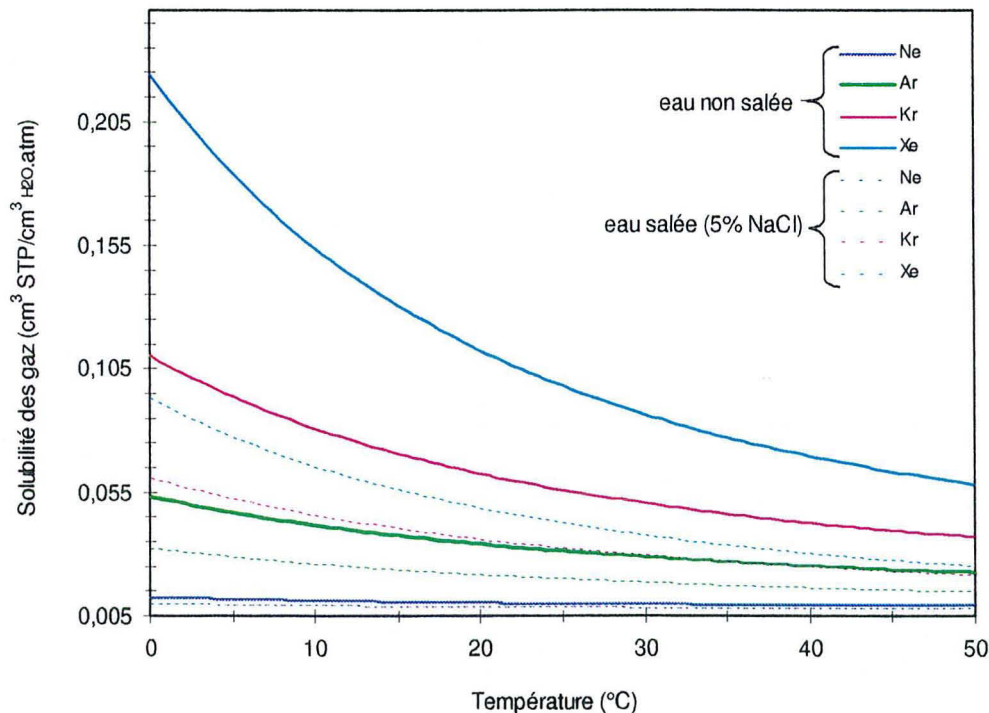


Figure 10 : Solubilité des gaz rares en fonction de la température déterminée d'après la méthode de (Benson and Krause, 1976).

Précisons que la température déterminée correspond à la moyenne annuelle au niveau du sol de la zone de recharge et que les variations climatiques saisonnières sont « lissées » après quelques années de temps de résidence dans l'aquifère. Exceptés pour des eaux jeunes, ces écarts saisonniers sont rarement détectés (Oana, 1957 ; Sugisaki, 1961 ; Herzberg and Mazor, 1979). Une fois la température estimée, il est possible de contraindre l'époque de la recharge et donc le temps de résidence des eaux souterraines, puisque les températures de surface ont varié considérablement durant le Quaternaire et le Tertiaire.

Ces équations s'appliquent pour des aquifères supposés clos vis à vis des gaz rares durant toute leur histoire. Théoriquement, quand l'eau atteint la zone saturée, elle ne peut plus dissoudre de gaz rares atmosphériques car les pores de la roche ne contiennent que de l'eau. D'autre part, les gaz dissous ne peuvent s'échapper du fait de la pression hydrostatique. On peut donc considérer l'aquifère comme un système fermé. Cependant, les températures calculées lors de diverses études peuvent différer selon le gaz rare considéré. Ces variations peuvent s'expliquer par l'incorporation d'air en excès, par exemple par entraînement de microbulles d'air hors équilibre (Herzberg and Mazor, 1979 ; Heaton, 1981 ; Heaton and Vogel, 1981 ; Mazor et al., 1983 ; Wilson and Mc Neill, 1997) via des fractures, des fissures ou encore le médium intergranulaire. Ce processus provoque une sous-estimation des paléotempératures. A l'inverse, une perte de gaz rares atmosphériques du fait de drainances verticales occasionne une surestimation des paléotempératures.

Une façon de corriger cette « sur-saturation » consiste à ôter, par itération, de petites quantités d'air jusqu'à ce que les températures soient identiques pour chaque gaz (Andrews and Lee, 1979 ; Bath et al., 1979 ; Rudolph et al., 1984 ; Mazor et al., 1983). Cette correction est applicable dans le cas où l'air ajouté n'a pas subi de fractionnement.

Chapitre II : Le Bassin Parisien

Ce chapitre résume les grandes caractéristiques géologiques du Bassin de Paris, avec une attention particulière pour la marge orientale. Les thèmes abordés (stratigraphie, tectonique, hydrogéologie et hydrochimie) ont été développés en fonction de leur concours à l'interprétation des données géochimiques. Des informations plus détaillées sur l'évolution de la structure du Bassin et sur les particularités des différents faciès en fonction des régions peuvent être tirées d'ouvrages tels que « Synthèse géologique du Bassin de Paris » (Mégrien, 1980) et « Tectonique du Bassin de Paris » (BRGM, 1971).

V. CADRES GEOLOGIQUE ET HYDROGEOLOGIQUE

V.1. MORPHOLOGIE, STRATIGRAPHIE ET TECTONIQUE

Le Bassin Parisien englobe l'ensemble des terrains post-carbonifères s'appuyant sur les massifs hercyniens suivants : à l'Ouest, le Massif Armoricain ; au Sud, le Massif Central ; à l'Est, les Vosges et au Nord-Est, les Ardennes. C'est un bassin intracratonique de forme subarrondie d'environ 600 km de diamètre (Figure 11). Cette cuvette repose sur un socle ante-Permien et renferme une succession de couches sédimentaires principalement mésozoïques. Ces assises sont disposées en auréoles concentriques, dont les plus récentes affleurent dans la partie centrale et les plus anciennes sur le pourtour. Cet empilement dit en "pile d'assiettes" est la conséquence de la subsidence du centre du bassin à l'ère secondaire et tertiaire, et du soulèvement de ses marges septentrionales, orientales et méridionales (Pomerol, 1974). La dépression est maximale à l'Est de Paris, sous la Brie (le sondage de Courgivaux a touché le socle gneissique à 3 km de profondeur). Le taux de subsidence est en moyenne de 5 m par km, valeur qui caractérise les bassins de plate forme.

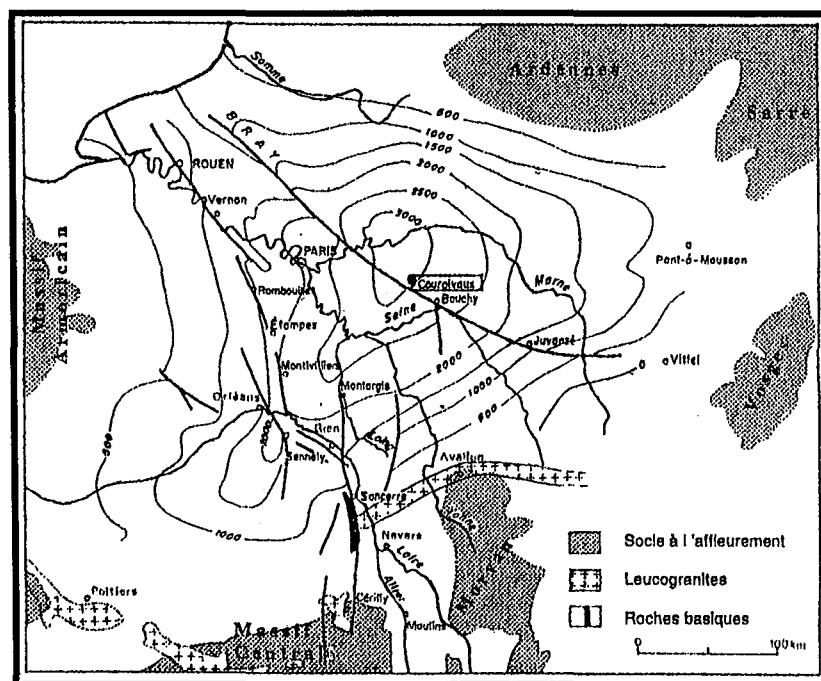


Figure 11 : Carte au toit du Paléozoïque (d'après Héritier and Villemin, 1971 et Weber, 1972). Les courbes isobathes révèlent la forme intracratonique du bassin et le point de subsidence maximale sous la Brie (Courgivaux : -3 000 m).

Le gradient géothermique moyen du bassin est de $3.3^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$ avec des minima à 2 et des maxima à $5^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$ (Gable, 1982 et 1984). Coleno (1987) explique la rupture de pente du gradient géothermique, observée à environ 1 000 m de profondeur, et qui sépare le bassin en 2 parties (la partie supérieure comporte des gradients inférieurs de 20 à 40%) comme la conséquence des circulations hydrauliques dans les aquifères sus-jacents. En outre, bien que le flux de chaleur moyen, $90\text{ mW}/\text{m}^2$, soit légèrement supérieur à ceux observés dans de tels environnements, ce bassin est considéré comme stable. Le manteau supérieur remonterait assez près de la surface dans le S-E du bassin, ainsi qu'en témoigne la position de la discontinuité de Mohorovicic à une profondeur de 20-25 km.

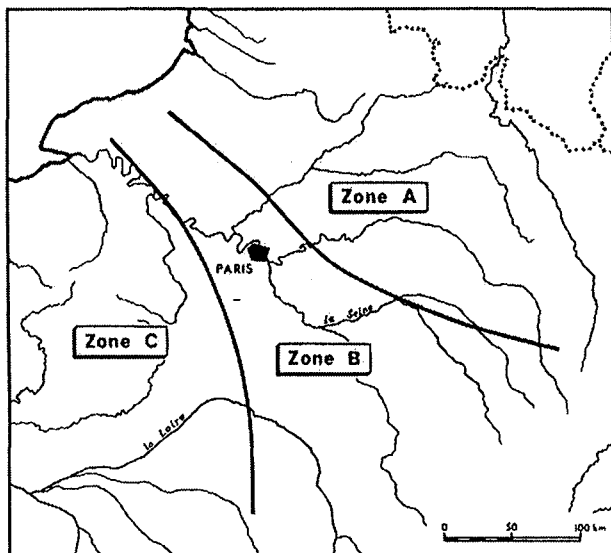
Le bassin de Paris est assez bien connu tectoniquement car il a fait l'objet d'une exploration intense de la part des compagnies pétrolières ($\approx 2\ 200$ sondages entre 1953 et 1966). Il fait partie des bassins calmes : aucun phénomène distensif majeur n'est apparu depuis le Permo-Trias.

Au toit du paléozoïque, on distingue nettement 2 accidents principaux, traversant la totalité du bassin (Figure 11) :

- la faille de Bray, qui se développe dans la direction NO - SE en passant par le centre du Bassin ;
- la série des failles de Rouen, Rambouillet, Sennely et Sancerre, de direction méridienne. Ce faisceau est marqué par une anomalie magnétique positive sur l'ensemble de sa longueur.

Ces failles, probablement très anciennes, sont affectées de rejeux multiples, pouvant atteindre 100 m pour celle de Bray (Héritier et Villemin, 1971) et 500 m pour le réseau N-S. Elles sont aussi morcelées par de nombreux accidents transversaux.

Ces 2 lignes d'accidents divisent le bassin en 3 grandes zones (Figure 12).



La zone A est constituée de rares accidents structuraux et de faible amplitude (faille de la Marne, faille de Joinville).

La zone B s'avère plus complexe et concentre des failles de rejet important (failles de Rouen, Rambouillet, Sennely). Dans cette partie, le bassin prend une direction varisque.

La zone C, comme la zone A, présente peu de complications structurales. Cette zone a également une direction varisque.

Figure 12 : Les grandes zones structurales du Bassin (Héritier et Villemin, 1971).

Des intrusions de roches cristallines basiques, d'âges variés, certaines très anciennes (Précambrien à Cambrien), d'autres plus récentes (fin Hercynien), sont fréquentes dans le Permien. Ces intrusions pourraient être à l'origine des anomalies magnétiques positives.

Au toit du Dogger, tout un ensemble complexe d'anticlinaux et de synclinaux se greffe aux deux accidents majeurs affectant le socle (Figure 13). Brunet et Le Pichon (1982) mettent en évidence une différence de subsidence entre le pré et le post-Jurassique :

- Avant, la subsidence à caractère tectonique tend à allonger les failles ;
- Après, la subsidence à caractère thermique confère une forme concentrique au bassin.

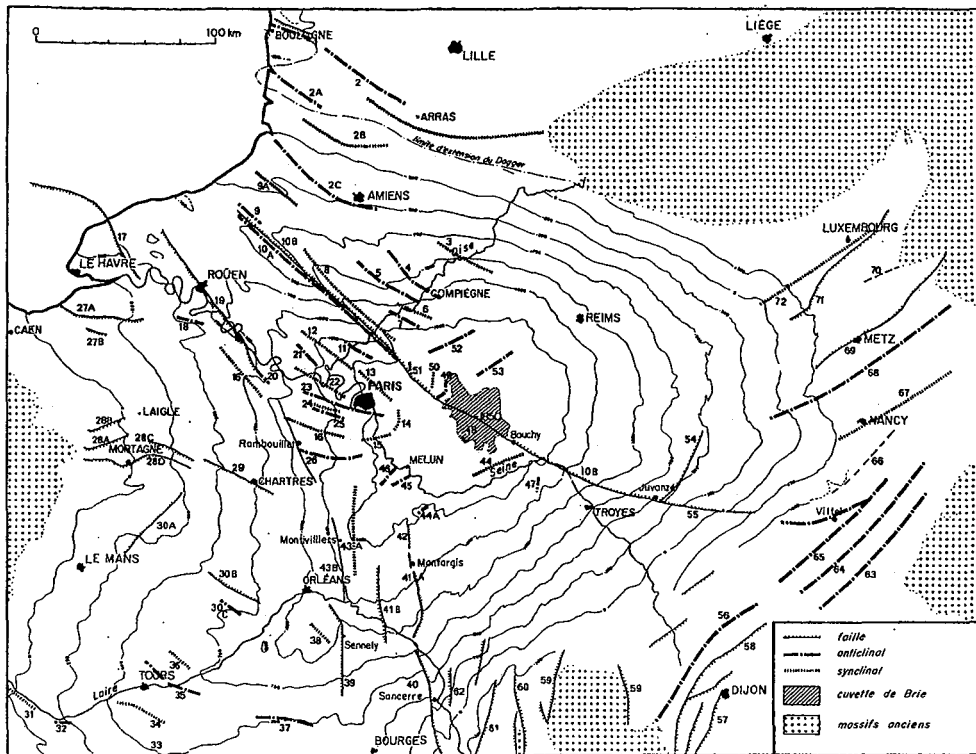


Figure 13 : Carte au toit du Dogger (dans Géologie de la France, 1974).

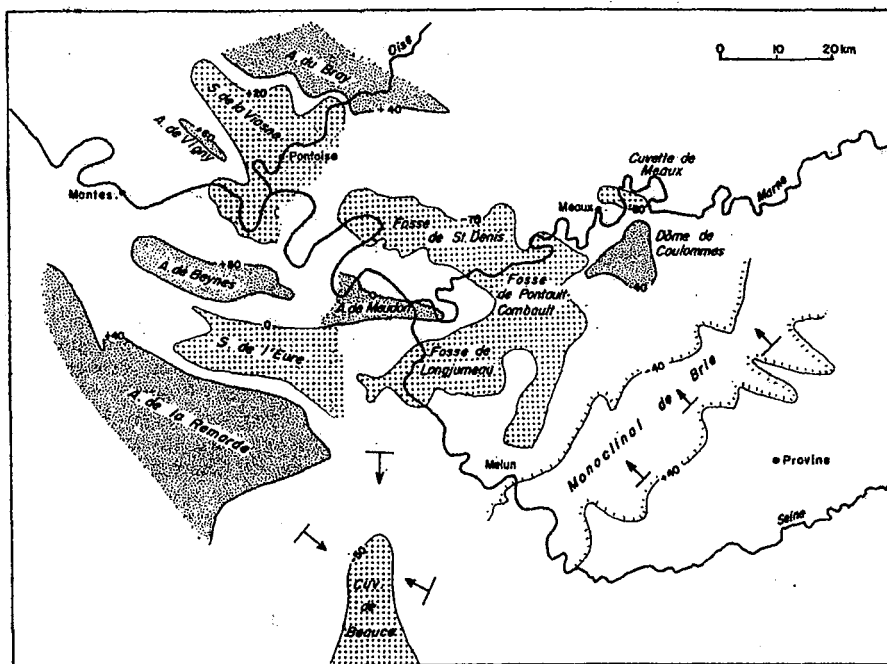


Figure 14 : Carte structurale au toit de la Craie (extrait de Géologie de la France, 1974).

Au toit de la Craie apparaît principalement le monoclin de Brie (Figure 14). Ces cartes structurales laissent supposer que les failles majeures affecteraient essentiellement les couches les plus anciennes du Bassin.

Dans l'Est de la France (Figure 15) co-existent des failles d'ampleur régionale telles que les failles de Vittel et de Metz, avec des structures d'importance locale telles que :

- le fossé de Gondrecourt, de direction N30 - N35°E, qui est une zone étroite effondrée entre deux failles parallèles ;
- le fossé de la Marne, orienté N-NO / S-SE, prolongé vers le Sud par la faille de Poissons qui lui est parallèle ;
- la faille de St Dizier.

Ces accidents locaux ont pour origine les failles, qui traversent le socle hercynien.

Du point de vue lithostratigraphique, le bassin de Paris rassemble une alternance de couches dures (grès, calcaires) et tendres (sables, argiles). La succession des terrains sédimentaires anté-Tertiaires ainsi que leurs caractéristiques sont résumées Tableau 9 (Rojas, 1988) et les couches affleurantes dans l'Est sont représentées Figure 15.

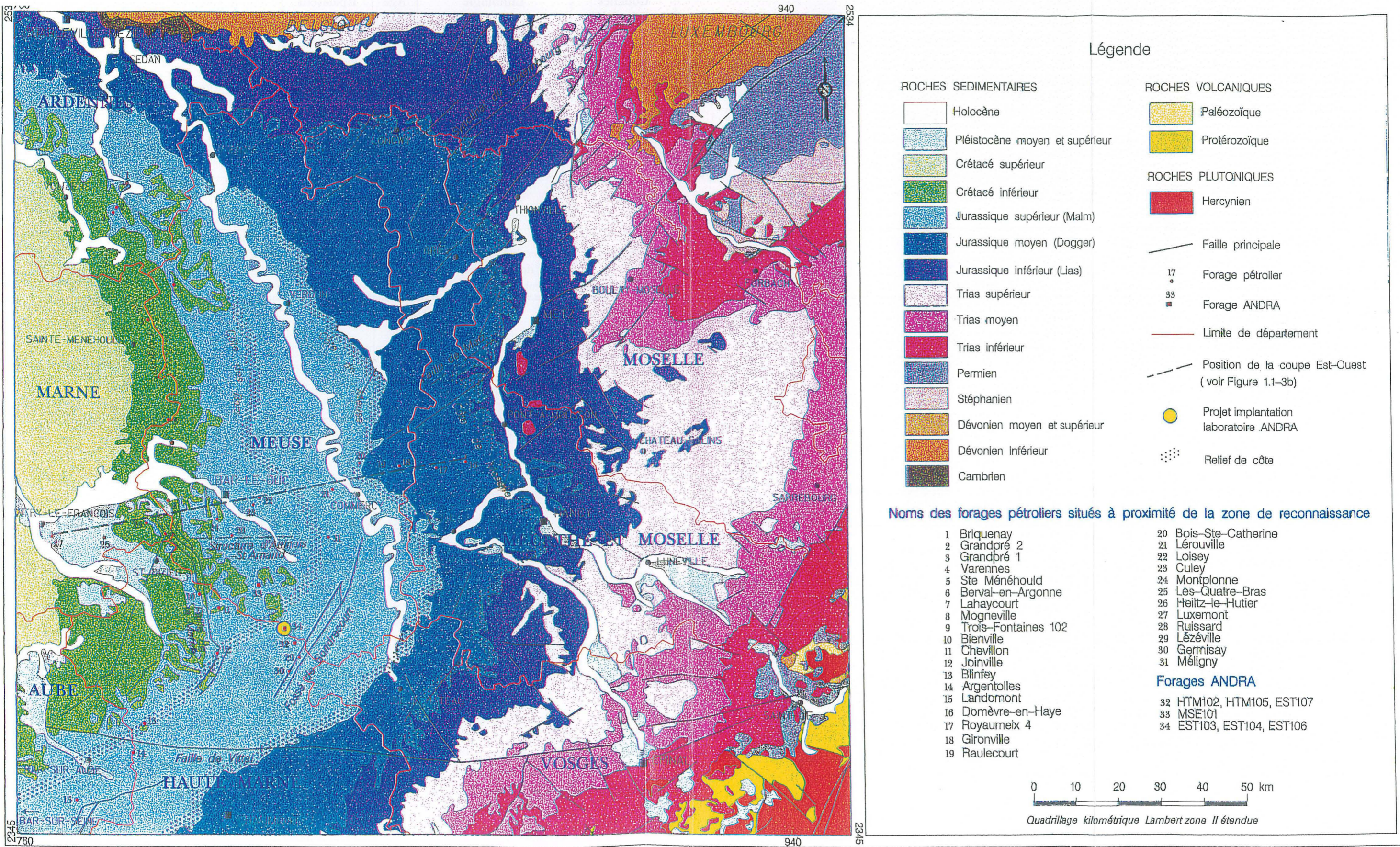


Figure 15 : Carte géologique de l'Est du Bassin Parisien (extraite du rapport ANDRA D RP 0 ANT 97-058-A).

| Couches sédimentaires | Lithologie | Age (Ma) | Epaisseur moyenne(m) | Caractéristiques | | |
|-----------------------|---|---|--------------------------|--|---|---|
| Tertiaire | Sable, calcaire et marne | 65 | 100 | | | |
| Crétacé supérieur | Craie | 96 | 500 | Aquifère | | |
| Albien | Sable vert | 112 | 100 | Aquifère | Exploité pour sa ressource en eau | |
| Aptien | | 124 | | Semi-perméable | | |
| Néocomien | Argilo-sableux | 135 | 300 | Aquifère | Plusieurs niveaux aquifères, bien connus dans le centre du bassin pour l'exploration géothermique | |
| Tithonien | Ensemble complexe de dolomies avec intercalation de marnes et lumachelles | 152 | 70 | Aquifère à l'Est et semi-perméable sous couverture | Mal connu du point de vue hydrodynamique | |
| Kimméridgien | Dominance marneuse entrecoupée de 2 niveaux calcaires d'une dizaine de mètres d'épaisseur | 155 | 300 | | | |
| Lusitanien | Calcaires, marnes, (grès) | 156 | | Aquifère | Nombreux forages géothermiques au centre du bassin mais peu étudiés | |
| Oxfordien | Faciès calcaires et marneux | 157 | 100 | Aquifère Semi-perméable | Argovo-Rauracien Séquanien | |
| Callovo-Oxfordien | Argilites et argiles | 161 | 100 | Semi-perméable | | |
| Dogger | Bathonien | Calcaires oolithiques avec des passées marneuses Alternance calcaires argiles et marnes | 180 | 200 | Aquifère | |
| | Bajocien | | | | | |
| Lias | Alternances calcaires et marnes | 205 | 400 | Semi-perméable | | |
| Trias | Rhétien | Grès, dolomie avec niveaux salifères Succession calcaires, grès, argilites et grès Grès colorés | 209 235 241 245 | 700 | Aquifère | Plusieurs couches perméables probablement en communication par des failles imperméables |
| | Keuper | | | | | |
| | Muschelkalk | | | | | |
| | Buntsandstein | | | | | |

Tableau 9: Descriptif des différentes couches sédimentaires constitutives du Bassin Parisien.

V.2. LE RESEAU HYDROGEOLOGIQUE

Seuls les aquifères présents dans l'Est et/ou ayant fait l'objet d'études de gaz rares sont détaillés dans les paragraphes suivants.

V.2.1. L'Albien

L'étage de l'Albien appartient au Crétacé et regroupe une alternance de réservoirs sableux (sables verts glauconieux, des Drillons et de Frécambault) et d'argiles (tégulines, des Pommerats et de l'Armance). Il constitue un aquifère multicouche de 75 000 km², réputé pour la potabilité de son eau. En région parisienne, la construction du premier puits artésien profond, le puits de Grenelle (548 m), date de 1841. La succession de forages de recherche en eau, puis de sondages pétroliers qui s'en suivit, ont occasionné de nombreuses études hydrogéologiques sur cet aquifère (Lauverjat, 1967 ; Vuillaume, 1971 ; Burgeap, 1975 ; Mégrien, 1979 ; Melloul, 1979 ; Marty et al., 1993 ; Castro, 1995 ; Raoult et al., 1997 ; Raoult et al., 1998).

L'alimentation de la nappe est assurée par les affleurements des sables albiens situés à l'Est et au S-E du bassin et par la nappe libre de la Craie. Les argiles de Gault et les marnes de Brienne forment la couverture de cette formation et les dépôts argileux aptiens leur mur (Lauverjat, 1967 ; Mégrien, 1979). Les transmissivités sont très élevées ($>10^{-2}$ m²/s). La porosité est de 20% et la salinité faible (< 0.5 g/l). En région parisienne, une baisse importante et constante du niveau piézométrique, pouvant atteindre plus de 100 mètres, met en évidence la surexploitation de l'Albien (Lauverjat, 1989).

V.2.2. Le Tithonien

Les calcaires du Tithonien, d'une puissance d'une centaine de mètres, affleurent dans les vallées de l'Aire et de l'Ornain (de Montfaucon en Argonne au N-E à Graçay au S-O). Ils sont au mur des marnes du Kimméridgien et au toit des formations du Crétacé. Ils constituent l'aquifère le plus superficiel de l'Est du Bassin et renferment plusieurs entités hydrogéologiques (Barthelemy, 1997) :

- La nappe libre du plateau du Barrois à l'Est, qui est exploitée pour l'alimentation en eau locale ;
- le réseau à caractère karstique situé entre les vallées de l'Ornain, de la Saulx et de la Marne. A cet endroit, les calcaires sont scindés par 2 niveaux imperméables provoquant la formation de 3 nappes dont l'expression hydraulique est assez peu connue. De nombreuses sources sont recensées consécutivement à l'intense karstification de ces calcaires ;
- la nappe captive assise à l'Ouest de la Marne. Les calcaires devenant rapidement imperméables dès qu'ils sont sous couverture Crétacée, l'importance de cette nappe est restreinte. Son exploitation est inenvisageable d'où l'absence de forage. Toutefois, un paléokarst leur permet de rester aquifère en profondeur dans une zone proche des affleurements. Une direction principale d'écoulement N-O est fixée par la piézométrie.

V.2.3. L'Oxfordien

L'Oxfordien calcaire est compris entre 2 horizons imperméables : au toit, les marnes du Kimméridgien (2.5×10^{-9} – 2.5×10^{-8} m/s) et au mur, la série monotone des argilites du Callovo-Oxfordien (5×10^{-13} – 10^{-11} m/s) d'une puissance supérieure à 100 m. Le comportement aquifère de l'Oxfordien est à rapprocher de celui du Tithonien : A l'affleurement, entre la vallée de l'Ornain et le fossé de Gondrecourt, les calcaires constituent un réservoir aquifère fortement karstifié engendrant la résurgence de nombreuses

sources. Comme la perméabilité diminue drastiquement (10^{-9} - 2.5×10^{-8} m/s) dès que les calcaires passent sous couverture des marnes kimméridgiennes, aucun forage d'exploitation n'a pu être inventorié dans cette formation. Un niveau très faiblement producteur de 1 à 2 litres par heure, à 180 m sous le toit de l'Oxfordien, a été remarqué lors d'une campagne de reconnaissance initiée par l'ANDRA.

V.2.4. Le Dogger

Cet aquifère correspond à des dépôts d'âge jurassique moyen à dominante calcaire. Il est sous couverture des marnes du Malm (Callovien inférieur) et repose sur les argiles du Toarcien (Lias). Ces calcaires constituent une séquence de type régressif, de 200 m de puissance moyenne, et qui regroupe 3 sous-séquences d'ordre hectométrique assimilées aux 3 étages Aalénien, Bajocien, Bathonien. Il apparaît que la porosité globale est liée à la lithologie, donc au milieu de dépôt et que la perméabilité varie, à faciès identiques, en fonction d'événements diagénétiques.

Cette formation affleure en Lorraine sur les plateaux de la Moselle entre Briey et Neufchâteau. La nappe est alors drainée par les affluents de la Moselle et de la Chiers. Plusieurs niveaux aquifères, souvent karstiques du fait des calcaires fissurés, sont observés dans le Bajocien et le Bathonien supérieur. Ceci a pour conséquence une hétérogénéité de productivité dans les forages, qui diminue avec l'éloignement des zones d'affleurement. Sur l'ensemble du Dogger, seule une vingtaine de mètres, associée aux calcaires oolithiques, est productive. Sous la couverture argileuse, la faible porosité des calcaires est liée à une recristallisation régionale. Les transmissivités sont variables et comprises entre 10^{-4} (Coulommiers : Maget, 1993) et 7×10^{-2} m²/s (Moselle : Gille, 1985). Les températures les plus élevées (75 - 85°C) ont été observées dans la région de Meaux où les transmissivités sont aussi les plus importantes. La porosité moyenne est de 15 - 20% (IMRG, 1984 ; Rojas et al., 1989).

Dans l'Est, l'écoulement des eaux est de direction globale S-N (Barthelemy, 1997). Il est perturbé dans la région de Briey par une anomalie due à l'ennoyage des mines et au foudroyage des galeries. Le cône d'appel résultant peut atteindre 20 kilomètres.

Le Dogger étant exploité pour la géothermie dans le centre du Bassin, les études hydrogéologiques sont nombreuses et essentiellement concentrées en région parisienne (Chiarelli, 1973 ; Housse and Maget, 1976 ; Levassor et al., 1977 ; Maget, 1983 ; Aubertin and Ballin, 1984 ; Cordier, 1986 ; IMRG, 1984 et 1988 ; Marty, 1988 ; Michard and Bastide, 1988 ; Rojas, 1989 ; Fouillac et al., 1990 ; Wei, 1990 ; Wei et al., 1990 ; Menjoz and Lambert, 1991 ; Matray and Fontes, 1993 ; Worden and Matray, 1993 ; Matray et al., 1994).

V.2.5. Le Trias

Les affleurements du Trias constituent l'auréole sédimentaire la plus externe du Bassin. Cet étage très bien développé vers l'Est (500 m de puissance en Moselle) voit son épaisseur s'annuler progressivement vers l'Ouest (quelques mètres en Champagne). Les grès triasiques s'étendent de la bordure Ouest du département de la Meuse jusqu'aux Vosges où ils affleurent. La nappe contenue dans cette formation a pour limite l'affleurement du Trias au Nord et à l'Est, la disparition du faciès gréseux à l'Ouest, et le drainage par la Saône au niveau du seuil morvano-vosgien. Cet aquifère est sous couverture du Muschelkalk, en partie imperméable, et repose sur 3 types de substratum : le socle cristallin ou métamorphique, le Permien et le Carbonifère.

L'aquifère des Grès Vosgiens est le plus productif de l'Est de la France et sa nappe constitue une des principales sources d'approvisionnement en eau potable de la région. La surexploitation de l'aquifère induit une baisse progressive du niveau piézométrique depuis plusieurs années. La partie Ouest de la nappe, c'est-à-dire au delà d'une ligne passant par Nancy et Metz, n'est pas exploitée car elle devient trop minéralisée. Ainsi, on trouve une forte concentration de forages profonds sur les départements des Vosges, de la Meurthe et Moselle et de la Moselle, mais les forages sont beaucoup plus dispersés voire inexistantes dans la zone fortement minéralisée.

La nappe est alimentée par les précipitations sur les affleurements du Buntsandstein (Vosges et région houillère) et par drainance à partir des calcaires du Muschelkalk (région de Vittel). Les exutoires se trouvent au niveau des affleurements à l'Est, des Houillères du Bassin Lorrain et de la vallée de la Moselle (Sierk-les-Bains). L'écoulement général est de direction Sud - Nord. Une anomalie causée par les exhaures de mines dans le bassin houiller lorrain crée un cône d'appel de quelques dizaines de kilomètres.

La série gréseuse triasique présente une porosité comprise entre 10 et 15% et une perméabilité de pores et de fissures variant verticalement et latéralement. Le réservoir présente donc une forte anisotropie verticale, qui peut avoir des conséquences sur la stratification de l'eau du point de vue qualitatif (Soukatchoff, 1988).

Les eaux triasiques voient leur température augmenter au voisinage des failles majeures (110°C au N de Provins ; 90°C au S-E d'Orléans ; 80°C sous la région parisienne).

VI. CADRES HYDRODYNAMIQUE ET GEOCHIMIQUE

Seuls les aquifères ayant fait l'objet d'analyses géochimiques de gaz rares sont considérés. Il s'agit de l'Albien, du Dogger et du Trias.

VI.1. AQUIFERE DE L'ALBIEN

Une synthèse des différentes études de datation des eaux albiennes est reproduite Figure 16. Raoult (1997), à partir de l'activité en ^{14}C et des âges dérivés, confirme une circulation horizontale avec des temps de résidence s'échelonnant entre 500 et 30 000 ans depuis les affleurements du S-E jusqu'au centre du Bassin.

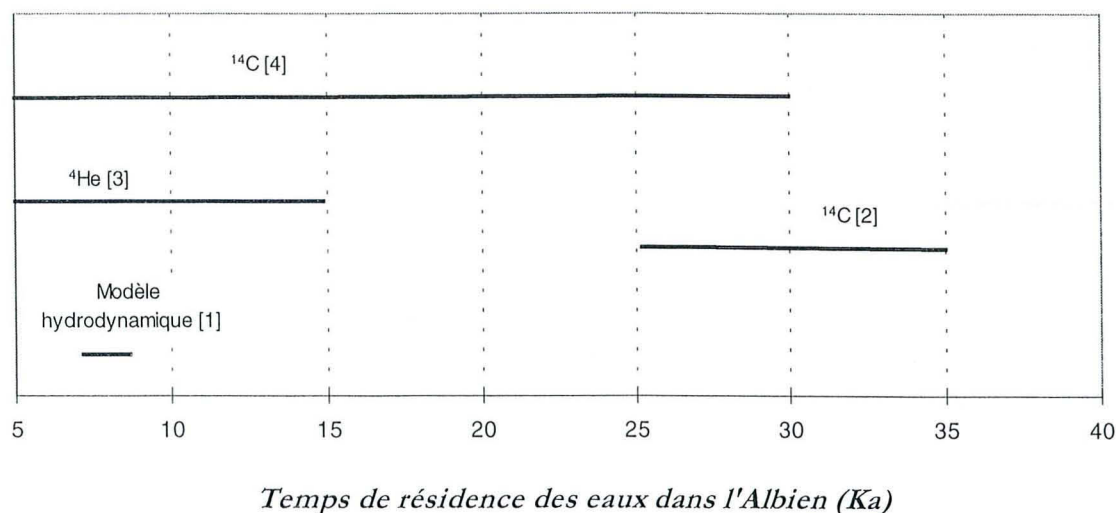


Figure 16 : Synthèse des différentes études de datation des eaux de l'Albien [(1) : Lauverjat, 1967; (2) Vuillaume, 1971; (3) Marty et al., 1993; (4) Raoult, 1997].

D'autre part, Pik et al. (1998) mettent en évidence une corrélation entre les abondances de He et les temps de résidence des eaux (calculés à partir de l'activité en ^{14}C) le long d'une ligne d'écoulement partant de Gien - Auxerre et se prolongeant à la limite de la région parisienne. Les rapports isotopiques de He passent rapidement de 0.97 près des affleurements à 0.17 dès qu'ils s'en éloignent. Les âges hélium sont en accord avec ceux dérivés des mesures ^{14}C . Ces observations confirment une accumulation d'hélium radiogénique au cours du temps dans ces eaux et, ainsi, une circulation par advection dans l'aquifère. En région Parisienne, les concentrations en hélium croissent soudainement et se détachent d'une évolution purement radiogénique en système fermé (Figure 17). Parallèlement, les âges hélium deviennent largement supérieurs à ceux calculés à partir du ^{14}C . Quant aux rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$, ils restent uniformes (0.07 - 0.1 Ra). Ce brusque changement de comportement est expliqué par un apport d'hélium du Néocomien, aquifère sous-jacent à l'Albien. Cette hypothèse a été testée en ajoutant à la production radiogénique de l'Albien, un flux de He comparable à celui s'échappant du Dogger (Marty et al., 1993). Cette simulation aboutit à un bon accord entre les abondances mesurées et celles calculées (Figure 17) et corrobore le concept d'un transfert vertical de fluide.

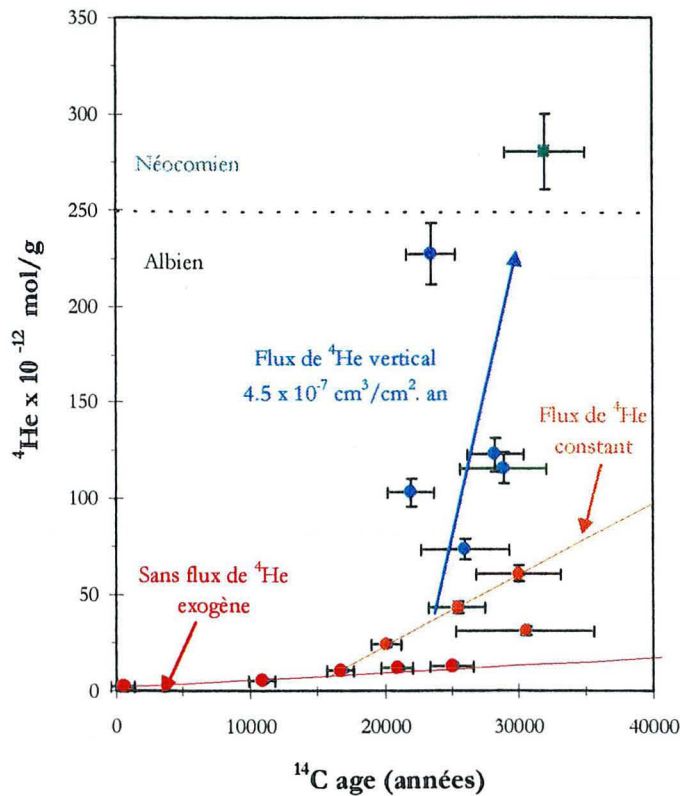


Figure 17: Origine des concentrations en ^4He en fonction du temps de résidence des eaux albiennes : Production in situ (rouge) + injection d'un flux sous-jacent constant (orange) + flux vertical (bleu) en relation avec les concentrations dans le Néocomien (vert) (D'après Pik et al., 1998).

Les analyses d'argon (Marty et al., 1993) indiquent que 90% de l'argon total est de type ASW et que les 10% restants découlent de la production radiogénique.

Les données isotopiques de l'eau, $\delta^{18}\text{O}$ et δD , montrent que l'aquifère s'est rechargé en continu depuis environ 30 000 ans (Raoult, 1997).

La composition chimique des eaux permet de distinguer 2 groupes : un pôle bicarbonaté calcique au niveau des aires d'alimentation et un pôle bicarbonaté sodique au niveau des exutoires. L'analogie entre le comportement de Na et de He (enrichissement très net en région parisienne) entérine l'idée d'un flux vertical issu du Néocomien dans l'Albien.

VI.2. AQUIFERE DU DOGGER

La composition en gaz des fluides du Dogger est typiquement celle des fluides des bassins sédimentaires. Les composants principaux sont CO_2 , CH_4 , N_2 ainsi que H_2S . Ces espèces, sensibles aux variations de conditions d'oxydo-réduction ($\text{H}_2\text{S}/\text{SO}_4$, CO_2/CH_4 , N_2/NH_4 , H/H_2), montrent que l'équilibre thermodynamique n'est pas encore atteint par ces fluides, en dépit des catalyses bactériennes (sulfures/sulfates) et du temps de séjour supposé long dans le réservoir sédimentaire.

La salinité varie de 0.5 à 35 g/l de la bordure au centre du bassin (Maget, 1983). Elle est associée aux ions Na^+ et Cl^- , qui représentent 80% de la salinité totale.

La concentration en hélium de ces fluides (1.5 à 5×10^{-5} mol/l) est très supérieure à sa solubilité dans une eau (10^{-9} mol/l), laissant supposer une accumulation de He radiogénique importante, et ainsi, un temps de résidence élevé (10 - 140 Ma, Marty et al., 1988). Ces âges « hélium » sont nettement plus élevés que les âges proposés par différents hydrodynamiciens (Figure 9). Par conséquent, l'aquifère reçoit des apports radiogéniques de l'extérieur, notamment du socle, impliquant des transferts sub-verticaux. Ceci est confirmé par le gradient vertical en ^4He radiogénique observé depuis le socle (Couy) jusqu'au Lusitanien. Les âges, estimés précédemment, doivent alors être corrigés des flux provenant des horizons sous-jacents (Marty et al., 1993 ; Figure 9).

Les rapports isotopiques de He (Meynier and Marty, 1991) dévoilent également un gradient vertical (Figure 18). Cet excès en ^3He est interprété comme une intrusion de ^3He magmatique originaire du socle dans les couches sédimentaires. Cet hélium « exotique » pourrait être en relation avec le magmatisme Stéphaniens (Meynier and Marty, 1991 ; Boulègue et al., 1992) ou celui du Massif Central (Pinti, 1993), et les failles joueraient comme des chemins préférentiels pour ces remontées de fluides magmatiques, comme en témoignent les rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ (0.1 Ra) plus élevés le long de la faille de Sennely (Pinti, 1993). Cependant, cette hypothèse a été remise en question par Castro (1995), qui propose que les enrichissements en ^3He observés dans le bassin sont dus à un fractionnement isotopique de l'hélium entre la roche et l'eau.

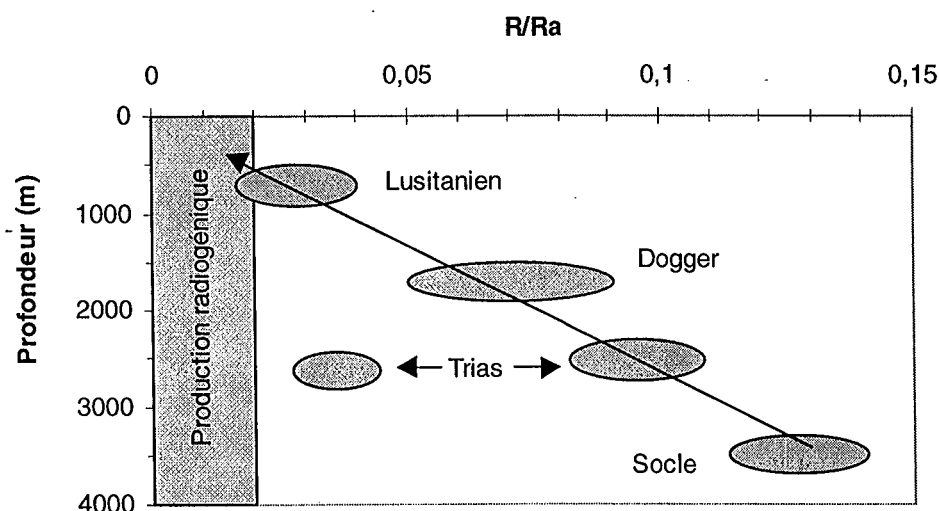


Figure 18 : Relation entre les rapports isotopiques de l'hélium et la profondeur.

La connaissance des rapports R/Ra des différents aquifères et des temps de résidence des eaux albiennes a débouché sur l'estimation des flux modèles sortant du Dogger : $^4\text{He} = 2 \times 10^{-7}$ mol/m². an et $^3\text{He} = 1.8 \times 10^{-14}$ mol/m². an (Marty et al., 1993). Ces valeurs, ainsi que les rapports $^4\text{He}/^{40}\text{Ar}^*$ et $^{21}\text{Ne}/^{40}\text{Ar}^*$, ont permis à Pinti (1993) d'estimer les flux radiogéniques entrant à la base du Dogger (Tableau 10). Les flux

d'hélium ainsi déterminés sont inférieurs d'un ordre de grandeur à ceux dérivés du dégazage crustal mesurés dans différents grands bassins sédimentaires (Torgersen and Ivey, 1985 ; O'Nions and Oxburgh, 1988 ; Stute et al., 1992).

| Flux (mol/m ² . an) | ⁴ He | ²¹ Ne* | ⁴⁰ Ar* |
|--------------------------------|------------------------------|---------------------------|-----------------------------|
| Dogger | 0.2 - 1.5 x 10 ⁻⁷ | 1 - 8 x 10 ⁻¹⁵ | 0.3 - 2 x 10 ⁻⁸ |
| Crustal | 16 - 64 x 10 ⁻⁷ | - | 20 - 170 x 10 ⁻⁸ |

Tableau 10 : Flux entrant à la base du Dogger (d'après les données de Pinti, 1993) par comparaison avec le flux crustal moyen pour la totalité de la croûte continentale.

Les rapports ⁴⁰Ar/³⁶Ar (307-322 ; Castro, 1991 ; Castro et Marty, 1993) signalent un excès de ⁴⁰Ar d'environ 5 à 10% dans cet aquifère. Cet enrichissement, comme celui en He, aurait pour origine le socle sous-jacent.

Si He et Ar* sont en excès dans le Dogger, ils ne le sont pas dans les mêmes proportions. Ce découplage traduit soit un transfert préférentiel de He par rapport à Ar depuis le Trias à travers le Lias (Castro, 1995), soit une extraction préférentielle de He des roches du Dogger et du Lias (Pinti et Marty, 1995), soit une combinaison de plusieurs processus hors équilibre (Pinti et Marty, 1997).

Les données isotopiques de H et O montrent une origine météorique pour les eaux du Dogger (Figure 19) et ne présentent pas de corrélation avec la température (Fontes and Matray, 1993). La salinité de cet aquifère s'expliquerait par une invasion d'eaux triasiques salées (éaporites du Keuper ; Ricour, 1960) via les failles (drainance créée par un gradient de charge hydraulique) dans des eaux météoriques dans des proportions de 1/10 (Matray et al., 1989). Wei et al. (1990) par la modélisation, et Marty et al. (1993) par l'étude des gaz rares arrivent à la même conclusion. De plus, le caractère concentrique des courbes d'isosalinité (Maget, 1983) suggère une origine externe pour le sel, excluant les hypothèses de lessivage des roches jurassiques ou d'eau de mer connée.

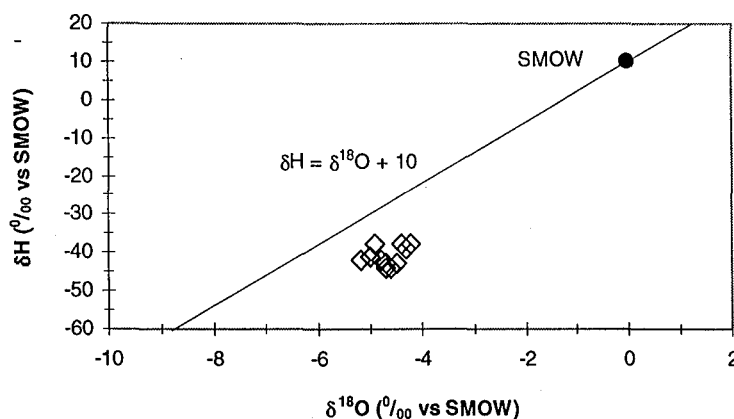


Figure 19 : Relation entre les isotopes stables, δD et $\delta^{18}O$, des eaux du Dogger : la ligne noire représente la droite des eaux météoriques (Fontes et Matray, 1993).

La modélisation des circulations fluides dans le Dogger (Figure 20 ; Menjox et al., 1993) suggère deux directions principales d'écoulement, l'une partant de la zone de recharge Sud, et l'autre de l'Est. Toutes deux convergent vers le centre du bassin puis s'en échappent au niveau de la Manche. En région parisienne apparaît une zone confinée pour laquelle les vitesses de circulation sont quasi-nulles (Menjox and Lambert, 1991). Indépendamment, la géochimie isotopique des gaz rares et celle du soufre tendent à indiquer des vitesses de circulation très faibles dans cette zone (Marty et al., 1988 ; Fouillac et al., 1990).

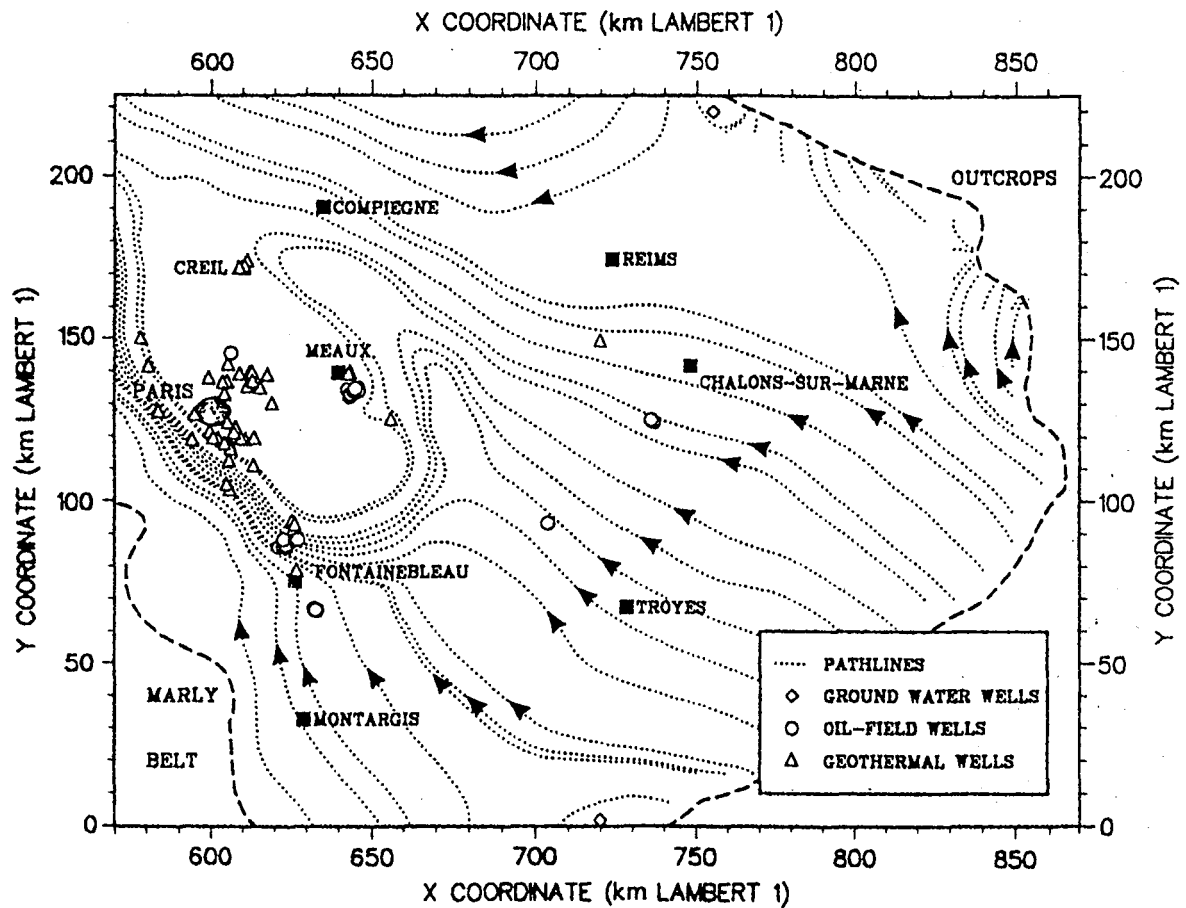


Figure 20 : Distributions des lignes de courant et de la masse volumique des eaux du Dogger (Menjox et Lambert, 1991).

L'intérêt économique suscité par le Dogger dans le centre du bassin a provoqué de nombreuses études visant à estimer les temps de résidence de ces eaux (Figure 9). La gamme d'âge proposée s'étalant sur 4 ordres de grandeur montre combien il est difficile, encore aujourd'hui, de dater des eaux profondes. En considérant les flux de He entrant et sortant du Dogger, Marty et al. (1993) proposent un temps de résidence de 4 ± 2 Ma en accord avec la chimie des eaux (Matray et al., 1994), le modèle hydrodynamique de Menjox et al. (1993) et l'étude de gaz rares sur les huiles (Pinti and Marty, 1995). Qualitativement, un temps de résidence important pour les eaux du Dogger est indépendamment suggéré par Pinti et Marty (1997), qui proposent des paléotempératures de recharge dans la gamme 15 - 26°C et donc une époque de recharge anté-quadernaire.

VI.3. L'AQUIFERE DU TRIAS

De façon générale, les eaux des Grès Vosgiens sont de type bicarbonaté calcique et faiblement magnésiennes. Elles sont très peu salées (< 1g/l) de la bordure orientale jusqu'à Nancy, puis le deviennent fortement (300 g/l) dans la Marne. En région parisienne, la salinité retombe à 100 g/l (Minoux, 1967). Matray et al. (1989) attribuent cette forte salinité à la dissolution des évaporites du Keuper, situées à l'Est, puis de leur transport latéral vers le centre du bassin.

La distribution géographique des rapports isotopiques R/Ra montre une augmentation progressive des rapports de l'Est vers l'Ouest (Figure 18 ; Meynier et Marty, 1991, Marty et al, 1993 ; Pinti, 1993 ; Pinti et Marty, 1997). A l'Est, les valeurs (0.018 – 0.026) sont compatibles avec la production radiogénique, tandis qu'à l'Ouest, elles présentent un enrichissement en ^3He interprété par ces auteurs comme d'origine magmatique. L'aquifère est ainsi composé d'un mélange de deux fluides : le premier, originaire de la recharge de l'Est, est enrichi en ^4He radiogénique. Le second, en provenance du Sud, est caractérisé par un excès de ^3He , probablement extrait du socle et remonté par les failles (Rouen - Couy). Ces deux types de fluides, comme nous l'avons vu précédemment (VI.2), se sont mélangés avec les eaux du Dogger.

Dans l'Est du bassin, les isotopes stables $\delta^{18}\text{O}$ et δH indiquent une origine météorique pour les eaux triasiques (Figure 21). Aucun effet d'évaporation, ni d'échange avec le réservoir n'a pu être détecté. Ces eaux se répartissent en deux groupes distincts : le premier correspond à des eaux confinées dans l'aquifère gréseux ($\delta^{18}\text{O} < -9.5\text{‰}$ et $\delta\text{H} < -63\text{‰}$). Le second ($\delta^{18}\text{O} > -8.7\text{‰}$ et $\delta\text{H} > -57\text{‰}$) caractérise des eaux plus récentes des niveaux aquifères supérieurs (Keuper ou Rhétien) ou proches des affleurements. Cette observation se confirme en comparant les âges ^{14}C des eaux avec les isotopes stables (Figure 22) : les eaux les plus anciennes sont les plus négatives. Elles se sont donc infiltrées durant une période de recharge plus froide qu'actuellement. Il pourrait s'agir de l'épisode glaciaire du Würm (Blavoux and Olive, 1981).

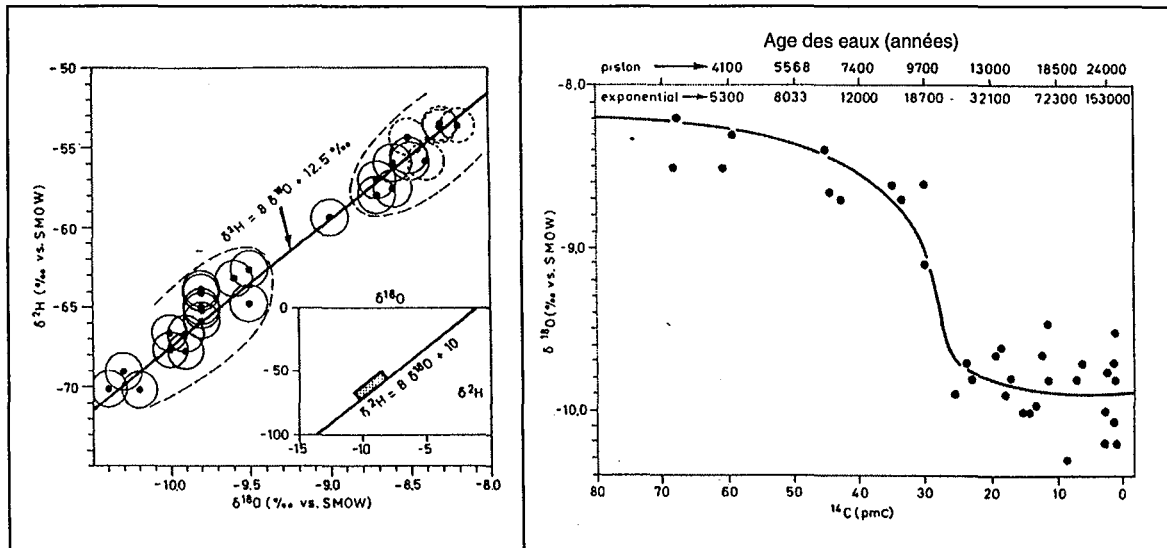


Figure 21 : Relation entre δD et $\delta^{18}\text{O}$ des eaux triasiques de l'Est (Blavoux et Olive, 1981).

Figure 22 : Evolution des $\delta^{18}\text{O}$ en fonction de l'âge des eaux triasiques dans l'Est (Blavoux et Olive, 1981).

Les âges déterminés par le modèle « piston flow » sont proportionnels à la distance parcourue et ne tiennent pas compte d'un mélange avec des eaux rechargées ultérieurement (modèle « exponential flow »). Ils seraient, d'après leurs auteurs, mieux adaptés pour reconstruire l'histoire de ces eaux, car ils démarquent nettement l'enrichissement en isotopes lourds des précipitations à partir de l'Holocène (10^4 ans). Les isochrones ^{14}C divisent l'aquifère en 4 zones (Figure 23). Au Sud de la faille de Vittel les eaux sont jeunes mais au nord de cet accident, les eaux sont nettement plus âgées. Des affleurements de l'Est jusqu'à la Meurthe apparaît une zone de circulation préférentielle avec des eaux jeunes. Une zone plus confinée ressort dans la région houillère de la Sarre.

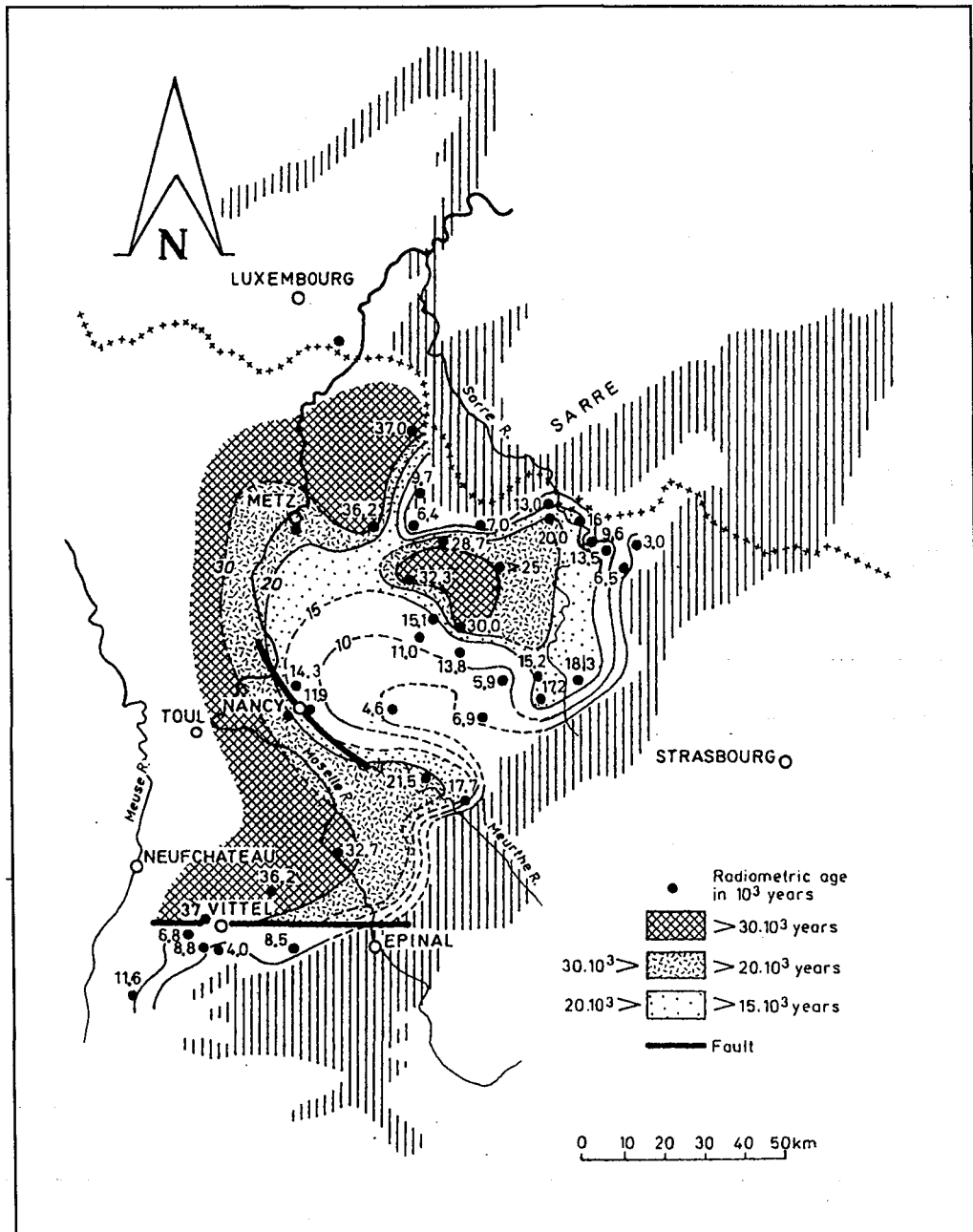
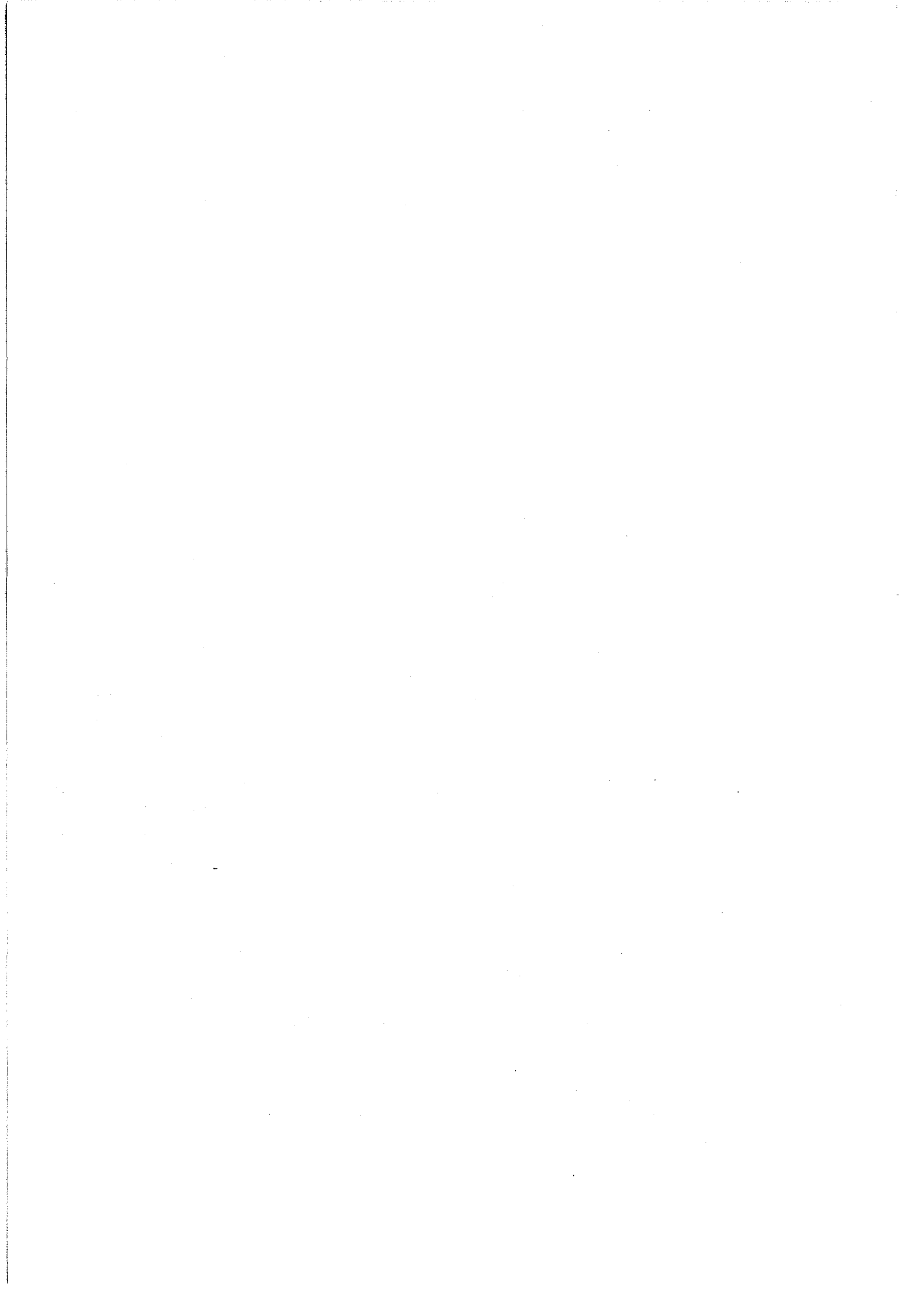


Figure 23 : Isochrones ^{14}C dans l'Est du Trias (Blavoux et Olive, 1981).



Chapitre III : Principe analytique

L'analyse de gaz rares exige, au préalable, un prélèvement spécifique afin d'éviter le dégazage de l'eau et sa contamination par des gaz atmosphériques. La procédure analytique se déroule ensuite selon 4 étapes principales : i) l'extraction des gaz ; ii) la purification des gaz rares ; iii) la séparation des différents gaz rares et iv) l'analyse séquentielle par spectrométrie de masse. Les données brutes obtenues doivent être i) corrigées des blancs procéduraux, ii) tenir compte de la sensibilité de l'installation analytique et iii) corrigées pour la discrimination de masse.

VII. ECHANTILLONNAGE

VII.1. LOCALISATION DES SITES

Les écoulements dans les séries successives du Trias gréseux, du Dogger, de l'Oxfordien et du Tithonien calcaire de la marge orientale du Bassin Parisien sont supposés être globalement de direction Est/Sud-Est - Ouest/Nord-Ouest. Chacune de ces unités affleurant en Lorraine, il est possible en théorie d'observer l'évolution des eaux des aires de recharge vers le centre du bassin afin de contraindre les variations isotopiques non seulement en profondeur mais aussi latéralement. Ce travail a nécessité une campagne d'échantillonnage régionale, la plus étendue possible. En pratique cependant, les nappes de l'Oxfordien et du Tithonien étant insuffisamment productives sous couverture, les forages d'exploitation d'eau sont inexistant dans la zone confinée. Ainsi, notre étude a été restreinte aux forages en production existants et, par voie de conséquence, s'est focalisée sur les aquifères du Trias (Grès Vosgiens) et du Dogger (Bathonien).

Le Trias inférieur, et plus particulièrement l'aquifère des Grès Vosgiens, a été étudié grâce à 15 forages (Tableau 11 et Figure 24) localisés sur les territoires des Vosges (région de Mirecourt-Vittel) et de la Meurthe-et-Moselle (région de Nancy-Baccarat). Les eaux triasiques s'enrichissant en sel à l'Ouest de Nancy (> 1g/l), elles deviennent impropres pour l'exploitation au-delà de cette ville. Les forages AEP disparaissent restreignant alors l'étude géochimique à la frontière orientale de salinité. Pour des raisons de confidentialité, seul un forage captant la nappe plus superficielle des eaux minérales froides de Contrex-Vittel, appartenant à l'aquifère du Muschelkalk supérieur, a pu être échantillonné. L'aquifère du Dogger a été examiné grâce à 4 forages (Tableau 11 et Figure 24) implantés dans le Nord des départements de la Meuse et de la Meurthe et Moselle et de l'ouvrage MSE 101 réalisé pour l'ANDRA à proximité du site de l'Est. Parmi ces 5 forages, 2 correspondent à des eaux d'exhaure de mines (Piennes et Valleroy). Quelques forages, concentrés dans la seule région de Bar-le-Duc, ont permis d'analyser l'eau du Tithonien (Tableau 11 et Figure 24).

Nous envisageons également une étude hydrogéologique à l'échelle locale à l'aide des forages de l'ANDRA réalisés à proximité du site de l'Est (MSE 101, HTM 102, EST 103). Cependant, celle-ci s'est avérée impossible car, à l'exception du MSE101, ces forages se sont révélés dépourvus de fluides. Par conséquent, seul le forage MSE101 a pu faire l'objet d'analyses de gaz rares.

| Forage | Département | Aquifère | Profondeur (m) | pH | Conductivité $\mu\text{S/cm}$ | Température $^{\circ}\text{C}$ |
|---------------------------|-------------|---------------|-------------------|------|----------------------------------|-----------------------------------|
| Agincourt | 54 | Grès Vosgiens | 834 | 7.31 | 1103 | 35.1 |
| Baudricourt | 88 | Grès Vosgiens | 460 | 7.8 | 350 | 23.5 |
| Bénamont | 54 | Grès Vosgiens | 549 | 7.46 | 728 | 29 |
| Chenevières | 54 | Grès Vosgiens | 453 | - | - | - |
| Escles | 88 | Grès Vosgiens | 80 | 5.9 | 101 | 12.3 |
| Essey | 54 | Grès Vosgiens | 681 | 7.35 | 1072 | 29 |
| Florémont | 88 | Grès Vosgiens | | 7.3 | 477 | 22.7 |
| Gélacourt | 54 | Grès Vosgiens | 225 | 7.78 | | |
| Hériménil | 54 | Grès Vosgiens | 412 | 6.77 | 746 | 18.8 |
| La Neuveville ss Montfort | 88 | Grès Vosgiens | 279 | 7.78 | - | - |
| Lunéville | 54 | Grès Vosgiens | 451 | - | - | - |
| Manonviller-Ogeviller | 54 | Grès Vosgiens | 410 | 8.03 | - | - |
| Nancy Thermal | 54 | Grès Vosgiens | 850 | 6.98 | - | 36 |
| Rozelieures | 54 | Grès Vosgiens | 500 | 6.78 | 1077 | 21.8 |
| St Clément | 54 | Grès Vosgiens | 319 | 7.7 | 704 | 19.6 |
| Tomblaine | 54 | Grès Vosgiens | 708 | 7.56 | 1700 | 28.3 |
| Valfroicourt | 88 | Grès Vosgiens | 150 | 7.06 | 352 | 14.3 |
| Varangéville | 54 | Grès Vosgiens | 590 | 7.14 | 1039 | 24.5 |
| Contrexéville | 88 | Buntsandstein | 30 | - | | |
| Courbessaux | 54 | Rhétien | 32 | 6.76 | 660 | 11.4 |
| Etain | 55 | Dogger | 288 | 7.65 | 696 | 15 |
| MSE101 ANDRA | 55 | Dogger | 660-805 | 8.03 | 6620 | 7.4 |
| Piennes | 54 | Dogger | 240 | 6.93 | 4880 | 15.4 |
| Rouvres-en-Woëvre | 55 | Dogger | 105 | 8.52 | 917 | 13.4 |
| Valleroy | 54 | Dogger | 165 | 7.15 | 937 | 11.9 |
| Auzécourt | 55 | Tithonien | 153 | 7.65 | 493 | 13.9 |
| Bonnet | 55 | Tithonien | 60 | 6.97 | 970 | 13 |
| Gondrecourt-le-Château | 55 | Tithonien | 60 | 6.7 | 402 | 10.4 |
| Guerpont | 55 | Tithonien | 40 | 7.03 | 514 | 11.6 |
| Laheyrcourt | 55 | Tithonien | 100 | 7.52 | 574 | 12.1 |
| Laimont | 55 | Tithonien | 109 | 7.31 | 578 | 11.3 |
| Neuville/Ornain (Droite) | 55 | Tithonien | 25 | 7.27 | 595 | 11.5 |
| Neuville/Ornain (Gauche) | 55 | Tithonien | 25 | 7.44 | 523 | 13.8 |
| Ribeaucourt | 55 | Tithonien | 20 | 7.2 | 497 | 10.9 |

Tableau 11 : Liste des forages échantillonnés au cours de cette étude et leurs caractéristiques.

VII.2. LES PRELEVEMENTS

VII.2.1. Les prélèvements d'eaux souterraines

Lors de l'échantillonnage, il est impératif d'éviter toute contamination atmosphérique et tout dégazage du fluide profond. Pour cela, le fluide est prélevé en tête de forage sous pression, par circulation de ce fluide dans un système de dérivation où est situé le conteneur de prélèvement (Figure 25 ; Weiss, 1968).

Le dispositif de dérivation est constitué de tuyaux en plastique transparent afin de vérifier qu'il n'y ait pas d'exsolution des gaz. Les conteneurs, insérés entre les 2 tuyaux plastifiés, sont des tubes de cuivre doux d'un volume de 8 cm³. Après 5 minutes de circulation des fluides dans le système et après vérification de l'absence de bulles d'air sur les parois du dispositif, les tubes sont scellés par pincement des extrémités entre des mâchoires en acier munies d'un système de serrage à vis.

Le choix du matériau du conteneur est essentiel car l'hélium possède un coefficient de diffusion important dans certains verres (i.e. : quartz) et composés organiques (Barer, 1957; Vostrov and Bol'shakov, 1966). Avec des tubes en Cu, les pertes d'hélium par diffusion solide sont de l'ordre de 0.1 % de la concentration initiale en 10.000 ans pour un facteur de fuite d'hélium de 7.14×10^{-20} mol ⁴He.sec⁻¹.atm⁻¹ (Weiss, 1968). Pour chaque forage, quatre tubes ont été prélevés, un pour l'hélium et le néon, un pour les paléotempératures, et deux de réserve.

Au laboratoire, les tubes sont reliés à une ligne d'extraction et mis à dégazer sous vide avant l'analyse.

Nous avons également prélevé des échantillons d'eau brute dans des flacons en polyéthylène haute densité (Nalgène®), afin d'analyser :

- les isotopes stables de l'oxygène et l'hydrogène ;
- les éléments majeurs et en trace. Les analyses chimiques requièrent que les échantillons d'eau brute soient filtrés à 0.2 µm et acidifiés avec de l'acide nitrique titré à 15N sur site ;
- l'activité en ¹⁴C par AMS (Accelerator Mass Spectrometry).

Le pH, la conductivité et la température ont été mesurés sur site.

VII.2.2. Les prélèvements de roches

Afin de déterminer la production d'isotopes radiogéniques de gaz rares, nous avons prélevé 13 échantillons de roches sur les forages carottés du MSE101 et HTM102. Les roches prélevées sont stockées dans des sacs en plastique jusqu'à ce qu'elles soient analysées.

Les roches destinées aux expériences de diffusion (cf. partie II) ont été prélevées dans des carrières en exploitation (à Rothbach pour les Grès Vosgiens et à Viterne pour les calcaires du Dogger) ou extraites du forage ANDRA EST 104 pour les argiles du Callovo-Oxfordien. Immédiatement après leur prélèvement, les échantillons sont isolés de toute contamination atmosphérique : ils sont introduits dans des tubes en inox munis d'une vanne étanche, dans lesquels un vide primaire est réalisé à l'aide d'une pompe à palette alimentée par un groupe électrogène.

L'utilisation des équations de diffusion (partie II) requiert d'étudier des échantillons de forme géométrique précise. Nous avons choisi d'utiliser des formes sphériques (1 cm de diamètre).

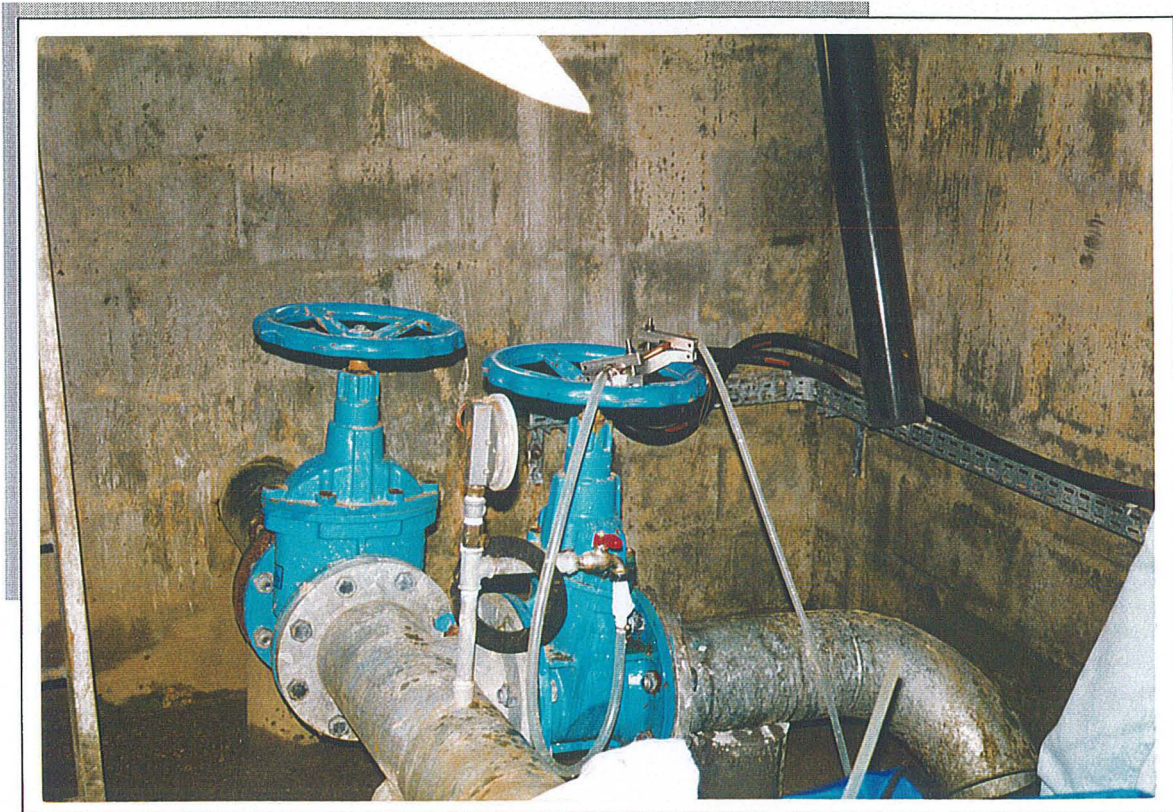


Figure 25 : Prélèvement de gaz rares en tête de forage (Valfroicourt-Vosges) : L'eau arrivant en tête de puits est dérivée vers un dispositif constitué d'un flexible en plastique transparent, d'un conteneur (tube en Cu) et d'un second flexible. En écrasant les mâchoires en acier placées à chaque extrémité du tube, ce dernier est scellé. Le volume prélevé à l'abri de l'air est de 8 cm^3 .



Figure 26 : Prélèvements de roches dans une carrière (Rotbach : Grès Vosgiens).

VIII. EXTRACTION DES GAZ RARES DES ECHANTILLONS

- Cas des eaux souterraines

Les tubes de cuivre contenant l'échantillon sont connectés à la ligne d'extraction-purification de gaz rares (Figure 28). L'eau est libérée par ouverture de la pince inférieure des tubes et « flashée » dans un réservoir en inox sous vide de 50 cm³. Du fait de leur faible solubilité, les gaz rares se concentrent dans la phase vapeur. Nous avons calculé le nombre de moles de gaz rares passé dans la phase gazeuse $[i]_g$ à partir de la loi de Henry et celle des gaz parfaits :

$$[i]_g = [i]_t \times [\{ (T \times 22414) / (K_i \times 273.15 \times 18) \} \times (V_{H_2O} / V_g) + 1]^{-1}$$

T : température en Kelvin

V_g et V_{H_2O} : volume de gaz et volume de gaz

$[i]_t$: nombre de moles total

Il en résulte que plus de 99% des gaz rares sont extraits de l'eau.

- Cas des roches

Pour la détermination des quantités totales de gaz rares dans les échantillons de roches, une fraction d'environ 0.05 - 0.5 g et de 0.2 - 0.6 mm est introduite dans un tube en acier inoxydable, mise sous vide (Figure 28) et étuvée durant quelques jours à 200°C. L'échantillon est ensuite poussé à l'aide un barreau aimanté dans un creuset en Mo puis chauffé à la température de 1700°C au moyen d'un four placé dans une enceinte sous vide. La roche fondue libère ainsi les gaz emprisonnés (Tolstikhin et al., 1996).

En fonction de la pression indiquée par la jauge Pirani de la ligne, une fraction de gaz est prélevée pour être purifiée dans la suite de la ligne.

IX. PURIFICATION DE LA PHASE GAZEUSE EXTRAITE

IX.1. PRESENTATION DE LA RAMPE DE PURIFICATION

La purification des gaz s'effectue dans une ligne ultravide (Figure 28 ; Marty, 1988), composée de différents volumes en métal inoxydable et individualisés par l'intermédiaire de vannes étanches (Swagelock VCR® ou Meca2000®).

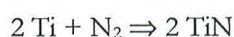
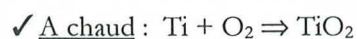
Le vide, assuré par une pompe ionique et par une pompe turbo-moléculaire, reliée en aval à une pompe à palette (vide primaire de 10⁻³ mbar), est de l'ordre de 3 x 10⁻⁹ mbar en dynamique et 10⁻⁷ mbar en statique.

Un piège à froid (N₂ liquide) prévient contre des remontées de vapeurs d'huile échappées de la pompe primaire.

Afin de s'affranchir des problèmes d'adsorption de gaz sur les parois, les surfaces internes doivent être polies et les différents éléments étuvés régulièrement à 200°C (d'où l'utilisation de joints en cuivre pour relier les volumes entre eux). La pression est contrôlée par une jauge ionique.

La purification à proprement parler consiste à envoyer la phase gazeuse extraite de l'échantillon sur une série de pièges successifs constitués par des cylindres en acier inoxydable contenant :

- de la mousse de titane. Chauffés à 800°C puis refroidis à 20°C, ces pièges, communément appelés getters, retirent les espèces réactives (H₂O, CO₂, N₂, etc ...) selon les réactions :



- des charbons actifs refroidis à la température de l'azote liquide (-195.8°C). Ils éliminent les gaz réactifs résiduels dont le point d'ébullition est supérieur à celui de l'azote (CO₂, gaz rares lourds Ar, Kr et Xe) ;

Les pièges peuvent être régénérés ou dégazés à haute température (900°C pour Ti et 200°C pour les charbons actifs).

L'installation comprend également deux volumes d'environ deux litres, renfermant des gaz de composition connue appelés standards (cf. X.3), reliés à la ligne par des pipettes, doubles vannes emprisonnant un volume connu. L'un est composé de gaz rares en proportion identique à ceux de l'air (Ch I). L'autre est un gaz géothermal (enrichi en ³He). Les extrémités des pipettes comprennent une vanne permettant de prélever un volume précis de gaz.

IX.2. SEPARATION DES GAZ RARES PAR CRYOGENIE

Les gaz rares restant dans la ligne après purification doivent être séparés afin d'être envoyés séquentiellement dans le spectromètre de masse. Cette précaution permet d'optimiser le rendement du spectromètre puisque la pression du gaz à analyser est maximale pour une pression totale minimum. En outre, l'analyse simultanée de tous les gaz exigerait un temps trop important d'ionisation des gaz et peut provoquer des problèmes d'interférence de masse.

La séparation s'effectue par l'intermédiaire d'un piège cryogénique (cryodiffusion®) constitué :

- d'une grille (mailles de 0.25 μm de diamètre) en métal inoxydable, qui adsorbe ou désorbe les gaz en fonction de la température (Tableau 12). La tête froide est isolée dans une enceinte sous vide pour annihiler les pertes par convection ;
- d'un compresseur à hélium, qui permet d'atteindre de très faibles températures ;
- d'un régulateur de température (thermocouple Pt-Pt/Rh) pour imposer les consignes appropriées à ± 0.3 °C.

| Gaz rares | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|------------|------|------|------|-------|-------|
| Piégeage | 9 K | 15 K | 40 K | 91 K | 119 K |
| Désorption | 15 K | 40 K | 91 K | 119 K | 150 K |

Tableau 12 : Température de piégeage et de désorption des gaz rares.

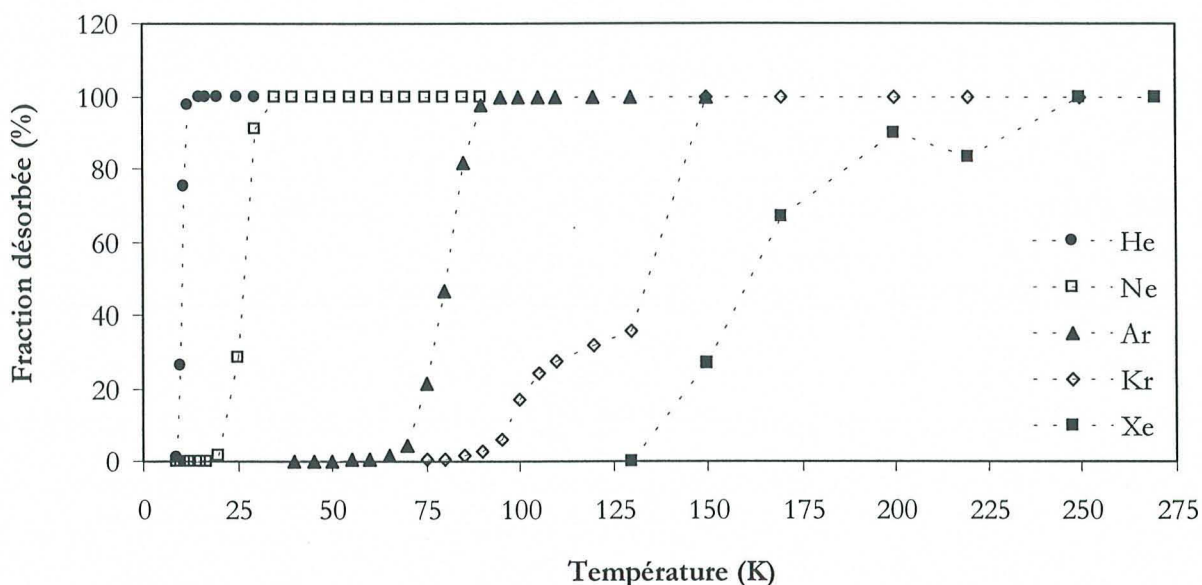


Figure 27 : Courbes expérimentales de désorption des gaz rares en fonction de la température.

IX.3. PROCEDURE TYPE :

Prenons l'exemple d'une analyse d'hélium et de néon dans un échantillon d'eau souterraine :

- a) Libération du fluide contenu dans le tube en Cu dans un volume de la ligne sous-vide :

$$V_{\text{tube}} \rightarrow V_{\text{tube}} + V_{\text{eau}} + V_{\text{trap}}$$

- b) Prise d'une aliquote de la phase vapeur et détente dans un autre volume :

$$V_{\text{trap}} \rightarrow V_{\text{trap}} + V_{\text{f1}}$$

- c) Piégeage dans des charbons actifs refroidis par de l'azote liquide 10 minutes :

$$V_{\text{f1}} \rightarrow V_{\text{f1}} + V_{\text{ca}}$$

- d) Détente du gaz pour piégeage dans de nouveaux charbons actifs refroidis par de l'azote liquide 20 minutes et dans de la mousse de titane 10' à 800°C puis 10' à 20°C :

$$V_{\text{f1}} \rightarrow V_{\text{f1}} + V_{\text{fca1}} + V_{\text{f2}} + V_{\text{ca}'} + V_{\text{gt}}$$

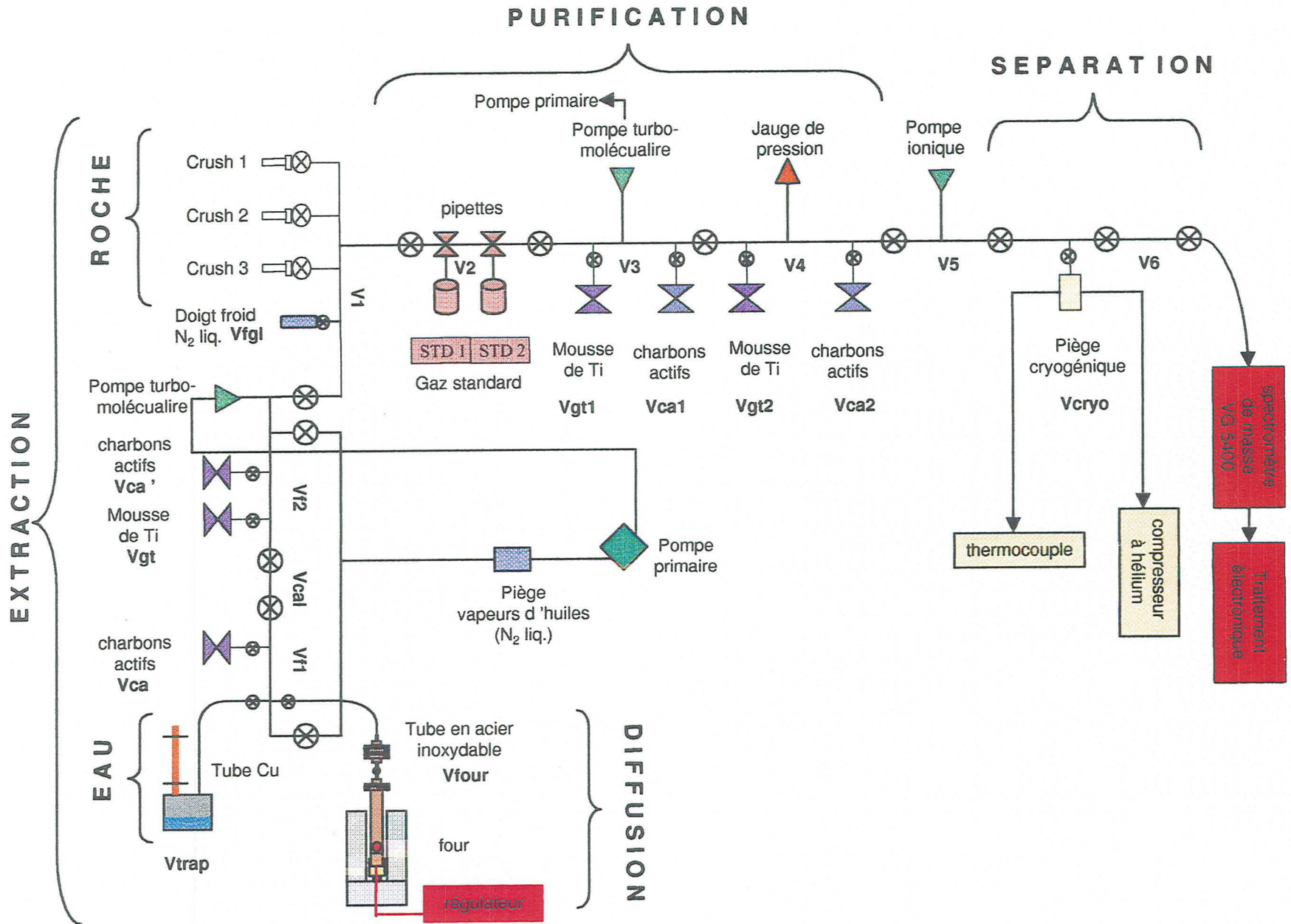
- e) Détente du gaz et piégeage dans de la mousse de Ti 10' à 800°C puis 10' à 20°C :

$$V_{\text{f2}} \rightarrow V_{\text{f2}} + V_{\text{1-3}} + V_{\text{gt1}}$$

- f) Piégeage dans de la mousse de Ti 10' à 800°C puis 10' à 20°C :

$$V_{\text{1-3}} + V_{\text{gt1}} \rightarrow V_{\text{1-6}} + V_{\text{gt1}} + V_{\text{gt2}}$$

Figure 28 : la ligne d'extraction – purification et séparation des gaz rares.



g) Piégeage du néon dans la tête froide à 15K :

$$V1-3 + Vgt1 \rightarrow V1-6 + Vgt1 + Vgt2 + Vcryo$$

h) Envoi de l'hélium surnageant dans le spectromètre de masse :

$$V1-3 + Vgt1 \rightarrow V1-6 + Vgt1 + Vgt2 + Vcryo + Vms$$

i) Désorption du néon à 40K, puis envoi vers le spectromètre de masse :

$$Vcryo \rightarrow Vcryo + V5-6 + Vms$$

X. SPECTROMETRE DE MASSE

Durant cette étude, nous avons utilisé deux analyseurs :

- un spectromètre de masse VG 5400 optimisé pour l'analyse isotopique de l'hélium, et notamment d'hélium radiogénique, donc de très faibles signaux de ^3He ;
- un spectromètre de masse VG 603 spécialement développé pour l'analyse élémentaire des gaz rares et celle des rapports isotopiques $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ dans des échantillons d'eaux souterraines. Une seconde ligne d'extraction-purification, construite sur le modèle de celle reliée au VG 5400, a été alors spécifiquement conçue pour l'analyse de ces eaux par le VG 603.

La description des principes analytiques est basée sur le premier instrument. Nous spécifierons à la fin de cette section les caractéristiques du VG 603.

X.1. PRINCIPE

Le spectromètre de masse (VG5400, Fisons Instruments®) à secteur magnétique fonctionnant en mode statique est constitué par :

- *une source de type Nier* (Figure 29) pour ioniser l'échantillon gazeux. Le filament est chauffé de façon à émettre des électrons. Ces derniers sont i) focalisés de façon à former un faisceau, ii) accélérés par une différence de potentiel entre le filament et la chambre d'ionisation, iii) et recueillis par une anode appelée trappe. Pour augmenter le rendement de la source, un champ magnétique parallèle est appliqué au faisceau d'électrons. Ces derniers évoluent alors autour des lignes de champ en décrivant un mouvement hélicoïdal, ce qui augmente leurs parcours et leur probabilité d'ionisation. Les ions formés à partir du bombardement de l'échantillon par les électrons sont extraits de la chambre par l'action conjuguée d'une électrode repousseuse, qui évite la fuite des ions en arrière, et du champ électrique créé par une différence de potentiel entre la chambre et les fentes de sortie des ions. La source est modifiée « Bright » afin de travailler à des courants supérieurs à 1 A, ce qui permet d'obtenir de hautes sensibilités lors de l'analyse de l'hélium.

- *un aimant* pour séparer les ions (Figure 30). Les ions de charge q , de masse m , lancés avec une vitesse \vec{v} sont soumis à l'action d'un champ magnétique \vec{B} , perpendiculaire à \vec{v} . Ils décrivent une trajectoire circulaire de rayon $r = \frac{mv}{qB}$ (Loi de Laplace). Le rayon de courbure étendu de l'aimant (54cm) permet

de couvrir un large spectre de masse et d'obtenir une résolution élevée de 650, à $\pm 2\%$ de vallée, tout en conservant une bonne sensibilité même pour les gaz lourds ;

- deux collecteurs d'ions : i) Une cage de Faraday, cible métallique reliée à la masse par une résistance de haute valeur ($10^{11} \Omega$). Les ions en s'y déchargeant créent un courant électrique, donc une différence de potentiel mesurable aux bornes de la résistance. Elle est essentiellement utilisée pour mesurer des intensités élevées, donc les isotopes de gaz rares les plus abondants (^4He , ^{20}Ne , ^{40}Ar).
 ii) Un multiplicateur d'électrons (Figure 31) relié à une unité de comptage d'ions (résistance de $10^{13} \Omega$) permet de détecter les faibles intensités émises par les isotopes les moins abondants (^3He , $^{21-22}\text{Ne}$, $^{36-38}\text{Ar}$, Kr et Xe).

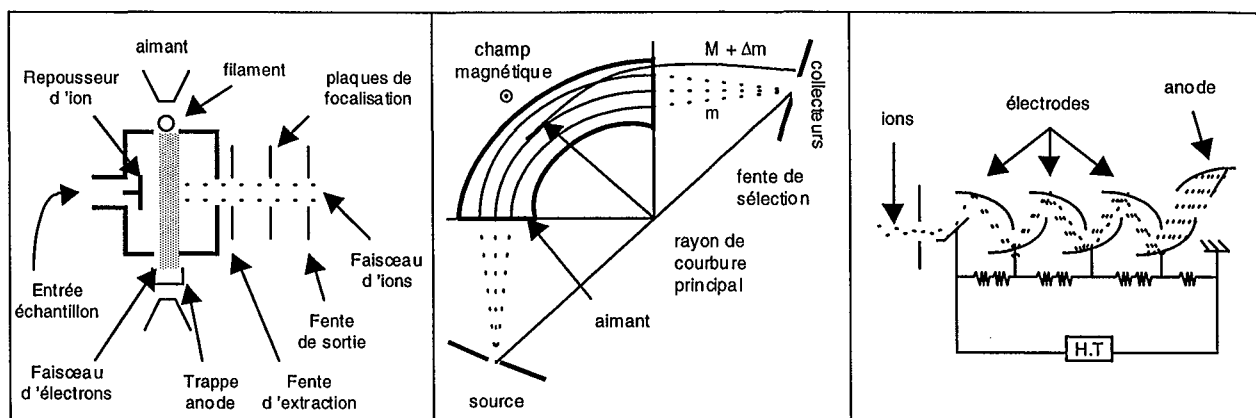


Figure 29 : Source de type Nier

Figure 30 : Séparateur magnétique

Figure 31 : Multiplicateur d'électrons

Afin d'optimiser les mesures, l'hélium a été analysé avec un courant de trappe de $800 \mu\text{A}$ et une énergie d'ionisation de 98 eV . Les abondances de néon peuvent également être déterminées dans ces mêmes conditions.

Les autres gaz rares sont analysés avec un courant de trappe de $200 \mu\text{A}$ et une énergie d'ionisation de 38 eV sur un spectromètre VG 603. Cet appareil à déviation magnétique de position verticale possède un rayon de courbure 8 cm . La variation de haute tension est utilisée pour la discrimination des masses faite de sonde de Hall sur l'électro-aimant. Comme le VG 603 est doté d'une monocollection, il ne permet pas la double mesure cage de Faraday - multiplicateur d'électrons. De plus, le multiplicateur d'électrons n'était pas en état de fonctionnement lors de cette étude. Ainsi, les mesures ont été faites seulement sur la cage de Faraday et les abondances en Xe et les rapports isotopiques $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$; $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ et $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ n'ont pu être déterminés.

Les sensibilités des deux appareils vis à vis des gaz analysés sont discutées dans le paragraphe suivant.

X.2. LES CONTRIBUTIONS PARASITES

Certains éléments ayant la même masse que des isotopes de gaz rares, des interférences isobariques peuvent avoir lieu (Tableau 13).

| Isotopes mesurés | Isotopes parasites |
|------------------|---|
| ^3He | $\text{HD}^+ ; \text{H}_3^+$ |
| ^{20}Ne | $^{40}\text{Ar}^{2+} ; \text{H}_2^{18}\text{O}^+$ (double ionisation) |
| ^{21}Ne | $^{20}\text{NeH}^+ ; \text{C}_3\text{H}_6$ (double ionisation) |
| ^{22}Ne | CO_2^{2+} (double ionisation) |
| ^{78}Kr | C_6H_6 |

Tableau 13 : les éléments interférant sur la mesure des différents isotopes de gaz rares.

Etant effectuées en mode statique, les analyses vont contribuer à la formation d'hydrogène et favoriser des interférences sur $^3\text{He}^+$. Bien que des pièges (Ti-Zr-Al) absorbent en continu H_2 relâché dans la partie instrumentale, les pics HD^+ et H_3^+ sont plus larges que celui de $^3\text{He}^+$. Le pouvoir de résolution (PR) élevé de l'installation (650 pour le VG 5400) permet de séparer ces 2 pics et de s'affranchir de cette contribution (Figure 32).

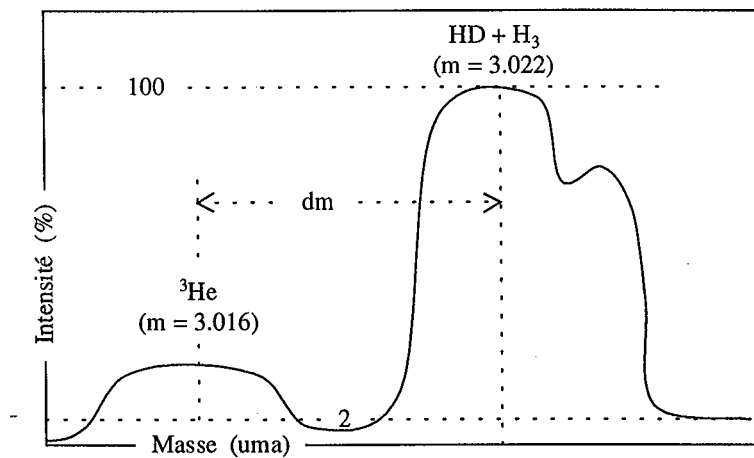


Figure 32 : Pouvoir de résolution théorique pour la masse 3 : $\text{PR} = m/dm \approx 500$.

Le facteur de double ionisation $\alpha(40)$ est déterminé à partir de la mesure du rapport $^{20}\text{Ne}/^{40}\text{Ar}$ et du signal obtenu sur la masse 20 lors de l'analyse de l'argon. Le facteur $\beta(44)$ peut être également calculé :

$$\beta = \frac{(22)_{\text{ion}} \cdot \left(\frac{20}{22}\right) - (20)_{\text{ion}} + \alpha(40)}{(44) \cdot \left(\frac{20}{22}\right)}$$

Pour réduire les risques de double-ionisation ($^{40}\text{Ar}^{2+}$) lors de l'analyse du néon, un piège contenant des charbons actifs et refroidi à la température de l'azote liquide est ouvert.

X.3. CALIBRATION

L'installation analytique est calibrée i) en analysant des quantités connues de gaz rares (standard) ii) en mesurant la sensibilité et iii) en effectuant des spectres résiduels (blancs).

- Standard :

Plusieurs gaz standard sont utilisés : un standard enrichi en He et Ne de l'air permet de calibrer les analyses isotopiques de He. Un second composé d'air est employé pour les analyses de Ne, Ar, Kr et Xe. Enfin, un standard contenant un gaz enrichi en ^3He (gaz géothermal de la réunion) est réservé pour l'analyse de gaz enrichi en ^3He .

Les concentrations en gaz rares des standards diminuent avec le nombre de pipettes prélevées. Ainsi, après chaque prise d'une aliquote de standard, les concentrations sont recalculées selon :

$$n_i^m = n_i^0 \cdot \left(\frac{V_{\text{ballon}}}{V_{\text{ballon}} + V_{\text{pipette}}} \right)^m$$

où n_i est le nombre de mole du gaz i dans le standard au bout de m prélèvements ; n_0 la concentration initiale du gaz i ; V_{ballon} et V_{pipette} les volumes respectifs du standard et de la pipette.

Le nombre de pipettes envoyées pour l'étalonnage est en relation avec les concentrations de gaz des échantillons, afin de travailler avec des pressions comparables.

- Sensibilité

Lors de la mesure des abondances de certains gaz rares, il peut apparaître une dépendance du signal en fonction de la pression partielle du gaz. Le signal peut également varier au cours du temps du fait de dérive de l'électronique de l'analyseur. Pour contrôler cette tendance, nous calculons le rapport du courant ionique sur la pression partielle du gaz, c'est-à-dire la sensibilité de l'appareil :

$$\text{Sensibilité (A/torr)} = \frac{\text{signal (volts)}}{[\text{résistance du collecteur } (\Omega) \cdot \text{pression du gaz (torrs)}]}$$

Comme le gaz est supposé se comporter comme un gaz parfait, il est possible de calculer sa pression partielle.

Le Tableau 14 montre les différences de sensibilités définies pour chacun des gaz rares selon le spectromètre utilisé.

| Sensibilité (A/torr) | He | Ne | Ar | Kr |
|----------------------|--------------------|--------------------|----------------------|--------------------|
| VG 5400 | 4×10^{-4} | 5×10^{-3} | 5×10^{-4} | 6×10^{-4} |
| VG 603 | 10^{-5} | 10^{-5} | 2.2×10^{-4} | 2×10^{-4} |

Tableau 14 : Comparaison des sensibilités obtenues pour les différents gaz rares en fonction du spectromètre de masse utilisé.

La sensibilité sur les abondances (Figure 33) oscille de ± 2 à 5% pour respectivement Ar, He et Ne sur une période de 4 mois. Les rapports isotopiques d'argon dérivent de $\pm 0.5\%$ pour le même intervalle de temps (Figure 33).

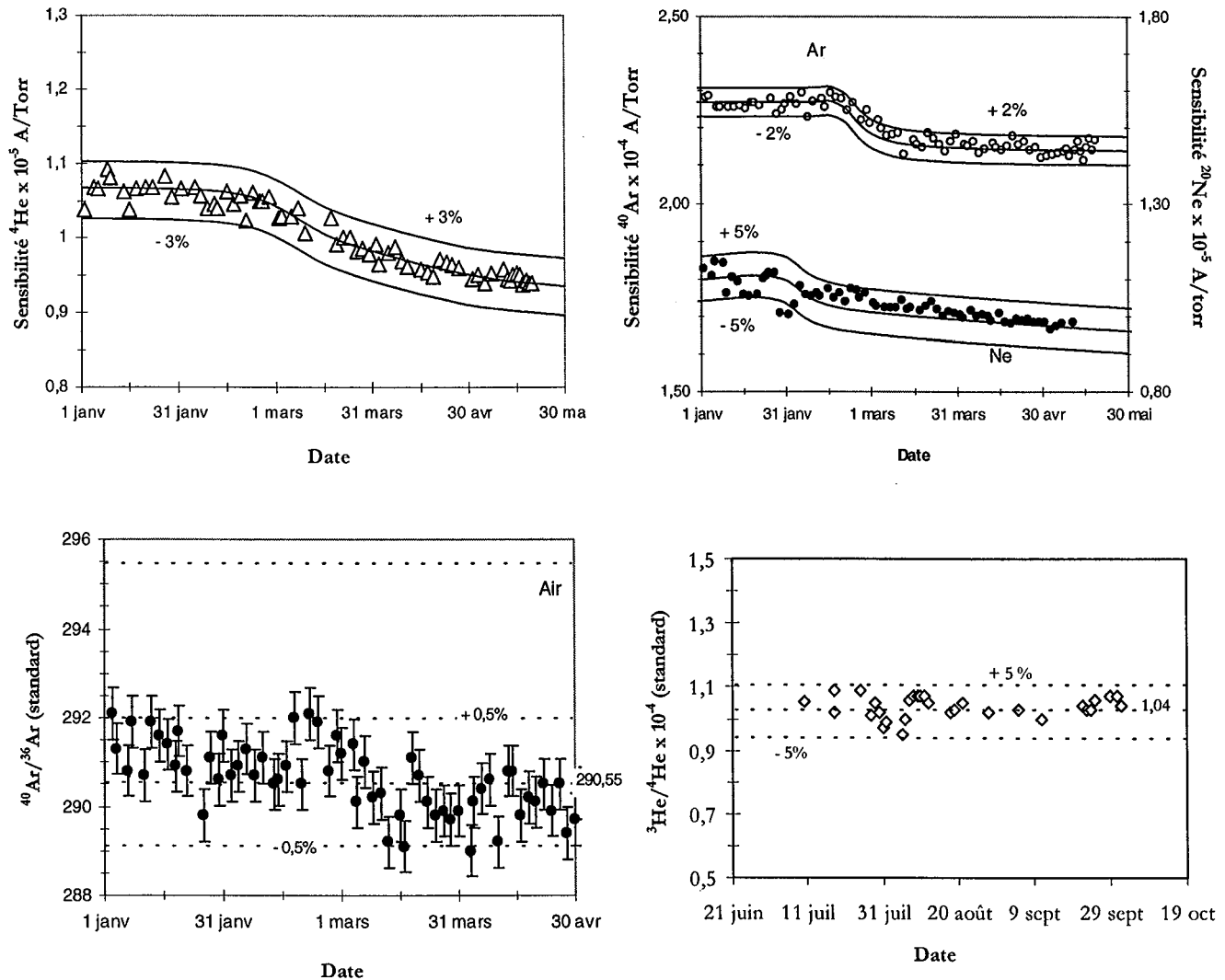


Figure 33 : Variation de la sensibilité en He, Ne et Ar et du rapport $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ au cours du temps avec le VG 603 et du rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ du standard atmosphérique pour le VG 5400.

- Blancs procéduraux

Avant chaque analyse d'échantillon et suivant le même protocole analytique (dilutions, purifications et conditions de réglage du spectromètre identiques), sont établis des spectres résiduels afin de vérifier que les pièges de la ligne, principale source de dégazage, n'affectent pas les mesures. Ces blancs ont toujours été négligeables devant les abondances de gaz rares des échantillons (Tableau 15).

| Gaz rare | ^4He | ^{20}Ne | ^{40}Ar | ^{84}Kr | ^{130}Xe |
|----------------------|-------------------------|-------------------------|--------------------------|------------------|---------------------|
| Blancs VG 5400 (mol) | $3 - 5 \times 10^{-15}$ | $3 - 5 \times 10^{-16}$ | $3 - 15 \times 10^{-14}$ | non détecté | 8×10^{-20} |
| Blancs VG 603 (mol) | non détecté | non détecté | $5 - 8 \times 10^{-13}$ | non détecté | - |

Tableau 15 : Moyenne des blancs analytiques.

XI. PRESENTATION DES RESULTATS

XI.1. CORRECTION DES DONNEES

Le nombre de moles de gaz rares est calculé à partir du signal obtenu sur la masse correspondante et des paramètres de calibration de l'installation :

$$A = \frac{I_a \times V_i}{R \times S \times D \times 760 \times V_m}$$

A : nombre de moles du gaz A

I_a : signal sur la masse associé au gaz A (V)

V_i : volume initial de l'échantillon (cm³)

R : résistance du collecteur (Ω)

S : sensibilité (A/Torr)

D : coefficient de dilution

V_m : volume molaire du gaz à température et pression normales (cm³/mol)

Les abondances de gaz rares sont ensuite déterminées et corrigées des quantités de gaz résiduel dégazées par la ligne d'extraction-purification :

$$[A]_{\text{corrigé}} = \frac{A_{\text{éch.}} - A_{\text{blanc}}}{m}$$

$[A]_{\text{corrigé}}$: concentration du gaz A dans l'échantillon (mol/g)

$A_{\text{éch.}}$: nombre de moles du gaz A dans l'échantillon

A_{blanc} : nombre de moles du gaz A dans le blanc analytique

m : masse de l'échantillon (g)

Les rapports isotopiques mesurés sont corrigés de la discrimination de masse tels que

$$(R)_{\text{corrigé}} = \frac{\frac{A_{\text{éch.}} - A_{\text{blanc}}}{\left(\frac{A_{\text{éch.}}}{R_{\text{éch.}}}\right) - \left(\frac{A_{\text{blanc}}}{R_{\text{blanc}}}\right)}}{(R)_{\text{standard}}} \times (R)_{\text{air}}$$

$A_{\text{éch.}}$: nombre de moles du gaz A dans l'échantillon

A_{blanc} : nombre de moles du gaz A dans le blanc analytique

R : rapport isotopique du gaz A

XI.2. PRECISION SUR LES ANALYSES

Les abondances de gaz rares sont déterminées à $\pm 15\%$. La précision sur les rapports isotopiques est calculée pour chaque échantillon en fonction des écarts-types σ des rapports isotopiques de l'échantillon, du blanc résiduel et du standard :

$$\sigma(R)_{\text{corrigé}} = (R)_{\text{corrigé}} \times \sqrt{\{\sigma(R)_{\text{éch.}}\}^2 + \{\sigma(R)_{\text{standard}}\}^2 + \left[\frac{A_{\text{blanc}}}{A_{\text{éch.}}} \times \{\sigma(R)_{\text{blanc}}\}^2 \right]}$$

$\sigma(R)_{\text{corrigé}}$: écart-type du rapport isotopique R de l'échantillon corrigé

$\sigma(R)_{\text{éch.}}$: écart-type du rapport isotopique R de l'échantillon mesuré

$\sigma(R)_{\text{standard}}$: écart-type du rapport isotopique R du standard mesuré

$\sigma(R)_{\text{blanc}}$: écart-type du rapport isotopique R du blanc mesuré

$A_{\text{éch.}}$: nombre de moles du gaz A dans l'échantillon

A_{blanc} : nombre de moles du gaz A dans le blanc analytique

$(R)_{\text{corrigé}}$: rapport isotopique du gaz A corrigé du blanc et du standard

XI.3. REPRODUCTIBILITE

La reproductibilité des analyses a été définie par passage de 7 échantillons d'eau distillée, préparés au laboratoire à une température de 18°C. Les résultats sont reportés ci-dessous (Tableau 16).

| Eau distillée | He x 10 ⁻¹² | Ne x 10 ⁻¹² | Ar x 10 ⁻⁸ | Kr x 10 ⁻¹² | ⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar | T (°C) |
|--------------------|------------------------|------------------------|-----------------------|------------------------|------------------------------------|------------|
| Valeurs théoriques | 2.1 | 7.9 | 1.5 | 1.9 | 295.5 | 18 |
| Valeurs mesurées | 2.5 ± 0.5 | 10 ± 2 | 1.5 ± 0.2 | 2.5 ± 0.4 | 295.8 ± 0.5 | 17.3 ± 0.8 |

Tableau 16 : Reproductibilité des analyses pour un échantillon d'eau distillée (VG 603).

Notons que les variations obtenues sur les concentrations en Ne, Ar et Kr entrent dans l'incertitude sur la mesure et n'engendrent pas de différences importantes dans la détermination des paléotempératures effectuées à l'aide du programme « paleotemp » (Pinti and Van Drom, 1998). En effet, comparée à la valeur théorique de 18°C, la moyenne des 7 paléotempératures estimées est de 17.3 ± 0.3°C.

D'autre part, R. Pik, lors d'un séjour à l'ETH Zurich, a analysé 4 échantillons d'eaux prélevés dans l'aquifère du Trias, sur l'installation développée par U. Beyerle, W. Aeschbach-Hertig, D. Imboden et R. Kipfer. Nous avons analysé des duplicats de ces échantillons à Nancy avec le VG 603, afin de vérifier la reproductibilité externe des mesures.

| | | He x 10 ⁻¹⁰ (mol/g) | Ne x 10 ⁻¹¹ (mol/g) | Ar x 10 ⁻⁸ (mol/g) | Kr x 10 ⁻¹² (mol/g) | ⁴ He/ ²⁰ Ne | ³ He/ ⁴ He x 10 ⁻⁷ | ⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar | T (°C) |
|-------------|-------|-----------------------------------|-----------------------------------|----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|--|------------------------------------|-----------|
| Agincourt | ETH | 28 | 1.3 | 2.1 | 5.1 | 224 | 5.9 | 300.2 | 3.5 |
| | CRPG | 23 | 1.2 | 1.8 | 3.4 | 197 | 5.7 | 300.2 | 3.7 |
| | Δ (%) | 19 | 6.5 | 17 | 38 | 13 | 4.5 | - | 5.5 |
| Chenevières | ETH | 9.5 | 1.4 | 2.4 | 5.6 | 67 | 4.3 | 295.0 | 1.5 |
| | CRPG | 14.5 | 1.7 | 2.6 | 4.4 | 89 | 3.7 | 296.6 | 1.7 |
| | Δ (%) | 44 | 17 | 6.5 | 24 | 28 | 15 | 0.6 | 12.5 |
| Escles | ETH | 0.09 | 0.9 | 1.8 | 4.3 | 0.9 | 5.4 | 295.3 | 9.1 |
| | CRPG | 0.10 | 1.0 | 1.8 | 3.3 | 1.1 | 4.4 | 295.3 | 10.8 |
| | Δ (%) | 13 | 0.7 | 0.9 | 26 | 14 | 21 | - | 17 |
| Nancy | ETH | 214 | 1.2 | 2.2 | 4.8 | 1856 | 4.2 | 312.0 | 4.9 |
| | CRPG | 285 | 1.3 | 2.2 | 3.9 | 2176 | 4.0 | 311.2 | 5.1 |
| | Δ (%) | 28 | 13 | 2 | 20 | 16 | 5.3 | 0.2 | 4 |

Tableau 17 : Ecarts entre les mesures effectuées au CRPG (VG 603 sauf ³He/⁴He : VG 5400) et celles à l'ETH (Zurich).

La différence observée pour l'hélium est importante (13 à 44%) mais la gamme des concentrations s'échelonnant sur 4 ordres de grandeur pour l'ensemble des échantillons, les implications géochimiques sont faibles. Un raisonnement similaire peut être établi pour le rapport He/Ne (13 - 28%). Les rapports ³He/⁴He varient également (4.5 à 21%), mais restent pratiquement toujours dans l'incertitude pour les faibles valeurs de ces rapports. Pour l'argon et le krypton, les écarts peuvent s'avérer conséquents, respectivement 0.9 à 17% et 20 à 38% et entraîner des problèmes lors de la détermination des paléotempératures de recharge. Toutefois, la comparaison des températures montre des différences acceptables puisque comprises entre 0.2 et 1.7°C, soit 4 à 17%. Ces variations peuvent être le résultat d'un dégazage, ayant lieu lors de l'échantillonnage (par exemple, remontée des fluides lente dans le forage, formation de bulles). Ainsi, les différents tubes ne présentent pas une composition identique. Enfin, les écarts sur les rapports isotopiques ⁴⁰Ar/³⁶Ar sont très faibles (< 0.6%).

XI.4. CORRECTION DU RAPPORT ISOTOPIQUE DE L'HELIUM

Les rapports isotopiques de l'hélium peuvent être corrigés de la contamination par l'air en supposant un mélange binaire (Craig et al., 1978) :

$$X = \left(\frac{{}^4\text{He}}{{}^{20}\text{Ne}} \right)_{\text{éch.}} / \left(\frac{{}^4\text{He}}{{}^{20}\text{Ne}} \right)_{\text{air}}$$

(⁴He/²⁰Ne)_{air} : rapport d'abondance hélium/néon dans l'air (=0.318)

(⁴He/²⁰Ne)_{éch.} : rapport d'abondance hélium/néon de l'échantillon

En supposant que le néon-20 est exclusivement d'origine atmosphérique, $^{20}\text{Ne}_{\text{éch}} = ^{20}\text{Ne}_{\text{air}}$, l'équation précédente se simplifie :

$$X = \frac{{}^4\text{He}_{\text{air}} + {}^4\text{He}^*}{{}^4\text{He}_{\text{air}}} \rightarrow X - 1 = \frac{{}^4\text{He}^*}{{}^4\text{He}_{\text{air}}}$$

${}^4\text{He}^*$: concentration en hélium sans contamination atmosphérique

${}^4\text{He}_{\text{air}}$: concentration en hélium atmosphérique

$$\text{d'où : } \left(\frac{R}{Ra} \right)_c = \frac{\left(\frac{R}{Ra} \right)_{\text{éch}} \times [X - 1]}{[X - 1]}$$

$(R/Ra)_c$: rapport isotopique de l'hélium de l'échantillon corrigé d'une contamination atmosphérique

$(R/Ra)_{\text{éch}}$: rapport isotopique de l'hélium de l'échantillon

XI.5. CALCUL DE LA FRACTION RADIOGENIQUE

Les eaux incorporent des quantités de gaz rares radiogéniques, ${}^4\text{He}_{\text{rad}}$ et ${}^{40}\text{Ar}_{\text{rad}}$, noté ${}^{40}\text{Ar}^*$, que l'on peut quantifier en faisant l'approximation d'un mélange binaire (air / production radiogénique) :

$$[{}^4\text{He}_{\text{rad}}] = [{}^4\text{He}_{\text{éch}}] - \left[({}^{20}\text{Ne})_{\text{éch}} \times ({}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne})_{\text{air}} \right]$$

$$[{}^{40}\text{Ar}_{\text{rad}}] = [{}^{40}\text{Ar}_{\text{éch}}] \times \left[1 - \frac{({}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar})_{\text{air}}}{({}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar})_{\text{éch}}} \right]$$

DEUXIEME PARTIE :

LES ROCHES SEDIMENTAIRES

DANS L'EST DU BASSIN PARISIEN

Cette deuxième partie aborde le sujet des échanges roche-eau.

Le chapitre IV concerne les abondances des isotopes radiogéniques ^4He et $^{40}\text{Ar}^*$ dans les échantillons de l'ANDRA (carottes MSE101 et HTM102). Une comparaison entre les teneurs en ^4He et $^{40}\text{Ar}^*$ mesurées directement dans les échantillons de roche et les teneurs en ^4He et $^{40}\text{Ar}^*$, qui ont été produites *in situ* depuis l'âge de sédimentation des roches lors de la décroissance de U, Th et K montre que la majorité de l'hélium radiogénique produit dans les roches de porosité a été perdue, contrairement au cas de l'argon, qui reste piégé dans les sédiments.

Afin de préciser les mécanismes et les cinétiques de transfert roche-eau pour l'hélium, des expériences de diffusion ont été réalisées sur des échantillons d'argilites du Callovo-oxfordien (carottes EST104 et MSE101), de calcaires du Dogger et de grès du Trias (Ch. V). Les résultats nous ont amené à déterminer les différents sites pouvant contenir de l'hélium dans les roches sédimentaires (Ch. VI).

Un bilan sur les capacités de migration des radionucléides dans les unités géologiques de l'Est du Bassin Parisien (Ch VII) clot cette deuxième partie.

Chapitre IV : La production radiogénique in situ dans les roches réservoirs de l'Est du Bassin Parisien

XII. RESULTATS

Les abondances de gaz rares (He et Ar) de 13 échantillons de roche extraits des forages ANDRA du site de l'Est (Tableau 18) et leurs rapports isotopiques ($^3\text{He}/^4\text{He}$ et $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$) ont été mesurés au Kola Geological Centre à Apatity (Fédération de Russie) par l'équipe du Professeur Tolstikhin (Tableau 19). Les abondances de ^3He , ^4He et $^{40}\text{Ar}^*$ radiogéniques (Tableau 19) ont été calculées à partir de ces mesures et en remarquant que ^{20}Ne et ^{36}Ar sont principalement dérivés de l'atmosphère (cf. XI.5).

Dans un deuxième temps, les abondances d'isotopes radiogéniques sont comparées à celles produites *in situ* depuis l'âge de sédimentation de la roche (Tableau 20) lors de la décroissance des éléments parents U, Th et K (cf. I).

Les âges des différents échantillons ont été calculés selon deux méthodes (cf. I.2.1) :

- i) la première est basée sur les concentrations en U, Th et He ;
- ii) la deuxième est fonction des concentrations en K et Ar.

Connaissant les teneurs en ^4He , ^3He et $^{40}\text{Ar}^*$ des échantillons de roche et celles produites à partir de la radioactivité naturelle dans ces mêmes échantillons, les pertes en chacun de ces éléments peuvent être déterminées (Tableau 21).

| | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | HTM | HTM | HTM | HTM |
|------------|------|------|-----|-----|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| | 1492 | 1138 | 198 | 85 | 1122 | 1166 | 1494 | 1489 | 1497 | 2017 | 1660 | 2037 | 1943 |
| Roche | A | C | C | CM | C | C | AC | A | A | A | A | A | A |
| Forage | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | HTM | HTM | HTM | HTM |
| | 101 | 101 | 101 | 101 | 101 | 101 | 101 | 101 | 101 | 102 | 102 | 102 | 102 |
| Prof. (m) | 585 | 690 | 385 | 160 | 667 | 734 | 600 | 550 | 627 | 1000 | 720 | 1030 | 890 |
| Age S (Ma) | 161 | 166 | 155 | 146 | 164 | 170 | 162 | 160 | 163 | 190 | 168 | 200 | 187 |

Tableau 18 : Caractéristiques des échantillons de roche analysés. A : argilite ; C : calcaire ; CM : calcaire marneux ; AC : argilite calcaire. Age S ; âge de sédimentation.

| | MSE 1492 | MSE 1138 | MSE 198 | MSE 85 | MSE 1122 | MSE 1166 | MSE 1494 | MSE 1489 | MSE 1497 | HTM 2017 | HTM 1660 | HTM 2037 | HTM 1943 |
|-----------------------------------|-------------|-------------|------------|-----------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| Roche | A | C | C | CM | C | C | AC | A | A | A | A | A | A |
| $^4\text{He} \times 10^{-10}$ | 0.85 | 0.08 | 0.05 | 0.1 | 0.2 | 0.08 | 0.8 | 1.8 | 1.4 | 1.9 | 2.54 | 3.2 | 1.4 |
| 2σ | 12 | 1.0 | 0.7 | 1.4 | 3 | 1.1 | 11 | 25 | 19 | 26 | 36 | 40 | 20 |
| R/Ra | 0.032 | 0.029 | 0.051 | 0.029 | 0.043 | 0.079 | 0.047 | 0.008 | 0.011 | 0.027 | 0.022 | 0.019 | 0.027 |
| 2σ | 0.013 | 0.012 | 0.020 | 0.012 | 0.017 | 0.032 | 0.019 | 0.003 | 0.004 | 0.011 | 0.009 | 0.008 | 0.011 |
| $^3\text{He} \times 10^{-18}$ | 3.7 | 0.34 | 0.38 | 0.39 | 1.2 | 0.83 | 5.2 | 2.0 | 2.1 | 7.1 | 7.6 | 8.6 | 5.3 |
| 2σ | 1.6 | 0.14 | 0.16 | 0.17 | 0.5 | 0.35 | 2.2 | 0.8 | 0.9 | 3.0 | 3.2 | 3.6 | 2.2 |
| $^{36}\text{Ar} \times 10^{-13}$ | 3.1 | 1.4 | 1.5 | 3.5 | 1.8 | 2.2 | 4.7 | 3.9 | 4.7 | 5.5 | 4.7 | 5.1 | 3.4 |
| 2σ | 0.4 | 0.2 | 0.2 | 0.5 | 0.3 | 0.3 | 0.7 | 0.6 | 0.7 | 0.8 | 0.7 | 0.7 | 0.5 |
| $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ | 3245 | 416 | 402 | 793 | 476 | 423 | 2519 | 3089 | 2812 | 2922 | 3685 | 2547 | 2831 |
| 2σ | 32 | 4 | 4 | 8 | 5 | 4 | 25 | 31 | 28 | 29 | 37 | 25 | 28 |
| $^{40}\text{Ar}^* \cdot 10^{-10}$ | 9.1 | 0.17 | 0.16 | 1.74 | 0.32 | 0.28 | 10.6 | 11.1 | 11.9 | 14.5 | 16.1 | 11.4 | 8.7 |
| 2σ | 1.3 | 0.03 | 0.02 | 0.24 | 0.05 | 0.04 | 1.5 | 1.6 | 1.7 | 2.0 | 2.3 | 1.6 | 1.2 |
| $^4\text{He}/^{40}\text{Ar}^*$ | 0.09 | 0.5 | 0.33 | 0.06 | 0.6 | 0.27 | 0.08 | 0.16 | 0.12 | 0.13 | 0.16 | 0.28 | 0.16 |
| 2σ | 0.02 | 0.1 | 0.07 | 0.01 | 0.1 | 0.05 | 0.02 | 0.03 | 0.02 | 0.03 | 0.03 | 0.06 | 0.03 |

Tableau 19 : Abondances en mol/g et rapports isotopiques de He et Ar mesurés directement sur les échantillons de roches.

| | MSE 1492 | MSE 1138 | MSE 198 | MSE 85 | MSE 1122 | MSE 1166 | MSE 1494 | MSE 1489 | MSE 1497 | HTM 2017 | HTM 1660 | HTM 2037 | HTM 1943 |
|-----------------------------------|-------------|-------------|------------|-----------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| Prof (m) | 585 | 690 | 385 | 160 | 667 | 734 | 600 | 550 | 627 | 1000 | 720 | 1030 | 890 |
| Age (Ma) | 161 | 166 | 155 | 146 | 164 | 170 | 162 | 160 | 163 | 190 | 168 | 200 | 187 |
| U (ppm) | 2.61 | 1.71 | 1.27 | 1.36 | 1.41 | 1.17 | 2.19 | 1.85 | 2.63 | 3.27 | 3.18 | 3.07 | 2.93 |
| Th (ppm) | 12.3 | 0.19 | 0.19 | 1.36 | 0.27 | 0.23 | 9.2 | 7.8 | 9.7 | 13.0 | 15.1 | 12.4 | 14.2 |
| Li (ppm) | 84 | 2 | 2 | 11 | 5 | 5 | 60 | 23 | 48 | 124 | 135 | 103 | 130 |
| K (%) | 2.62 | 0.03 | 0.04 | 0.37 | 0.03 | 0.08 | 1.98 | 1.74 | 2.24 | 2.04 | 2.45 | 2.08 | 2.2 |
| $^4\text{He} \times 10^{-10}$ | 48 | 16 | 11 | 13 | 13 | 11 | 39 | 32 | 44 | 66 | 62 | 66 | 64 |
| 2σ | 4 | 2 | 1 | 1 | 1 | 1 | 3 | 2 | 3 | 5 | 5 | 5 | 5 |
| R/Ra | 0.013 | 0.0003 | 0.0003 | 0.002 | 0.0008 | 0.0008 | 0.0091 | 0.003 | 0.002 | 0.019 | 0.020 | 0.016 | 0.019 |
| 2σ | 0.005 | 0.0001 | 0.0001 | 0.001 | 0.0003 | 0.0003 | 0.0004 | 0.001 | 0.001 | 0.007 | 0.008 | 0.006 | 0.008 |
| $^3\text{He} \times 10^{-18}$ | 85 | 0.7 | 0.5 | 3.8 | 1.4 | 1.2 | 49 | 16 | 14 | 170 | 170 | 140 | 170 |
| 2σ | 30 | 0.2 | 0.2 | 1.1 | 0.5 | 0.4 | 18 | 6 | 5 | 60 | 60 | 50 | 60 |
| $^{40}\text{Ar}^* \cdot 10^{-10}$ | 7.3 | 0.09 | 0.11 | 0.94 | 0.085 | 0.24 | 5.5 | 4.8 | 6.3 | 6.7 | 7.1 | 7.2 | 7.1 |
| 2σ | 1.5 | 0.02 | 0.02 | 0.20 | 0.018 | 0.05 | 1.1 | 1.0 | 1.3 | 1.4 | 1.5 | 1.5 | 1.5 |

Tableau 20 : Abondances radiogéniques de He et Ar* calculées à partir de l'âge de sédimentation de la roche et des concentrations en U, Th, Li et K mesurées dans les échantillons de roches. L'erreur sur les mesures en éléments parents est de 10%. Les rapports isotopiques R/Ra ont été calculés selon Mamyrin et Tolstikhin (1984), en utilisant les compositions chimiques données en annexe.

| | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | MSE | HTM | HTM | HTM | HTM |
|------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| | 1492 | 1138 | 198 | 85 | 1122 | 1166 | 1494 | 1489 | 1497 | 2017 | 1660 | 2037 | 1943 |
| Roche | A | C | C | CM | C | C | AC | A | A | A | A | A | A |
| L(⁴ He) % | 1.76 | 0.53 | 0.48 | 0.73 | 1.49 | 0.67 | 2.08 | 5.5 | 3.17 | 2.85 | 4.12 | 4.8 | 2.23 |
| 2σ | 0.36 | 0.14 | 0.14 | 0.18 | 0.40 | 0.18 | 0.44 | 1.0 | 0.66 | 0.60 | 0.86 | 1.0 | 0.46 |
| L(³ He) % | 4.4 | 51 | 81 | 12.8 | 86 | 71 | 11 | 13 | 15 | 4.2 | 4.4 | 6.0 | 3.0 |
| 2σ | 2.4 | 28 | 45 | 7.2 | 46 | 40 | 6 | 7 | 8 | 2.4 | 2.4 | 3.1 | 1.5 |
| L(⁴⁰ Ar) % | 119 | 192 | 147 | 178 | 372 | 114 | 182 | 219 | 180 | 205 | 216 | 150 | 116 |
| 2σ | 34 | 174 | 146 | 76 | 158 | 100 | 54 | 64 | 52 | 60 | 62 | 44 | 34 |
| Age He (Ma) | 2.9 | 0.9 | 0.8 | 1.1 | 2.5 | 1.2 | 3.4 | 9 | 5.2 | 5.5 | 7 | 9.8 | 4.2 |
| Age Ar (Ma) | 186 | 272 | 210 | 244 | 489 | 182 | 277 | 326 | 276 | 361 | 337 | 284 | 209 |
| Age Sed (Ma) | 161 | 166 | 155 | 146 | 164 | 170 | 162 | 160 | 163 | 190 | 168 | 200 | 187 |

Tableau 21 : Rapport des abondances mesurées sur celles calculées (L) et comparaison des âges radiogéniques He et Ar par rapport à l'âge de sédimentation (Age Sed).

XIII. DISCUSSION

XIII.1. ARGON

Les quantités d'argon sont plus élevées d'un à deux ordres de grandeur dans les roches argileuses par rapport aux roches calcaires, car les concentrations en potassium sont plus riches d'un à deux ordres de grandeur dans les argiles (Tableau 20).

Les teneurs en ⁴⁰Ar* mesurées (Tableau 19 : 0.16 - 16 x 10⁻¹⁰ mol/g) dans les roches des ouvrages de l'ANDRA, sont du même ordre de grandeur que les concentrations attendues du fait de la radioactivité naturelle (Tableau 20 : 0.1 et 7.3 x 10⁻¹⁰ mol/g). Aucune perte en argon (Tableau 21) n'a pu être mise en évidence. Cet élément s'avère ainsi bien retenu dans les roches quelle que soit la lithologie de la formation et la profondeur d'enfouissement de l'échantillon (Figure 34).

Cependant, les valeurs mesurées sont souvent supérieures à celles calculées. Ces excès témoignent de la présence d'argon produit antérieurement au processus de sédimentation et retenu dans les minéraux détritiques. Cet argon hérité provoque une surestimation des âges argon par rapport à l'âge de sédimentation (Tableau 21).

XIII.2. HELIUM

Les abondances en ^4He (Tableau 19 : $0.05 - 3.2 \times 10^{-10}$ mol/g) mesurées dans les échantillons carottés, sont très nettement inférieures aux concentrations produites par décroissance radioactive (Tableau 20 : 11 et 66×10^{-10} mol/g) et ce aussi bien dans les calcaires que dans les argilites.

Ces pertes importantes en hélium-4 (Tableau 21 : plus de 90%) montrent combien cet élément est mobile. Tolstikhin et al. (1996) ont également constaté dans une séquence sédimentaire allant du Tertiaire au Permo-Carbonifère que les roches ont presque complètement perdu l'hélium radiogénique produit *in situ*.

Ce déficit est visible sur l'ensemble du log (Figure 34) et dans des proportions identiques. Aucun profil particulier n'apparaît en fonction du caractère plus ou moins imperméable des formations.

Une étude sur les granites de Carnmenellis (Martel et al., 1990) montre des pertes de l'ordre de 30% seulement : l'uranium est préférentiellement localisé dans des minéraux de type mica, uranite, monazite et zircon, donc dans des phases rétentives vis à vis de l'hélium, du moins à basse température. Dans le cas des roches sédimentaires, l'hélium est vraisemblablement situé dans des minéraux dont la structure est moins compacte ou altérée, ou encore aux joints de grains. Nous discuterons cette hypothèse aux chapitres V et VI.

Ces pertes entraînent une sous-estimation des âges hélium comparativement à l'âge de sédimentation (Tableau 21). Ainsi, l'hélium ne peut être utilisé quantitativement pour dater les roches. En revanche, sa mobilité laisse supposer qu'il présente de meilleures qualités de traceur que l'argon.

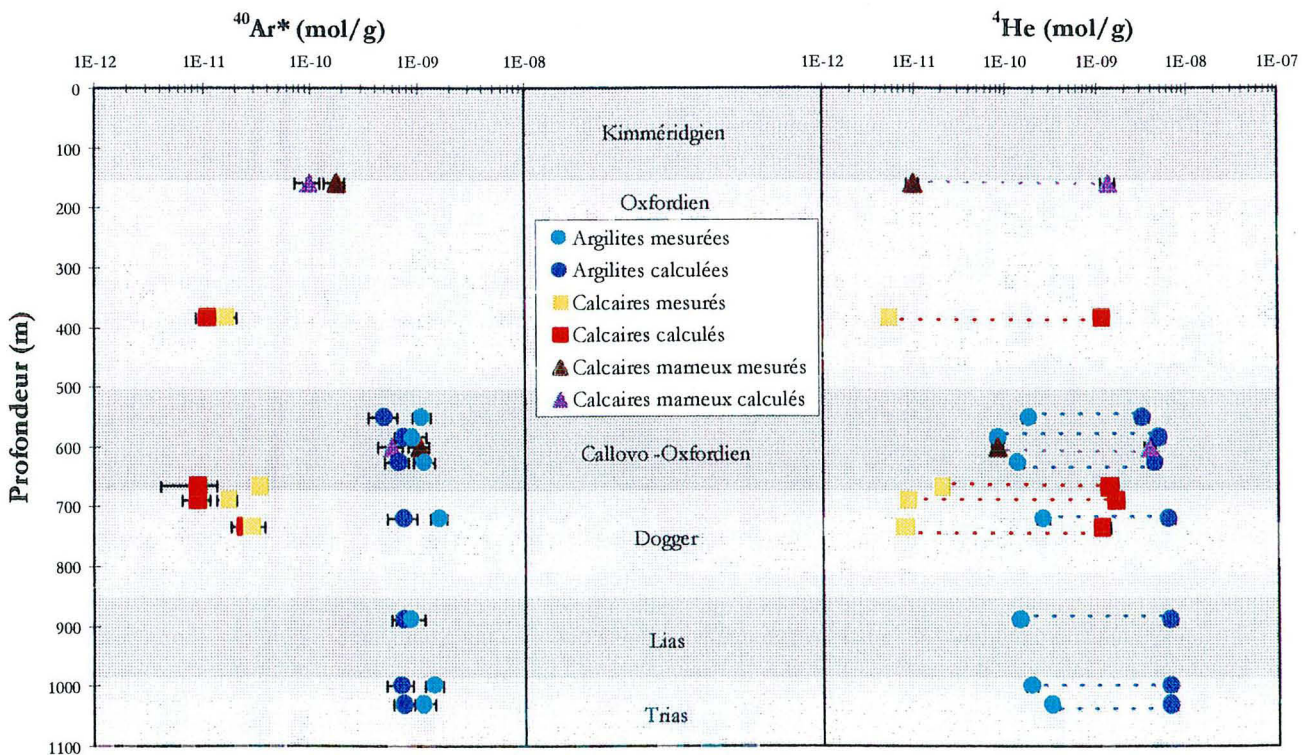


Figure 34 : Comparaison entre le comportement des isotopes radiogéniques $^{40}\text{Ar}^*$ et ^4He par rapport à la production radiogénique *in situ*.

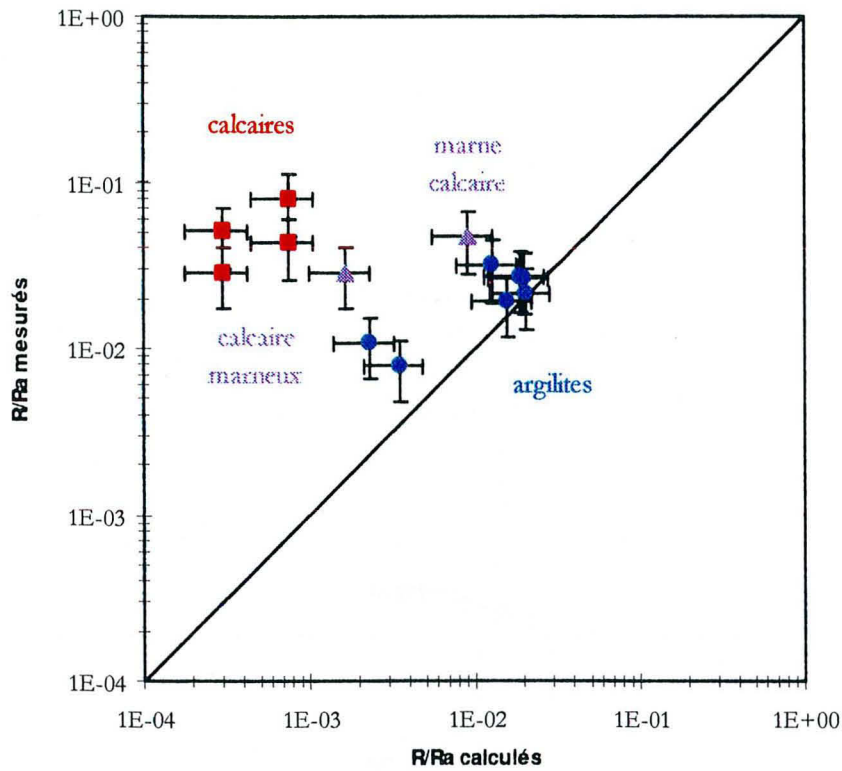


Figure 35 : Relation entre les rapports isotopiques de l'hélium dans les roches sédimentaires et ceux dérivés de la production radiogénique in situ.

Les rapports isotopiques R/Ra mesurés dans les séries sédimentaires sont compris entre 0.01 et 0.08 (Figure 35). Si les argilites ont des rapports similaires à ceux de la production radiogénique *in situ*, les calcaires présentent une composition isotopique en hélium modifiée par rapport à la composition initiale.

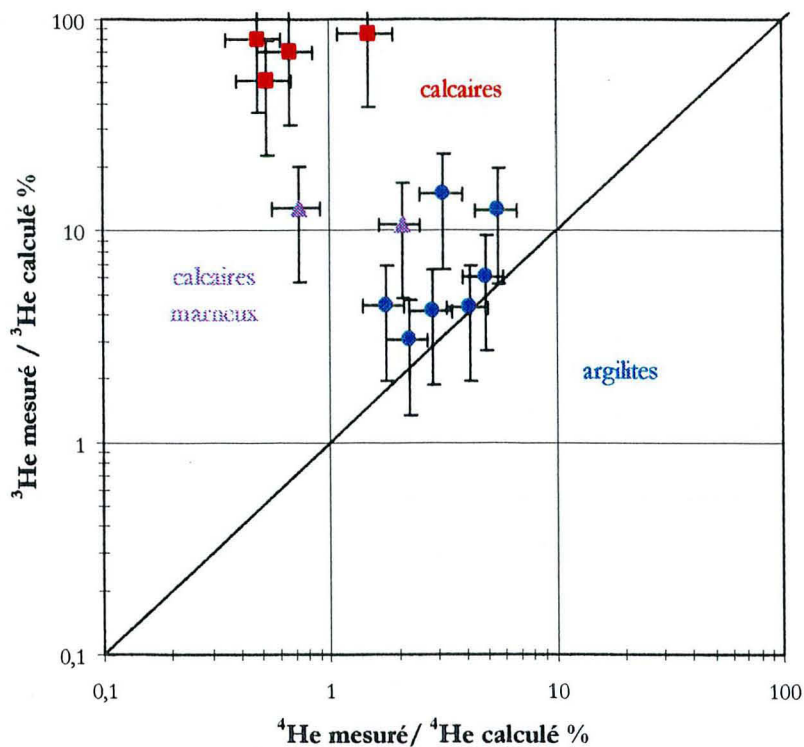


Figure 36 : Relation entre les pertes en ^3He et celles en ^4He .

Ces variations peuvent être dues :

- i) à des inclusions fluides piégées dans ces roches calcaïques et ayant enregistré la composition isotopique des fluides circulant alors ;
- ii) à une perte préférentielle en ^4He par rapport à ^3He .

Globalement, les argilites s'alignent selon la droite $^4\text{He}_{\text{mesuré}}/^4\text{He}_{\text{calculé}} = ^3\text{He}_{\text{mesuré}}/^3\text{He}_{\text{calculé}}$ et montrent des pertes en isotopes radiogéniques, ^4He et ^3He , dans les mêmes proportions (Figure 36). En revanche, les calcaires affichent une concentration en ^3He voisine de celle dérivée de la production nucléogénique pour des pertes en ^4He comparables à celles des argilites. Les calcaires marneux ou argilites calcaires présentent une évolution intermédiaire entre le pôle calcaire et le pôle argilite.

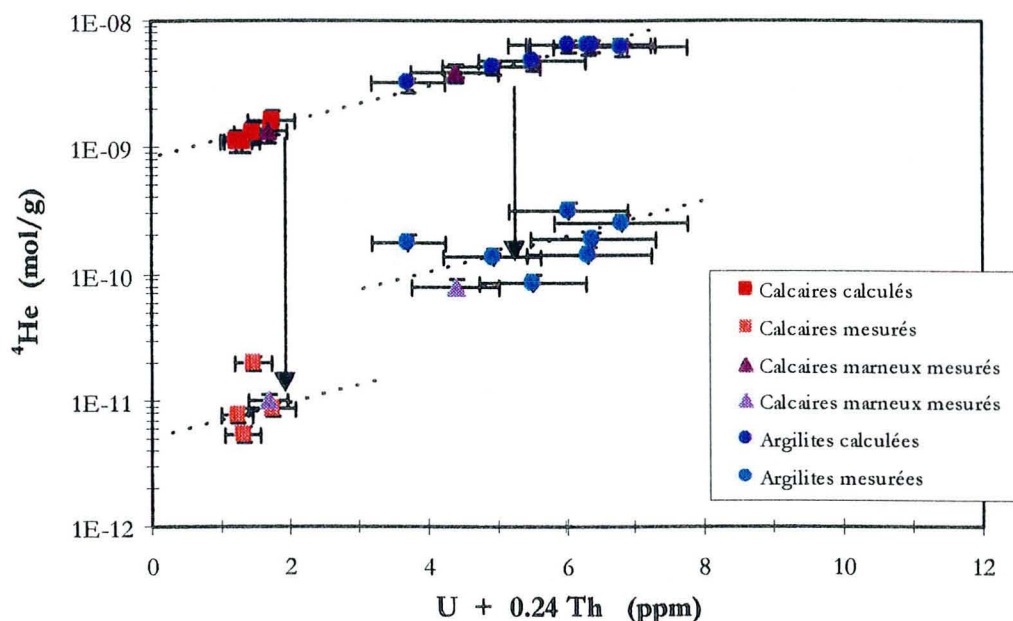


Figure 37 : Relation entre ^4He et les parents radiogéniques U et Th.

L'évolution symétrique des concentrations en ^4He mesurées par rapport à celles calculées prouve que ces échantillons concentrent exclusivement de l'hélium-4 issu de la production radiogénique *in situ* (Figure 37). Le déplacement observé entre les quantités mesurées et celles calculées montre qu'une fraction à peu près constante d'hélium-4 a été perdue, et que les calcaires ont un déficit plus important que les argilites (Figure 37).

Pour les argilites, la relation « calculée » entre Li et ^3He nucléogénique étant symétrique à celles « mesurée » prouve que ^3He est perdu en proportion constante ($\approx 90\%$) et que ^3He dépend bien de l'irradiation de Li par des neutrons (Figure 38). Les pertes en ^3He pour les roches calcaires sont inférieures, puisqu'elles sont comprises entre 20 et 50% (Tableau 21). Quant à l'origine de ^3He , elle est préférentiellement nucléogénique pour ces roches.

Le déséquilibre entre les pertes en ^3He des argilites par rapport aux calcaires peut s'expliquer par une différence de localisation du lithium dans ces formations sédimentaires. En environnement granitique, ^3He s'avère très mobile, et Li est principalement concentré dans des minéraux mafiques telles la biotite et l'amphibole (Martel et al., 1990). Il est possible que le lithium dans les calcaires soit présent dans des minéraux accessoires plus rétentifs que les argilites.

En outre, si ^4He s'échappe facilement des minéraux du fait des fissures laissées lors de la décroissance radioactive de l'uranium, ^3H peut former avec une molécule d'eau un ion H_3O^+ , qui est nettement moins mobile que ^3He (Tolstikhin et al., 1996). Puis, en 12.3 années (soit $t_{1/2}$ de ^3H), les fissures créées lors des réactions nucléaires peuvent se refermer et l'énergie de décroissance β de ^3H est trop faible pour libérer ^3He , qui se retrouve « piégé ».

Une autre hypothèse serait que les calcaires perdent du Li (Tolstikhin et al., 1996), ainsi ils laissent supposer un coefficient de rétention apparent élevé mais non réel.

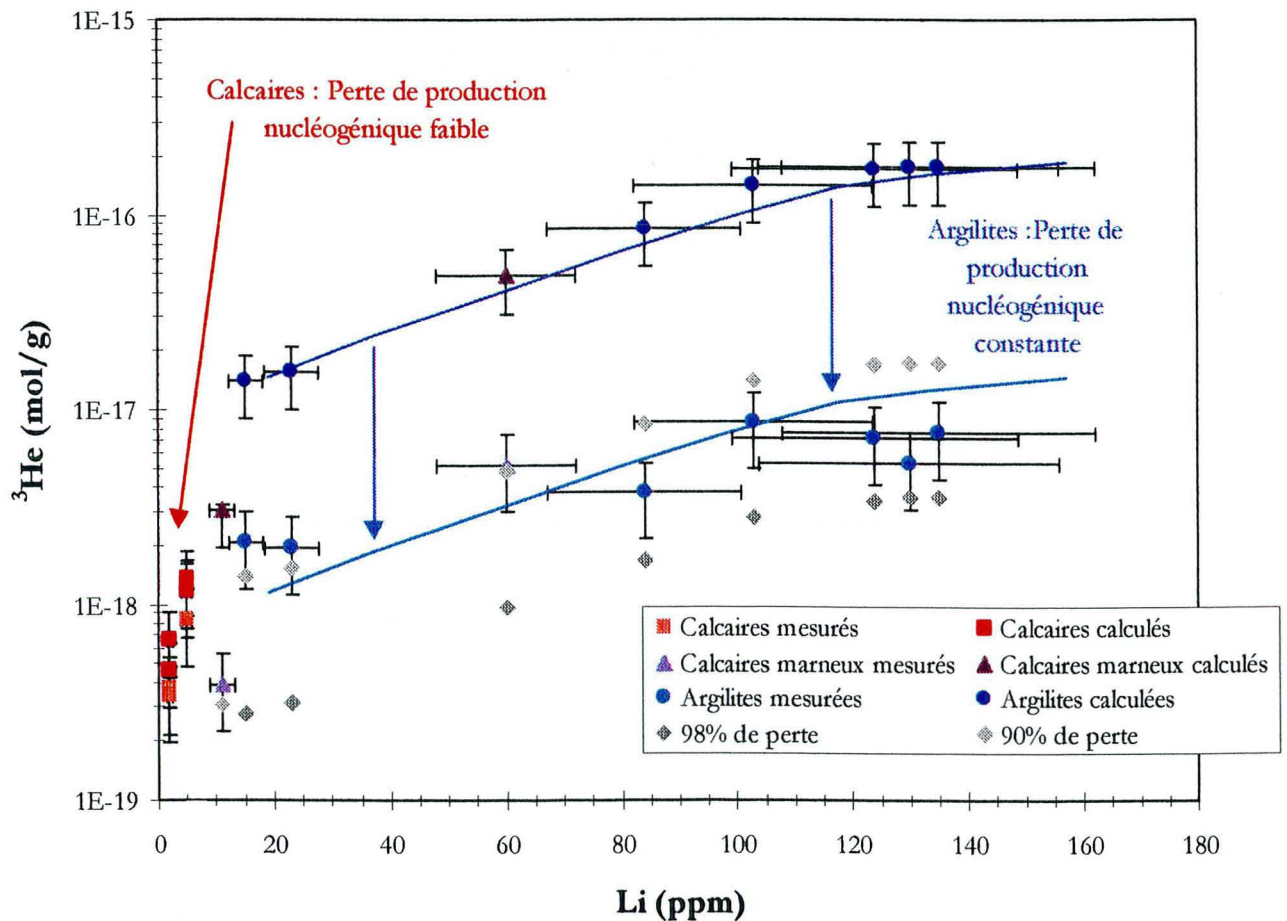


Figure 38 : Relation entre le lithium et l'hélium-3.

Nous avons vérifié que ^3He et ^4He étaient bien d'origine radiogénique (Figure 37 et Figure 38). Ainsi, la variation de composition isotopique de l'hélium dans les calcaires est principalement due à la perte en ^4He puisque ^3He reste conservatif au premier ordre. L'hypothèse d'un mélange entre production radiogénique *in situ* et fluide piégé en inclusion dans la roche semble plus difficile à admettre.

| Echantillons | | ^4He (mol/g) | R/Ra | 2σ |
|--------------|---------------|------------------------|------------|-----------|
| Argile | Broyage | 7.26×10^{-12} | 0.050 | 0.002 |
| | Roche totale | 8.48×10^{-11} | 0.030 | 0.006 |
| | Prod. Rad. | 4.80×10^{-9} | 0.010 | 0.005 |
| | | $\Delta : 8.5 \%$ | Th : 0.013 | |
| Calcaire | Broyage | 7.68×10^{-13} | 0.20 | 0.01 |
| | Total diffusé | 2.96×10^{-11} | 0.040 | 0.001 |
| | Prod. Rad. | 1.2×10^{-9} | 0.0005 | 0.0001 |
| | | $\Delta : 2.6 \%$ | Th : 0.006 | |
| Grès | Broyage | 6.25×10^{-14} | 0.65 | 0.03 |
| | Total diffusé | 7.9×10^{-10} | 0.040 | 0.001 |
| | Prod. Rad. | 1.5×10^{-9} | 0.0020 | 0.0006 |
| | | $\Delta : 0.08 \%$ | Th : 0.003 | |

Tableau 22 : Analyses élémentaire et isotopique de l'hélium sur roche totale et après broyage puis comparaison avec la production radiogénique pour 3 échantillons de lithologies variées. (Δ : % de He dans les inclusions fluides par rapport à la teneur de la roche totale ; Th : rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ de la roche calculé en tenant compte de la signature pondérée des inclusions fluides et de celle de la production radiogénique).

En effet, les roches sédimentaires étudiées contiennent moins de 9 % d'hélium dans leurs inclusions fluides, phases principalement analysées par la méthode du broyage (Tableau 22). Donc, en retranchant la signature isotopique de l'hélium des inclusions fluides à celle de la roche totale, un écart persiste entre les rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ mesurés et ceux dérivés de la production *in situ*.

En conclusion, les pertes en ^4He et ^3He sont contrôlées par les coefficients de rétention propres à chacune des phases minérales contenant U - Th et Li (nombre de défauts dans le réseau cristallin ; structure plus ou moins compacte) et aux différents modes de production des isotopes radiogéniques de l'hélium (par exemple, ^3H lié chimiquement). Il aurait été intéressant de mesurer les concentrations en ^4He et ^3He dans des fractions minérales séparées, afin d'estimer la contribution de chacune d'entre elles dans ces pertes et expliquer plus précisément les fractionnements entre ^3He et ^4He (Gerling et al., 1976 ; Mamyrin and Tolstikhin, 1984 ; Martel et al., 1990). Malheureusement, la structure trop fine des argilites et le manque d'échantillon ne nous ont pas permis de réaliser ces analyses.

Chapitre V : Capacité de migration de l'hélium dans les roches sédimentaires de l'Est du Bassin Parisien

Les pertes importantes en ^4He , mises en évidence lors de l'analyse totale des roches, témoignent de l'extrême mobilité de cet élément, et nous amènent à étudier les capacités de migration de l'hélium en phase solide à température ambiante et à haute température, processus souvent invoqué dans le contexte géologique mais peu quantifié.

XIV. MOBILITE DE He A TEMPERATURE AMBIANTE

Une expérience préliminaire à celles de chauffage par palier montre qu'un échantillon d'argilite, prélevé à partir d'une carotte dans la formation du Callovo-Oxfordien et introduit immédiatement sur site sous vide ou sous atmosphère inerte (^{40}Ar), perd entre 50 et 65% de l'hélium total en seulement un an à température ambiante. L'hélium restant est libéré par chauffage séquentiel. Ce résultat montre qu'une partie de l'hélium est très mobile et que la seconde nécessite des temps de dégazage longs ou des températures d'extraction élevées pour être libérée. Le paragraphe suivant développe les principaux enseignements dérivés de ces expériences de chauffage par palier.

| Forage | Type roche | Masse (g) | Stockage (mois) | Condition nement | He libéré (mol/g) | R/Ra | He total (mol/g) |
|--------|------------|-----------|-----------------|------------------|------------------------|-------------------|------------------------|
| EST104 | argilite | 8.87 | 13 | Sous vide | 1.31×10^{-10} | 0.018 ± 0.004 | 2.60×10^{-10} |
| EST104 | argilite | 9.57 | 13 | Sous Ar | 1.15×10^{-10} | 0.016 ± 0.006 | 1.80×10^{-10} |

Tableau 23 : Caractéristiques des expériences de libération de He à température ambiante.

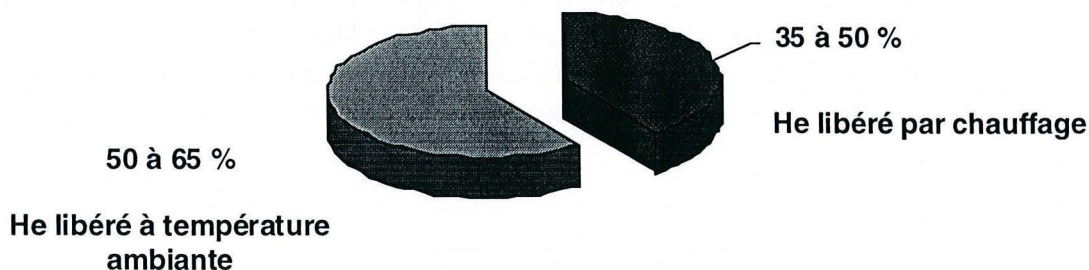


Figure 93 : Bilan de dégazage de l'hélium en fonction de la température dans une argilite du Callovo-Oxfordien.

XV. MOBILITE DE L'HELIUM EN FONCTION DE LA TEMPERATURE

XV.1. METHODOLOGIE

Les expériences de diffusion de l'hélium ont été réalisées à partir d'échantillons de roche prélevés :

- dans la partie centrale de carottes extraites des forages MSE 101 et EST 104 pour les argilites du Callovo-Oxfordien ;
- dans des carrières pour les calcaires du Dogger (Viterne -54) et les grès du Trias (Rotbach -68),

Ces échantillons ont été isolés de toute contamination atmosphérique sur site par conditionnement dans des tubes en inox sous vide (cf. VII.2.2). Les fractions de roche analysées sont de forme sphérique et leur diamètre varie entre 0.25 et 1.5 cm, ce qui correspond à une masse de 0.1 à 3 grammes.

Au laboratoire, le tube comprenant l'échantillon est relié à la ligne d'extraction - purification de gaz rares et chauffé séquentiellement entre 100 (ou 200) et 1000 °C par un four vertical. Le chauffage est arrêté à 1000°C, car la majeure partie de l'hélium a été libéré une fois cette température atteinte. Pour vérification, une fraction de l'échantillon est déposée dans une chambre porte - échantillon en acier inoxydable comportant une fenêtre en ZnSe transparente au rayonnement infrarouge, afin d'être fondue à l'aide d'un laser CO₂ (Humbert, 1998).

A chaque palier de température, la fraction de gaz extraite est détendue dans la ligne pendant une minute puis isolée du four. Une aliquote est ensuite purifiée et analysée. Le tube contenant l'échantillon est pompé après chaque palier durant une minute avant d'être porté à une température supérieure.

XV.2. QUANTITES D'HELIUM LIBERE A CHAQUE PALIER DE TEMPERATURE

Les quantités d'hélium libérées à chaque palier de température, ainsi que les rapports isotopiques ³He/⁴He correspondants, sont reportés Tableau 24 et Tableau 25 pour les quatre échantillons d'argilites du Callovo-Oxfordien (MSE1489, MSE1492, MSE1497 et EST104), pour l'échantillon du Dogger calcaire et celui du Trias gréseux.

Avant toute interprétation, nous avons vérifié que la totalité de l'hélium contenu dans les échantillons a été extraite en comparant la somme des concentrations en hélium libérées à chaque palier de température avec la teneur en hélium des échantillons fondus (Tableau 19). Nous nous sommes également assuré que la somme pondérée des rapports isotopiques de He mesurés à chaque palier était en adéquation avec le rapport ³He/⁴He de la roche totale (Figure 40).

| T(°C) | | 200 | 300 | 400 | 500 | 600 | 700 | 800 | 900 | 1000 |
|---------|-------------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| MSE1489 | $^4\text{He} \times 10^{-12}$ | 1.38 | 3.14 | 5.19 | 18.8 | 37.1 | 28.4 | 21.4 | 12.1 | 4.33 |
| | R/Ra | 0.166 | 0.055 | 0.012 | 0.019 | 0.006 | 0.001 | 0.003 | 0.032 | 0.070 |
| | 2 σ | 0.012 | 0.004 | 0.000 | 0.002 | 0.001 | 0.001 | 0.001 | 0.002 | 0.004 |
| MSE1492 | $^4\text{He} \times 10^{-12}$ | 3.42 | 3.27 | 5.54 | 24.5 | 53.3 | 25.8 | 17.1 | 10.7 | 6.26 |
| | R/Ra | 0.012 | 0.161 | 0.023 | 0.03 | 0.015 | 0.018 | 0.02 | 0.05 | 0.10 |
| | 2 σ | 0.001 | 0.002 | 0.008 | 0.01 | 0.004 | 0.008 | 0.01 | 0.02 | 0.03 |
| MSE1497 | $^4\text{He} \times 10^{-12}$ | 2.51 | 2.92 | 6.85 | 29.1 | 46.9 | 17.1 | 15.5 | 7.81 | 4.42 |
| | R/Ra | 0.256 | 0.135 | 0.063 | 0.012 | 0.016 | 0.015 | 0.001 | 0.279 | 0.251 |
| | 2 σ | 0.012 | 0.006 | 0.004 | 0.001 | 0.004 | 0.001 | 0.001 | 0.014 | 0.012 |
| EST 104 | $^4\text{He} \times 10^{-12}$ | 0.232 | 0.492 | 3.08 | 12.0 | 27.4 | 18.6 | 9.25 | 3.83 | 1.32 |
| | R/Ra | 1.86 | 0.5 | 0.10 | 0.038 | 0.02 | 0.03 | 0.08 | 0.18 | 0.64 |
| | 2 σ | 0.04 | 0.7 | 0.03 | 0.001 | 0.01 | 0.01 | 0.02 | 0.09 | 0.25 |

Tableau 24 : Abondances et rapports isotopiques de He libéré des argiles pour chaque palier de température d'une durée de 15 minutes.

| Température (°C) | Grès du Trias | | | Calcaire du Dogger | | |
|------------------|-------------------------------|-------|------------|-------------------------------|-------|------------|
| | $^4\text{He} \times 10^{-13}$ | R/Ra | 2 σ | $^4\text{He} \times 10^{-13}$ | R/Ra | 2 σ |
| 25 | 0.928 | 0.60 | 0.03 | - | - | - |
| 60 | 0.428 | - | - | 0.174 | - | - |
| 100 | 0.411 | - | - | 0.431 | - | - |
| 150 | 0.438 | - | - | 0.938 | 0.172 | 0.23 |
| 200 | 0.397 | - | - | 0.998 | 0.519 | 0.60 |
| 300 | 1.58 | - | - | 1.97 | 1.221 | 0.67 |
| 400 | 7.54 | 0.25 | 0.09 | 5.78 | 0.128 | 0.12 |
| 500 | 23.9 | 0.065 | 0.008 | 20.9 | 0.044 | 0.036 |
| 500 | 30.6 | 0.05 | 0.02 | 6.67 | 0.126 | 0.08 |
| 600 | 156 | 0.015 | 0.006 | 31.4 | 0.023 | 0.016 |
| 700 | 172 | 0.007 | 0.001 | 39.4 | 0.041 | 0.032 |
| 800 | 83.5 | 0.009 | 0.001 | 37.6 | 0.011 | 0.014 |
| 900 | 38.6 | 0.065 | 0.004 | 12.7 | 0.038 | 0.03 |
| 1000 | 14.9 | 0.034 | 0.002 | 4.50 | 0.128 | 0.15 |

Tableau 25 : Abondances et rapports isotopiques de He libéré des grès et des calcaires pour chaque palier de température d'une durée d'une heure.

L'allure générale des profils de libération d'hélium est identique pour l'ensemble des échantillons (Figure 40 et Figure 41). Une augmentation dans les quantités libérées s'effectue jusqu'aux alentours de 600°C puis les concentrations chutent jusqu'à épuisement de l'hélium contenu dans la roche (900 - 1 000°C). Ces diagrammes, en forme de cloche, sont inversement symétriques aux profils des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$. Ces derniers sont supérieurs au rapport de la roche totale à basse température, puis passent en dessous de ce seuil vers 500°C.

A haute température (> 800°C), les rapports augmentent de nouveau. Les valeurs élevées correspondent systématiquement à des quantités d'hélium libérées très faibles (< 3×10^{-12} mol/g), ce qui entraîne des erreurs analytiques plus importantes sur ces rapports isotopiques (Tableau 24 et Tableau 25). Toutefois, si l'on prend l'exemple du grès ou de l'argilite MSE 1489, les rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ obtenus à partir du broyage des échantillons sont supérieurs à ceux obtenus après fusion, mais du même ordre de grandeur que ceux dérivés des premiers paliers de chauffage. Cette différence prouve que, non seulement le broyage ne permet pas d'accéder à de l'hélium représentatif de l'ensemble de la roche (teneur par broyage < teneur totale), mais surtout que les rapports isotopiques élevés, mesurés lors des premiers paliers, même s'ils sont peu précis, donnent des informations semi-quantitatives.

La variation des rapports isotopiques en fonction de la température suggère que l'hélium libéré provient de sources différentes. Les rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ élevés, mesurés lors des premiers paliers de température, reflètent un mélange binaire entre l'atmosphère et la production radiogénique. Cet hélium a la même composition isotopique que celui libéré lors du broyage des échantillons, ce qui indique qu'ils sont issus de la même source. Les rapports isotopiques observés entre 500 et 800°C sont typiquement radiogéniques. A haute température, les $^3\text{He}/^4\text{He}$ élevés traduisent vraisemblablement l'épuisement d'une partie de l'hélium d'origine radiogénique.

Nous avons testé l'hypothèse d'une évolution selon une distillation de Rayleigh pour les paliers supérieurs à 500°C :

$$(^4\text{He}/^3\text{He}) = (^4\text{He}/^3\text{He})_0 \times F^{(\alpha-1)} \quad \text{avec } \alpha = (^3\text{He}/^4\text{He})^{-2}$$

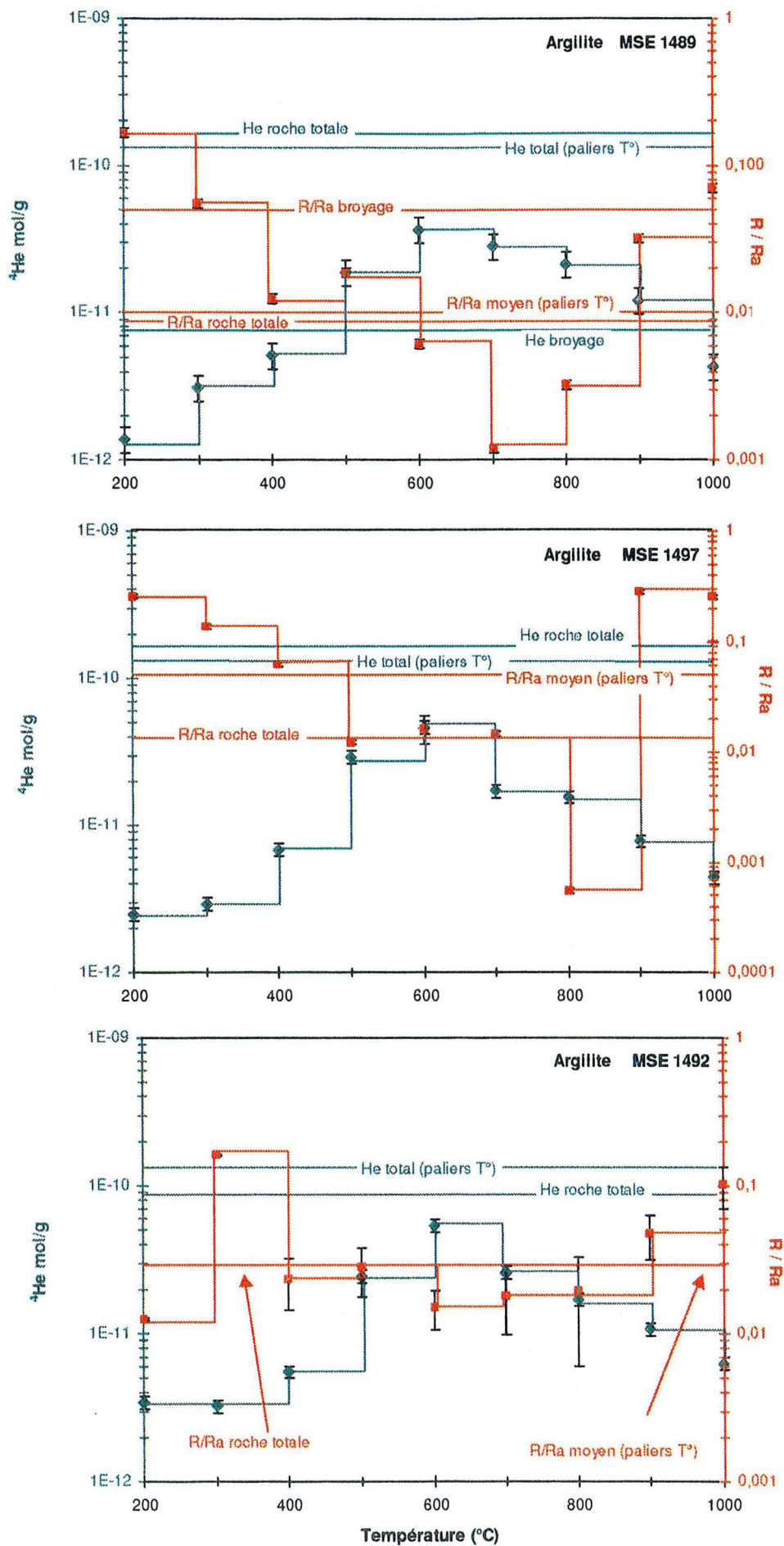
$$\text{soit } \ln (^4\text{He}/^3\text{He}) = \ln (^4\text{He}/^3\text{He})_0 + (\alpha-1) \cdot \ln F$$

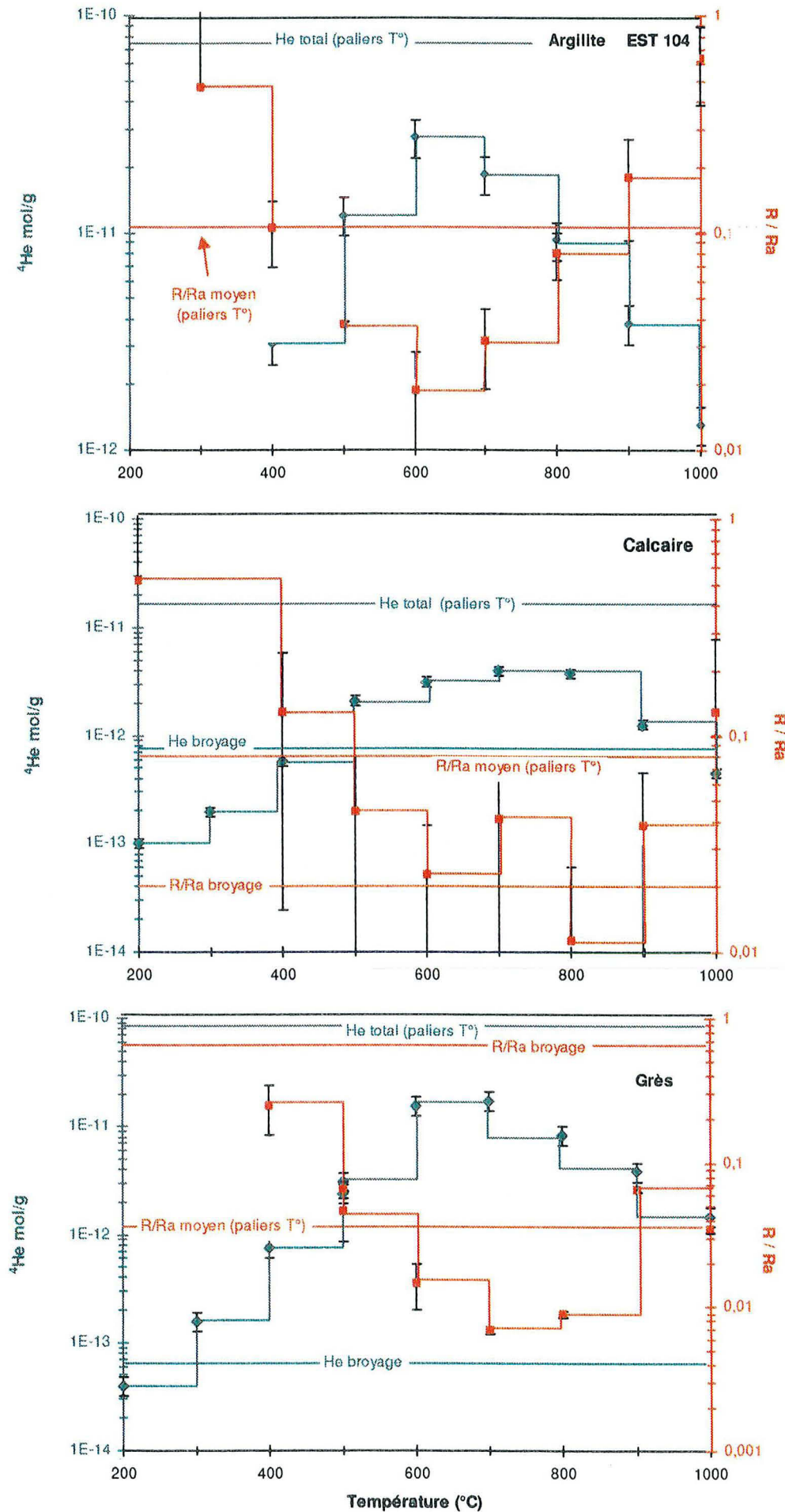
Seuls les échantillons d'argilites EST 104, MSE 1492, MSE 1489 pourraient obéir à ce mécanisme (Figure 42). Les rapports $(^4\text{He}/^3\text{He})_0$ et le facteur de fractionnement α correspondant varient respectivement de 0.002 à 0.022 et de 1.69 à 2.12 (Tableau 26).

Pages suivantes :

Figure 40 : Profils des quantités de He libéré et des rapports isotopiques en fonction de la température dans les différents échantillons. Comparaison avec des analyses où l'échantillon a été entièrement fondu (« roche totale ») ou broyé (« broyage »).

Figure 41 : Profils des quantités de He libéré et des rapports isotopiques en fonction de la température dans les différents échantillons. Comparaison avec des analyses où l'échantillon a été entièrement fondu (« roche totale ») ou broyé (« broyage »).





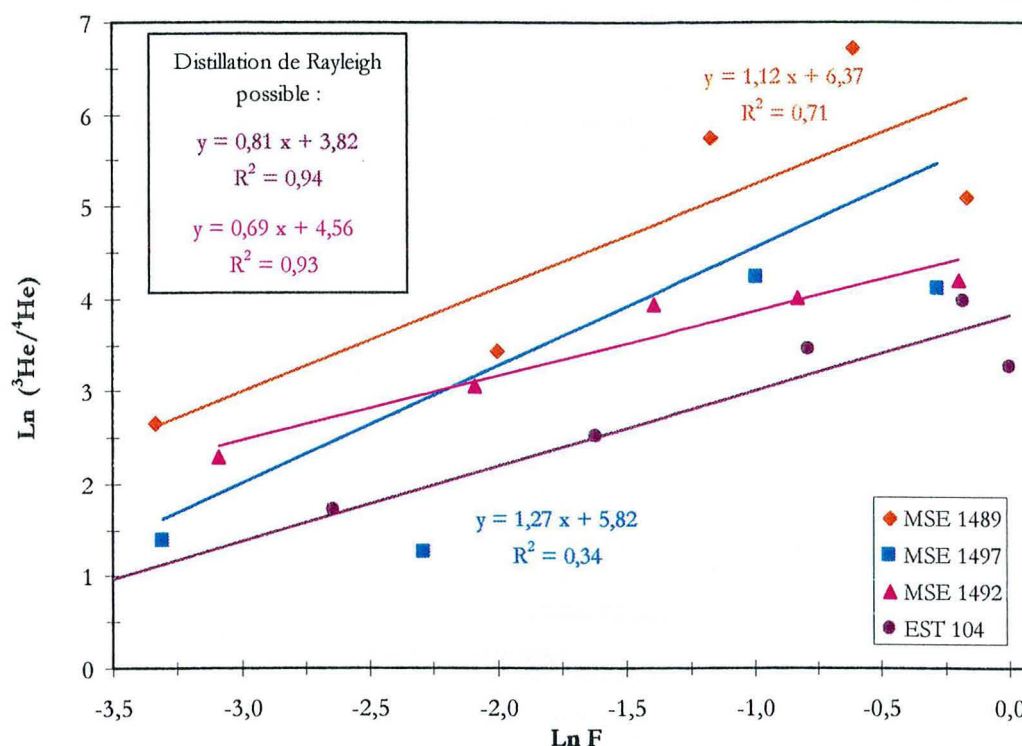


Figure 42 : Comportement des argilites pour des températures supérieures à 500°C.

| | EST 104 | MSE 1492 | MSE 1489 | MSE 1497 |
|-------------------------------|---------|----------|----------|----------|
| α | 1.81 | 1.69 | 2.12 | 2.27 |
| $(^3\text{He}/^4\text{He})_0$ | 0.022 | 0.010 | 0.002 | 0.003 |

 Tableau 26 : Détermination du facteur de fractionnement α et du rapport initial $^3\text{He}/^4\text{He}$ pour les argilites.

Des expériences de chauffage similaires ont été réalisées pour des paliers de 24 heures (Tableau 27). Les profils représentant la fraction d'hélium libéré sont de deux types :

- Soit ils présentent une allure générale symétrique à celle obtenue pour un temps de chauffage d'une heure (Figure 43). C'est le cas des grès. Par ailleurs, Tolstikhin et al. (1996) trouvent un profil similaire (pic à 600°C) pour des grès échantillonnés dans le Nord de la Suisse. Pour un temps de chauffage de 24 heures, les quantités libérées sont plus importantes lors des premiers paliers. Cette tendance s'inverse à haute température. Avec des temps d'expérience plus longs, la chaleur peut pénétrer plus en profondeur dans l'échantillon, ce qui provoque une libération de He plus intense puis, par la suite, un épuisement en He plus avancé. Les rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ fluctuent alors en conséquence. En effet, comme il existe différentes sources d'hélium, la contribution de chaque source n'est pas exactement proportionnelle dans les 2 expériences (24 h/15 - 60 min).
- Soit ils affichent 2 maxima contre un seul pour les expériences plus courtes (15 ou 60 min). Cette caractéristique, typique des argilites et des calcaires, laisse supposer la présence d'au moins deux sites différents contenant de l'hélium radiogénique, l'un diffusant puis s'épuisant à plus basse température que l'autre. Lors des paliers de diffusion inférieurs à 24 heures, l'épuisement de ces 2 sites n'a pas été atteint et le profil obtenu est une intégration de ces 2 signatures.

| Température (°C) | | Grès du Trias | | |
|------------------|-------------------------------|-----------------|-------|-----------|
| | $^4\text{He} \times 10^{-12}$ | Fraction He (%) | R/Ra | 2σ |
| 106 | 0.01 | 0.01 | - | - |
| 200 | 0.15 | 0.09 | 1.34 | 0.02 |
| 250 | 0.62 | 0.36 | 3.1 | 2.5 |
| 300 | 1.38 | 0.80 | 0.08 | 0.02 |
| 350 | 2.51 | 1.63 | 0.06 | 0.01 |
| 400 | 7.03 | 3.67 | 0.013 | 0.002 |
| 450 | 13.9 | 64.06 | 0.005 | 0.002 |
| 550 | 32.5 | 18.89 | 0.004 | 0.002 |
| 650 | 12.9 | 7.13 | 0.006 | 0.002 |
| 800 | 11.2 | 3.37 | 0.006 | 0.002 |

| Température (°C) | | Calcaire du Dogger | | |
|------------------|-------------------------------|--------------------|-------|-----------|
| | $^4\text{He} \times 10^{-12}$ | Fraction He (%) | R/Ra | 2σ |
| 150 | 0.55 | 9.50 | 0.664 | 0.006 |
| 200 | 0.20 | 0,54 | 0.293 | 0.002 |
| 250 | 0.44 | 1.43 | 0.110 | 0.001 |
| 300 | 2.91 | 4,91 | 0.051 | 0.001 |
| 350 | 4.75 | 6.13 | 0.014 | 0.004 |
| 400 | 3.54 | 13.16 | 0.012 | 0.001 |
| 450 | 6.52 | 52.47 | 0.007 | 0.001 |
| 550 | 6.06 | 7,58 | 0.014 | 0.001 |
| 650 | 0.30 | 0.66 | 0.052 | 0.001 |
| 800 | 4.37 | 3.61 | 0.060 | 0.001 |

| Température (°C) | | Argilite du Callovo-Oxfordien | | |
|------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------|-----------|
| | $^4\text{He} \times 10^{-12}$ | Fraction He (%) | R/Ra | 2σ |
| 150 | 4.48 | 2.65 | 0,252 | 0,002 |
| 200 | 1.10 | 0.91 | 0,138 | 0,001 |
| 250 | 1.09 | 1.32 | 0,192 | 0,002 |
| 300 | 15.8 | 8.86 | 0,076 | 0,001 |
| 350 | 27.2 | 11.71 | 0,044 | 0,001 |
| 400 | 11.7 | 14.46 | 0,053 | 0,001 |
| 450 | 18.4 | 50.01 | 0,065 | 0,001 |
| 550 | 13.9 | 5.83 | 0,052 | 0,001 |
| 650 | 3.95 | 2.87 | 0,187 | 0,002 |
| 800 | 4.96 | 1.37 | 0,224 | 0,002 |

Tableau 27 : Abondances et rapports isotopiques de He relatifs aux expériences de diffusion pour des paliers de 24 heures.

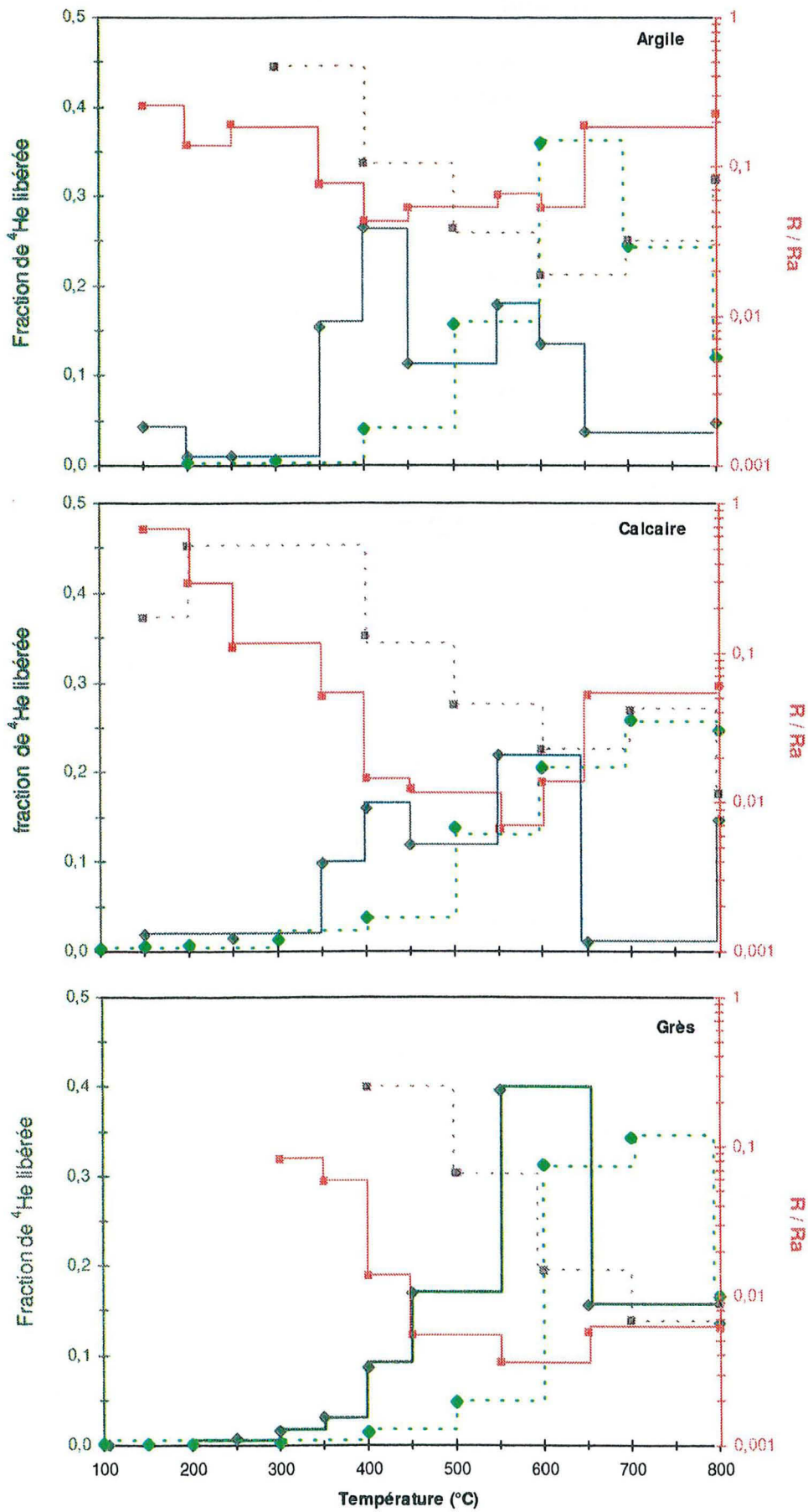


Figure 43 : Comparaison des profils réalisés à partir de paliers de 24 heures (trait plein) et d'une heure (tirets).

XV.3. COEFFICIENTS DE DIFFUSION

La théorie mathématique de la diffusion est analogue à celle de la conduction thermique établie par Fourier (1822), car ces deux modes de transport résultent du mouvement aléatoire des molécules (Fick, 1855).

$$F = -D \times \frac{\partial C}{\partial x}$$

F : taux de transfert par unité de surface

D : coefficient de diffusion

C : concentration de la substance diffusante

X : distance de diffusion

Pour des particules sphériques, l'équation de la diffusion (Crank, 1975) :

$$F = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \frac{-n^2 \pi^2 D t}{R^2}$$

F : fraction d'hélium
t : temps
R : rayon de la sphère
D : coefficient de diffusion

est résolue en appliquant le modèle de Carslaw and Jaeger (1959). Les solutions de l'équation sont :

- pour $F \leq 0.10$:

$$D_{i+1} = \frac{(F_{i+1}^2 - F_i^2) \pi R^2}{36 \cdot (t_{i+1} - t_i)}$$

- pour $0.10 \leq F \leq 0.90$:

$$D_{i+1} = \frac{R^2}{\pi^2 (t_{i+1} - t_i)} \times \left[-\frac{\pi^2}{3} (F_{i+1} - F_i) - 2\pi \left\{ \left(1 - \frac{\pi}{3} F_{i+1}\right)^{\frac{1}{2}} - \left(1 - \frac{\pi}{3} F_i\right)^{\frac{1}{2}} \right\} \right]$$

- pour $F \geq 0.90$:

$$D_{i+1} = \frac{R^2}{\pi^2 (t_{i+1} - t_i)} \ln \frac{(1 - F_i)}{(1 - F_{i+1})}$$

Ces coefficients sont reportés en fonction de la température dans des diagrammes d'Arrhénius (par exemple, Kurz and Jenkins, 1981). Dans le cas d'une diffusion dans un milieu homogène, l'ensemble des points s'alignent selon une droite d'équation :

$$\text{Log}(D) = -(E / RT) + \text{Log}(D_0)$$

D : coefficient de diffusion (cm²/s) à la température T (Kelvin) ;

D₀ : facteur de fréquence du réseau ou diffusivité pour une température infinie. Il représente le coefficient spécifique de l'échantillon car il dépend du nombre possible de trajets et du carré de la moyenne de la taille des sauts.

E : énergie d'activation (J/mole). Elle exprime l'apport d'énergie nécessaire pour qu'un atome passe d'un site à l'autre en franchissant la barrière de potentiel ;

R : constante des gaz parfaits (8.314 J/mole.K) ;

La pente de cette droite est proportionnelle à l'énergie d'activation. Les coefficients de diffusion pour une température infinie peuvent aussi être déterminés à partir de cette droite de diffusion. Afin de contraindre directement un temps de diffusion pour une distance choisie (a), nous avons réalisé des diagrammes d'Arrhénius exprimés en D/a^2 (s^{-1}) en ordonnées et $10\,000/T$ (K^{-1}) en abscisses.

XV.4. EXPLOITATION DES RESULTATS A PARTIR DE DIAGRAMMES D'ARRHENIUS

Les tableaux 25 et 26 résument les différentes informations extraites des expériences de diffusion.

| | Température (°C) | a (cm) | Temps cumulé (s) | Fraction He libéré | D (cm^2/s) | 10 000 / T (K^{-1}) | Log (D/ a^2) (s^{-1}) |
|----------|---------------------|-----------|---------------------|-----------------------|------------------------|----------------------------|---------------------------------|
| GRES | 25 | 1.5 | 5400 | 0.002 | 1.13×10^{-10} | 33.5 | -10.30 |
| | 60 | 1.5 | 10800 | 0.003 | 1.28×10^{-10} | 30.0 | -10.25 |
| | 100 | 1.5 | 16200 | 0.003 | 1.68×10^{-10} | 26.8 | -10.13 |
| | 150 | 1.5 | 21600 | 0.004 | 2.28×10^{-10} | 23.6 | -9.99 |
| | 200 | 1.5 | 27000 | 0.005 | 2.50×10^{-10} | 21.1 | -9.95 |
| | 300 | 1.5 | 32400 | 0.008 | 1.41×10^{-9} | 17.4 | -9.20 |
| | 400 | 1.5 | 37800 | 0.022 | 1.57×10^{-8} | 14.9 | -8.16 |
| | 500 | 1.5 | 43200 | 0.068 | 1.49×10^{-7} | 12.9 | -7.18 |
| | 500 | 1.5 | 48600 | 0.126 | 4.43×10^{-7} | 12.9 | -6.71 |
| | 600 | 1.5 | 54000 | 0.423 | 7.90×10^{-6} | 11.5 | -5.45 |
| | 700 | 1.5 | 59400 | 0.749 | 2.96×10^{-5} | 10.3 | -4.88 |
| | 800 | 1.5 | 64800 | 0.908 | 4.23×10^{-5} | 9.3 | -4.73 |
| 900 | 1.5 | 70200 | 0.981 | 6.71×10^{-5} | 8.5 | -4.53 | |
| CALCAIRE | 60 | 1.3 | 5400 | 0.001 | 1.24×10^{-11} | 30.0 | -11.14 |
| | 100 | 1.3 | 10800 | 0.003 | 2.24×10^{-10} | 26.8 | -9.88 |
| | 150 | 1.3 | 16200 | 0.01 | 1.67×10^{-9} | 23.6 | -9.00 |
| | 200 | 1.3 | 21600 | 0.01 | 3.56×10^{-9} | 21.1 | -8.68 |
| | 300 | 1.3 | 27000 | 0.03 | 1.29×10^{-8} | 17.4 | -8.12 |
| | 400 | 1.3 | 32400 | 0.06 | 8.47×10^{-8} | 14.9 | -7.30 |
| | 500 | 1.3 | 37800 | 0.19 | 1.00×10^{-6} | 12.9 | -6.23 |
| | 500 | 1.3 | 43200 | 0.23 | 5.71×10^{-7} | 12.9 | -6.47 |
| | 600 | 1.3 | 48600 | 0.43 | 4.85×10^{-6} | 11.5 | -5.54 |
| | 700 | 1.3 | 54000 | 0.67 | 1.40×10^{-5} | 10.3 | -5.08 |
| | 800 | 1.3 | 59400 | 0.90 | 3.88×10^{-5} | 9.3 | -4.64 |
| | 900 | 1.3 | 64800 | 0.98 | 5.27×10^{-5} | 8.5 | -4.51 |

Tableau 28 : Calculs des coefficients de diffusion (D) pour les grès et les calcaires chauffés durant des paliers d'une heure.

| | Température (°C) | a (cm) | Temps cumulé (s) | Fraction He libéré | D (cm ² /s) | 10 000 / T (K ⁻¹) | Log (D/a ²) (s ⁻¹) |
|---------|---------------------|-----------|---------------------|-------------------------|---------------------------|----------------------------------|---|
| MSE1489 | 200 | 0.38 | 900 | 0.01 | 1.55 x 10 ⁻⁹ | 21.1 | -7.97 |
| | 300 | 0.38 | 1800 | 0.03 | 1.49 x 10 ⁻⁸ | 17.4 | -6.99 |
| | 400 | 0.38 | 2700 | 0.07 | 5.95 x 10 ⁻⁸ | 14.9 | -6.38 |
| | 500 | 0.38 | 3600 | 0.22 | 6.61 x 10 ⁻⁷ | 12.9 | -5.34 |
| | 600 | 0.38 | 4500 | 0.50 | 4.10 x 10 ⁻⁶ | 11.5 | -4.55 |
| | 700 | 0.38 | 5400 | 0.71 | 7.75 x 10 ⁻⁶ | 10.3 | -4.27 |
| | 800 | 0.38 | 6300 | 0.88 | 1.36 x 10 ⁻⁵ | 9.3 | -4.03 |
| | 900 | 0.38 | 7200 | 0.97 | 2.17 x 10 ⁻⁵ | 8.5 | -3.82 |
| MSE1497 | 200 | 0.30 | 900 | 0.02 | 3.09 x 10 ⁻⁹ | 21.1 | -7.46 |
| | 300 | 0.30 | 1800 | 0.04 | 1.14 x 10 ⁻⁸ | 17.4 | -6.90 |
| | 400 | 0.30 | 2700 | 0.09 | 5.97 x 10 ⁻⁸ | 14.9 | -6.18 |
| | 500 | 0.30 | 3600 | 0.31 | 9.40 x 10 ⁻⁷ | 12.9 | -4.98 |
| | 600 | 0.30 | 4500 | 0.66 | 5.34 x 10 ⁻⁶ | 11.5 | -4.23 |
| | 700 | 0.30 | 5400 | 0.79 | 4.59 x 10 ⁻⁶ | 10.3 | -4.29 |
| | 800 | 0.30 | 6300 | 0.91 | 8.30 x 10 ⁻⁶ | 9.3 | -4.04 |
| | 900 | 0.30 | 7200 | 0.97 | 1.03 x 10 ⁻⁵ | 8.5 | -3.94 |
| 1000 | 0.30 | 8100 | 1.00 | 3.38 x 10 ⁻⁴ | 7.9 | -2.43 | |
| MSE1492 | 200 | 0.30 | 900 | 0.02 | 4.54 x 10 ⁻⁹ | 21.1 | -7.30 |
| | 300 | 0.30 | 1800 | 0.04 | 1.29 x 10 ⁻⁸ | 17.4 | -6.85 |
| | 400 | 0.30 | 2700 | 0.08 | 4.07 x 10 ⁻⁸ | 14.9 | -6.34 |
| | 500 | 0.30 | 3600 | 0.25 | 5.44 x 10 ⁻⁷ | 12.9 | -5.22 |
| | 600 | 0.30 | 4500 | 0.60 | 4.27 x 10 ⁻⁶ | 11.5 | -4.32 |
| | 700 | 0.30 | 5400 | 0.77 | 5.23 x 10 ⁻⁶ | 10.3 | -4.24 |
| | 800 | 0.30 | 6300 | 0.89 | 7.04 x 10 ⁻⁶ | 9.3 | -4.11 |
| | 900 | 0.30 | 7200 | 0.96 | 1.01 x 10 ⁻⁵ | 8.5 | -3.95 |
| | 1000 - | 0.30 | 8100 | 1.00 | 3.40 x 10 ⁻⁴ | 7.9 | -2.42 |
| EST104 | 200 | 0.25 | 900 | 0.03 | 4.72 x 10 ⁻⁹ | 21.1 | -7.12 |
| | 300 | 0.25 | 1800 | 0.06 | 1.75 x 10 ⁻⁸ | 17.4 | -6.55 |
| | 400 | 0.25 | 2700 | 0.11 | 5.36 x 10 ⁻⁸ | 14.9 | -6.07 |
| | 500 | 0.25 | 3600 | 0.29 | 5.16 x 10 ⁻⁷ | 12.9 | -5.08 |
| | 600 | 0.25 | 4500 | 0.62 | 3.07 x 10 ⁻⁶ | 11.5 | -4.31 |
| | 700 | 0.25 | 5400 | 0.84 | 5.92 x 10 ⁻⁶ | 10.3 | -4.02 |
| | 800 | 0.25 | 6300 | 0.94 | 7.17 x 10 ⁻⁶ | 9.3 | -3.94 |
| | 900 | 0.25 | 7200 | 0.98 | 8.43 x 10 ⁻⁶ | 8.5 | -3.87 |
| | 1000 | 0.25 | 8100 | 1.00 | 2.30 x 10 ⁻⁴ | 7.9 | -2.43 |

Tableau 29 : Calcul des coefficients de diffusion pour les argiles chauffées durant des paliers de 15 minutes.

L'évolution des coefficients de diffusion en fonction de la température (Figure 44) est semblable pour les argilites, les grès et les calcaires. Pour les faibles températures ($\approx 200^\circ\text{C}$), ils sont de l'ordre de 10^{-9} - 10^{-8} cm^2/s . Ces valeurs sont comparables à celles dérivées de mesures sur des verres basaltiques (10^{-8} cm^2/s) et d'obsidiennes (10^{-7} cm^2/s) à 200°C (Jambon and Shelby, 1980).

A basse température, l'hélium diffuse plus facilement dans les argilites, que dans les grès et les calcaires. Ce constat peut être en relation avec la structure plus fine de l'argilite : à basse température, l'hélium libéré est vraisemblablement situé aux joints de grain. Or, l'argilite comprend des grains en plus grand nombre que les autres roches, donc elle va libérer de l'hélium en plus grande quantité. A haute température, l'hélium libéré doit provenir des minéraux et la taille des grains étant inférieure à celle des autres roches, l'argilite va perdre plus rapidement son hélium.

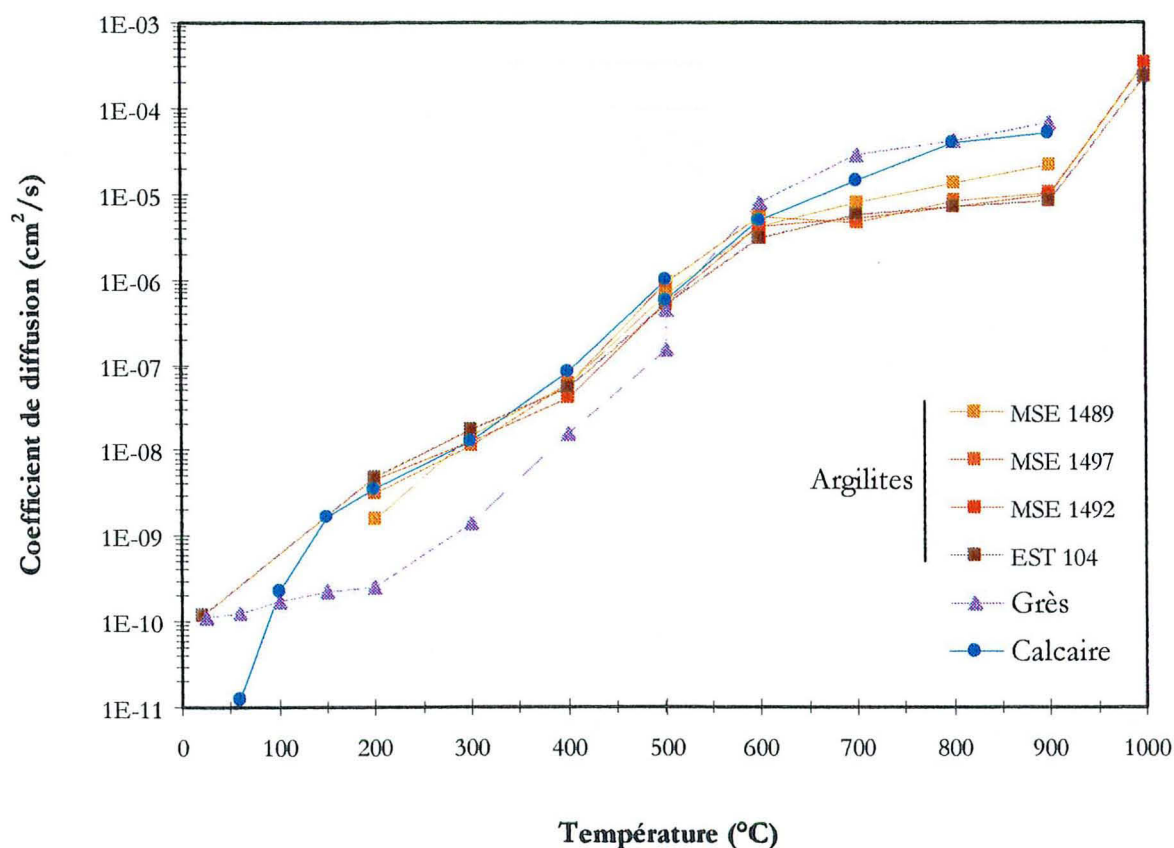


Figure 44 : Variation des coefficients de diffusion en fonction de la température pour les argiles (carrés), les calcaires (ronds) et les grès (triangles).

Les coefficients de diffusion exprimés sous forme de diagrammes d'Arrhénius définissent des segments de droite (Figure 45 et Figure 46), caractérisant différents comportements diffusifs en milieu hétérogène. Les énergies d'activation correspondantes sont inférieures à 27.2 kcal/mol. Pour comparaison, des mesures sur des verres basaltiques présentent des valeurs de 19.9 ± 2 kcal/mol (Kurz and Jenkins, 1981) ou de 14 ± 2 kcal/mol (Jambon and Shelby, 1980), et de 8 ± 0.3 kcal/mol pour des obsidiennes (Jambon and Shelby, 1980). Dans les sédiments marins profonds, Hiyagon (1994) détermine des énergies d'activation de 20 ± 1 kcal/mol.

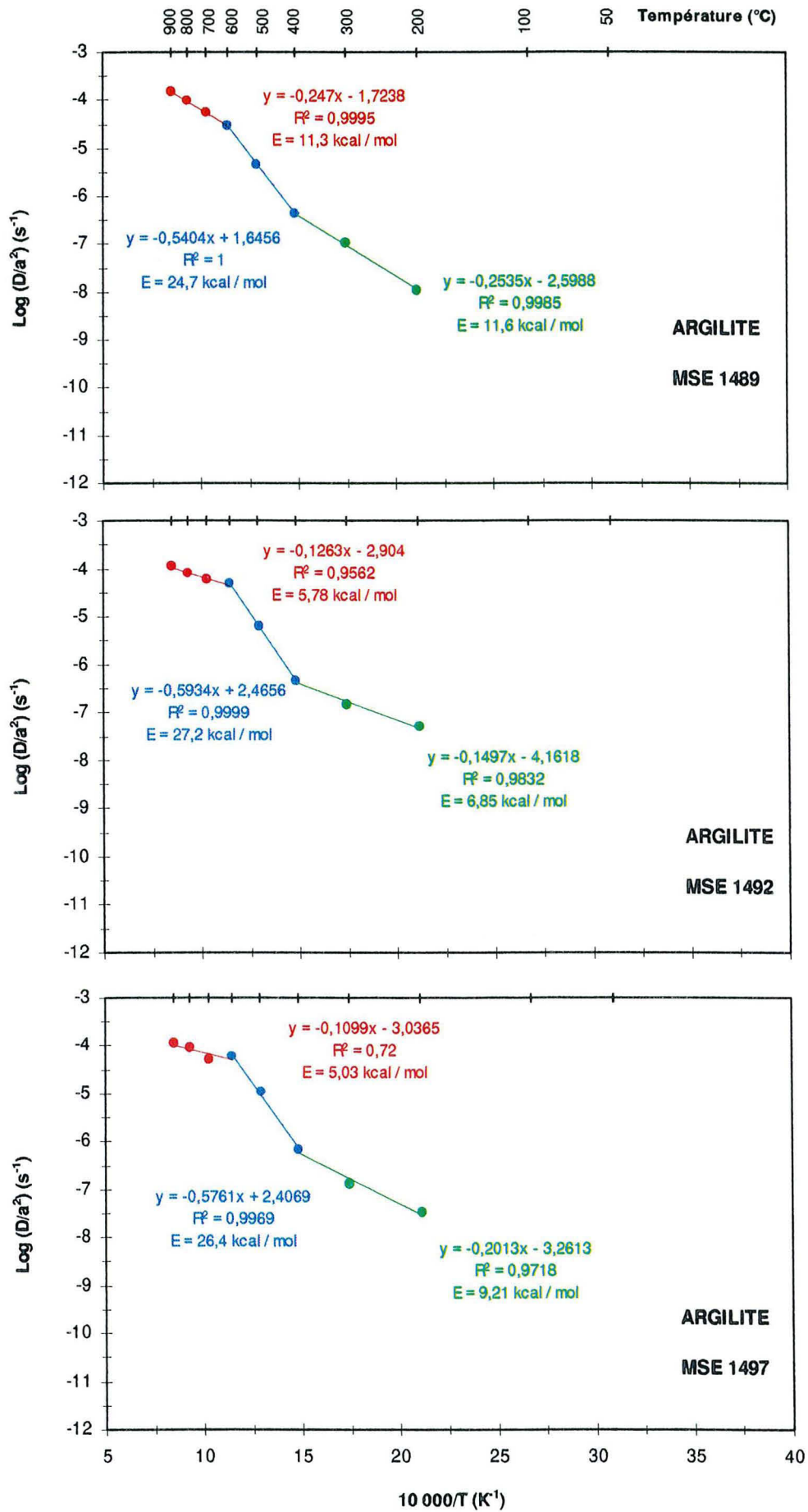


Figure 45 : Profils de diffusion des argilites pour des paliers de 15 minutes et énergies d'activation associées (E).

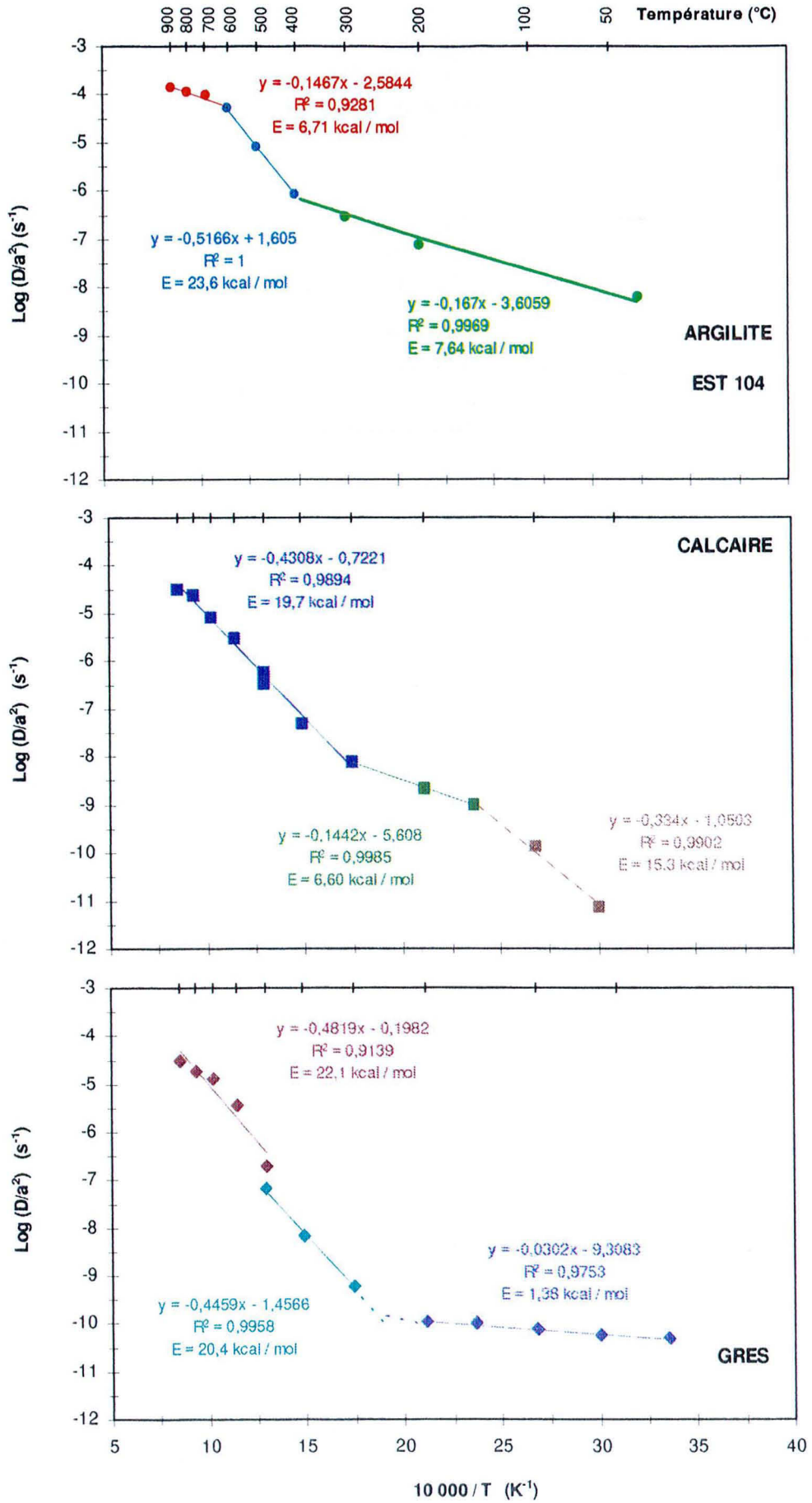


Figure 46 : Profils de diffusion dans les roches sédimentaires pour des paliers de 15 (argilites) à 60 minutes (grès et calcaire) et énergies d'activation associées E.

Pour les argilites, trois segments sont définis : le premier correspond à des températures inférieures à 400°C, le second se situe entre 400 et 600°C et le troisième concorde avec des températures supérieures à 600°C. Les énergies d'activation sont faibles pour les basses températures (6.8 – 11.6 kcal/mol). Elles augmentent pour le second segment de diffusion (23.6 – 27.2 kcal/mol) puis diminuent lors des derniers paliers (5.0 – 11.3 kcal/mol).

Pour les calcaires, 4 profils de diffusion sont repérés. Le premier est défini pour une température inférieure à 150°C et une énergie d'activation de 15.3 kcal/mol. Les autres profils pourraient correspondre à ceux décrits pour les argilites compte tenu de leur énergie d'activation voisine (respectivement 6.6 – 20.2 – 7.7 kcal/mol).

Les grès affichent, comme les calcaires, 4 segments de diffusion. Toutefois, ils se différencient par un profil basse température de très faible énergie d'activation (1.4 kcal/mol) et par 2 profils à forte énergie d'activation (20.4 et 30.9 kcal/mol) pour les hautes températures. Le dernier profil, comme pour les argiles et les calcaires, correspond à une énergie d'activation plus faible (11.5 kcal/mol).

Comment expliquer ces différents segments de diffusion ?

Par des processus distincts. En effet, il existe différents types de diffusion : celle de surface, le long des grains et volumique. Les énergies d'activation les plus élevées correspondent logiquement à la diffusion volumique et celles plus basses aux deux autres catégories. Cette hypothèse expliquerait le fait que les trois types de roches aient des profils de diffusion assez proches les uns des autres.

D'autre part, la baisse générale des énergies d'activation à très haute température traduit vraisemblablement un épuisement des sites de diffusion volumique et/ou une déstabilisation de la structure. En effet, à haute température, on peut assister au réarrangement de la matière et faciliter de cette façon la migration de l'hélium.

Les types de diffusion énumérés ci-dessus peuvent être discutés en termes de sites préférentiels de He dans les roches :

- l'échantillon, malgré un dégazage de 12 heures, peut encore contenir de l'hélium atmosphérique résiduel en surface, qui s'échappe dès les premiers paliers de température ($T < 400^\circ\text{C}$). De l'hélium situé dans les interstices de la roche et/ou dans les sites interfoliaires des argiles, peut également diffuser à basse température.
- la roche contient différents minéraux, chacun caractérisé par son propre coefficient de diffusion. Certains minéraux libèrent de l'hélium dès 200°C et d'autres pour des températures plus élevées. De plus, si l'hélium est piégé au sein de la structure du minéral, il sera libéré à plus haute température.
- la roche est constituée de grains de taille variable : à basse température, les minéraux de petite taille libèrent la totalité de leur hélium. Ainsi, à plus haute température, seuls les gros grains diffusent encore de l'hélium.

La première suggestion pourrait expliquer les droites de plus faible pente. Les deux autres postulats pourraient se concurrencer et jouer un rôle pour les paliers de températures plus élevés. Cependant, comme les rapports isotopiques de l'hélium fluctuent de façon notable au cours des différents paliers de températures, il est plus vraisemblable que ce soient des minéraux différents qui modifient préférentiellement les compositions isotopiques de l'hélium plutôt que la différence de taille des grains.

| | Apatite | Grenat | Titanite | Monazite | Zircon |
|----------------|---------|----------|-----------|----------|---------|
| E (kcal / mol) | 35 - 39 | 158 ± 40 | 43 - 48.5 | 56 - 60 | 32 - 33 |

Tableau 30 : Energies d'activation de minéraux séparés (Wolf et al., 1996 ; Pik and Marty, 1999 ; Dunai and Roselieb, 1996).

| | Température (°C) | a (cm) | Temps cumulé (s) | Fraction He libéré | D (cm ² /s) | 10 000 / T (K ⁻¹) | Log (D/a ²) (s ⁻¹) |
|----------|---------------------|-----------|---------------------|-----------------------|---------------------------|----------------------------------|---|
| CALCAIRE | 150 | 1.1 | 11880 | 0.02 | 3.06 x 10 ⁻⁹ | 23.6 | -13.67 |
| | 200 | 1.1 | 89880 | 0.03 | 4.11 x 10 ⁻¹⁰ | 21.1 | -11.40 |
| | 250 | 1.1 | 153180 | 0.04 | 1.63 x 10 ⁻⁹ | 19.1 | -10.05 |
| | 350 | 1.1 | 274680 | 0.14 | 1.65 x 10 ⁻⁸ | 16.0 | -9.20 |
| | 400 | 1.1 | 433680 | 0.30 | 5.71 x 10 ⁻⁸ | 14.9 | -8.52 |
| | 450 | 1.1 | 488880 | 0.42 | 2.33 x 10 ⁻⁷ | 13.8 | -7.76 |
| | 550 | 1.1 | 514380 | 0.64 | 1.77 x 10 ⁻⁶ | 12.1 | -6.11 |
| | 600 | 1.1 | 678480 | 0.84 | 5.90 x 10 ⁻⁷ | 11.5 | -6.10 |
| | 650 | 1.1 | 772680 | 0.85 | 8.72 x 10 ⁻⁸ | 10.8 | -6.07 |
| GRES | 106 | 1.1 | 87900 | 0.00 | 2.61 x 10 ⁻¹⁴ | 26.4 | -13.67 |
| | 200 | 1.1 | 171600 | 0.00 | 4.77 x 10 ⁻¹² | 21.1 | -11.40 |
| | 250 | 1.1 | 257100 | 0.01 | 1.07 x 10 ⁻¹⁰ | 19.1 | -10.05 |
| | 300 | 1.1 | 341100 | 0.03 | 7.68 x 10 ⁻¹⁰ | 17.4 | -9.20 |
| | 350 | 1.1 | 416700 | 0.06 | 3.67 x 10 ⁻⁹ | 16.0 | -8.52 |
| | 400 | 1.1 | 510660 | 0.14 | 2.09 x 10 ⁻⁸ | 14.9 | -7.76 |
| | 450 | 1.1 | 521280 | 0.31 | 9.46 x 10 ⁻⁷ | 13.8 | -6.11 |
| | 550 | 1.1 | 605580 | 0.71 | 9.54 x 10 ⁻⁷ | 12.1 | -6.10 |
| | 650 | 1.1 | 694080 | 0.86 | 1.03 x 10 ⁻⁶ | 10.8 | -6.07 |
| ARGILE | 150 | 0.9 | 115500 | 0.04 | 1.16 x 10 ⁻⁹ | 23.6 | -8.84 |
| | 200 | 0.9 | 198300 | 0.05 | 8.98 x 10 ⁻¹⁰ | 21.1 | -8.96 |
| | 250 | 0.9 | 255000 | 0.06 | 1.58 x 10 ⁻⁹ | 19.1 | -8.71 |
| | 350 | 0.9 | 377400 | 0.22 | 2.90 x 10 ⁻⁸ | 16.0 | -7.45 |
| | 400 | 0.9 | 536400 | 0.48 | 1.20 x 10 ⁻⁷ | 14.9 | -6.83 |
| | 450 | 0.9 | 591900 | 0.60 | 2.90 x 10 ⁻⁷ | 13.8 | -6.45 |
| | 550 | 0.9 | 617100 | 0.78 | 3.70 x 10 ⁻⁷ | 12.1 | -6.34 |
| | 600 | 0.9 | 780900 | 0.91 | 4.72 x 10 ⁻⁷ | 11.5 | -6.23 |
| | 650 | 0.9 | 875100 | 0.95 | 5.10 x 10 ⁻⁷ | 10.8 | -6.20 |

Tableau 31 : Calculs des coefficients de diffusion D pour des paliers de température d'environ 24 heures.

Les énergies d'activation calculées pour des minéraux séparés (Tableau 30) sont supérieures à celles supposées correspondre à de la diffusion solide pour nos échantillons de roches. Ainsi, les paliers à haute température ne peuvent être assimilés à de la diffusion solide pure, mais à un processus qui couple de la diffusion solide puis de la diffusion dans le milieu interstitiel.

Nous avons déterminé pour les quatre échantillons d'argilites le temps nécessaire pour que 50% (Figure 47) puis 99.9% (Figure 48) de l'hélium contenu dans la roche soit libéré pour 3 distances distinctes (10 m, 30 m et 70 m) en fonction de la température. Globalement, en faisant l'hypothèse d'un milieu homogène, pour parcourir 10 mètres, environ 1 Ma est nécessaire si la température est de 300°C, mais à 25°C il faut au moins 10³ Ma. En détail, des différences d'un ordre de grandeur sont observées entre une libération de 50% et de 99.9% de l'hélium à partir d'une distance de 70 mètres.

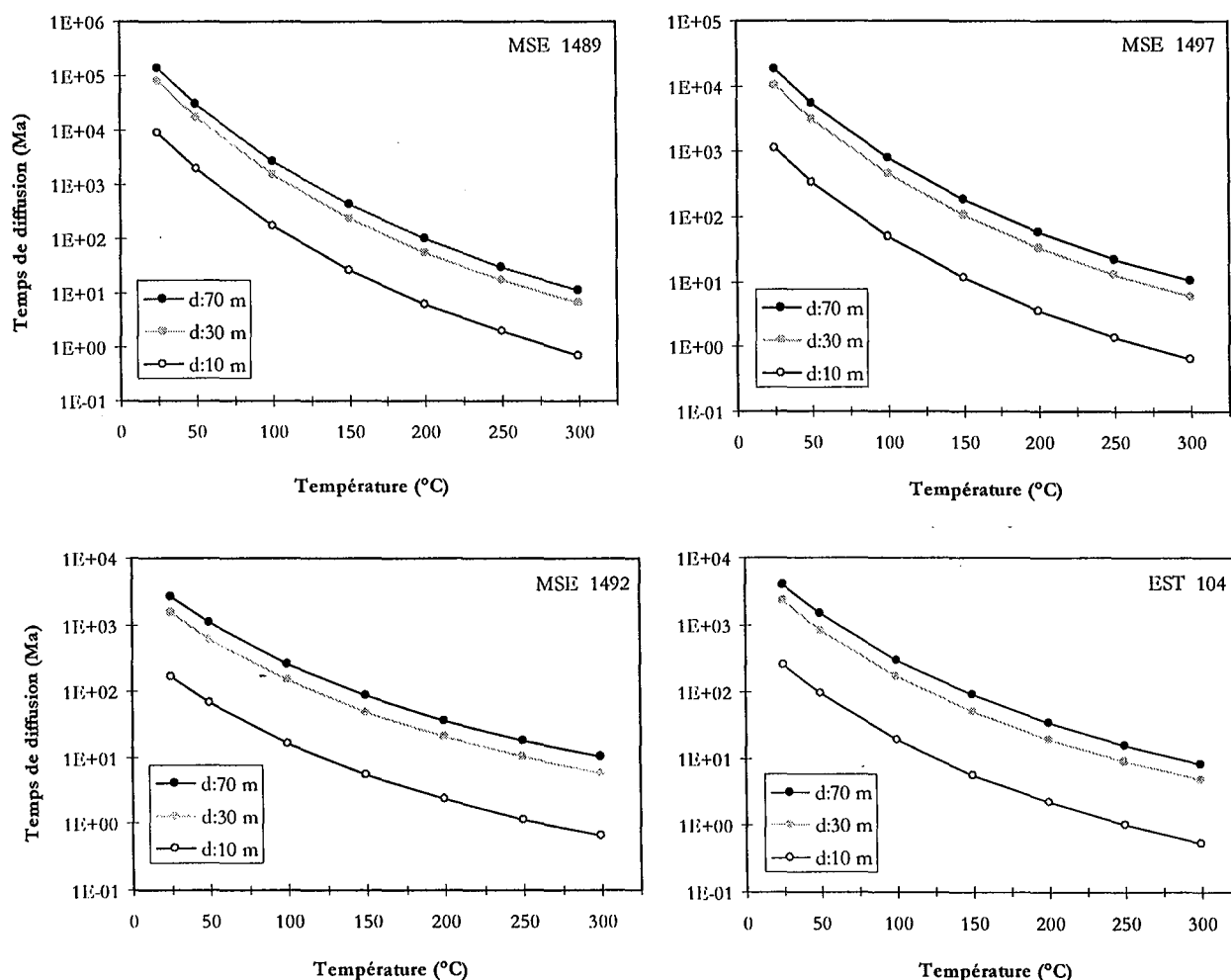


Figure 47 : Estimation du temps nécessaire pour libérer 50% de l'hélium contenu dans les argilites pour une distance donnée.

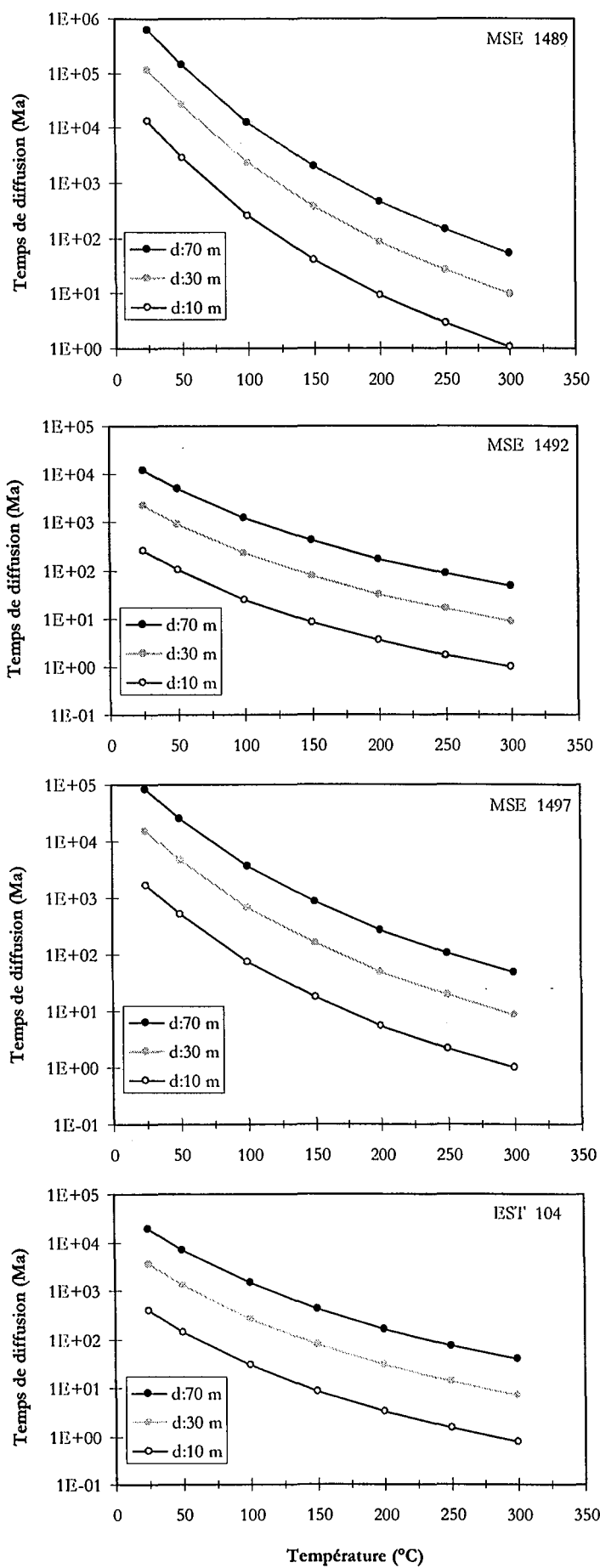


Figure 48 : Estimation du temps nécessaire pour libérer 99.9% de l'hélium contenu dans les argilites pour une distance donnée.

Chapitre VI : Origine de l'hélium dans les roches sédimentaires de l'Est du Bassin Parisien

XVI. ANALOGIE ENTRE LE COMPORTEMENT DE He ET CELUI DE L'HYDROGENE DE L'EAU

Dans la roche, l'hélium peut être sous forme dissoute dans l'eau de porosité ou dans l'eau de structure. Il est donc possible que le comportement de ces espèces présente des similarités, ce que nous nous proposons de documenter dans cette section.

La composition isotopique de l'hydrogène varie en fonction de l'origine de l'eau. Ainsi, en identifiant les rapports δD extraits de la roche lors de chaque étape d'un chauffage séquentiel, il est possible de rechercher les différentes composantes d'eau et/ou d'hydrogène, ainsi que leurs sites.

L'eau a été extraite par une technique de déshydratation sous vide élaborée par France-Lanord (1997).

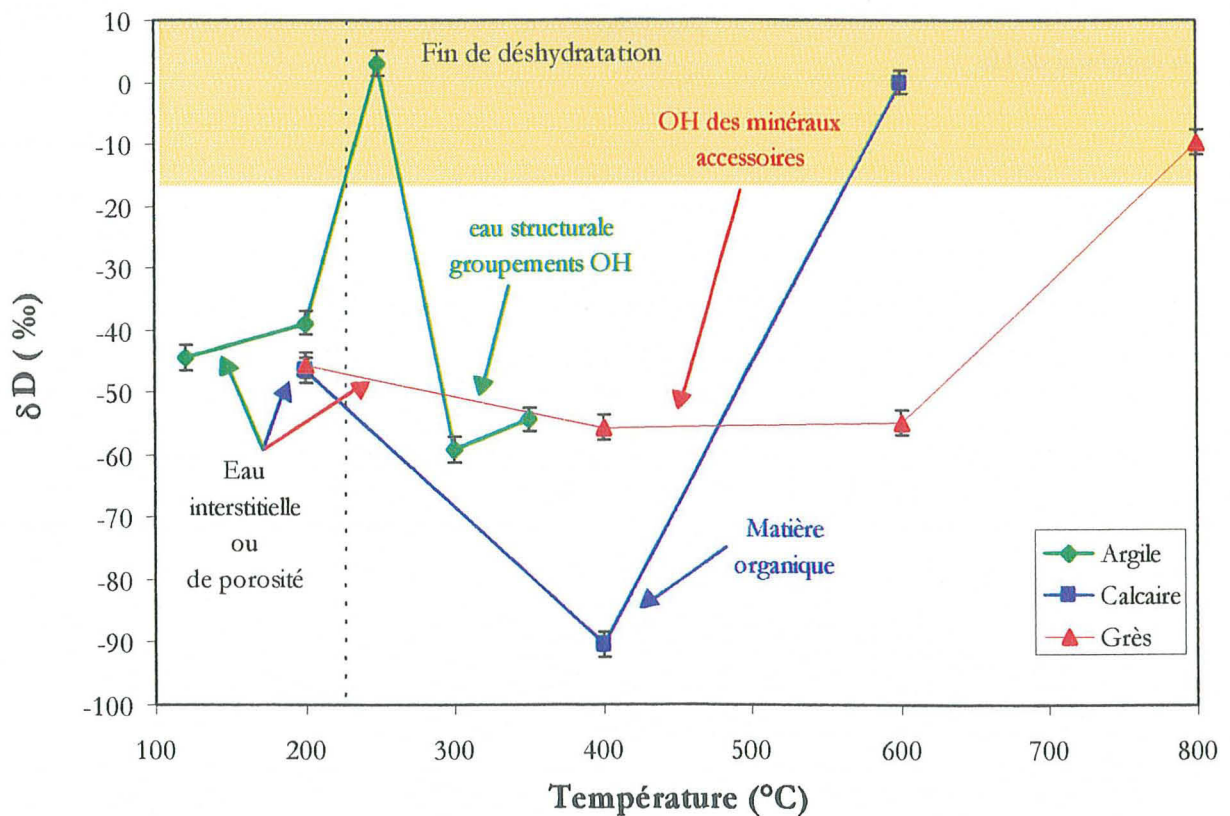


Figure 49 : Relation entre les rapports isotopiques de l'hydrogène et la température. (Pour l'argile : données France Lanord, 1997).

Dans le cas des argiles (Figure 49), la libération des eaux de porosité et adsorbées, caractérisées par un $\delta D = -44.4\text{‰}$, est observée pour une température inférieure à 200°C . Ensuite, la valeur du rapport δD augmente ($+3.1\text{‰}$) et traduit un épuisement de l'échantillon en eau faiblement liée. A partir de 250°C , l'eau extraite a une signature isotopique en hydrogène de -59.1 et -54.4‰ , qui résulte de l'extraction de l'eau structurale (France-Lanord, 1997).

A 200°C , les calcaires affichent une valeur en δD (-46.5‰) voisine de celle des argiles, ce qui laisse supposer qu'ils libèrent leur eau de porosité pour des températures similaires (Figure 49). A 400°C , l'hydrogène libéré est enrichi en isotopes légers ($\delta D = -90.3\text{‰}$), ce qui peut correspondre à de l'eau extraite de la matière organique. Puis, à 600°C , la déshydratation est totale car les δD deviennent positifs.

Les grès ont des rapports isotopiques de -45.5‰ pour une température inférieure à 200°C (Figure 49). Cette valeur est typique de l'eau peu liée. Entre 400 et 600°C , les valeurs sont constantes ($\approx -55\text{‰}$) et pourraient signaler l'extraction de groupe OH de minéraux accessoires de la roche comme de la goéthite (FeO-OH). En effet, ce grès concentre un peu de fer (Annexe I). Au-delà 600°C , la totalité de l'eau contenue dans la roche est extraite : les δD montrent un appauvrissement drastique en isotopes légers.

Les différents types d'eau mis en évidence en fonction de la température montrent que les profils de diffusion sont le résultat d'une contribution de diffusion solide et de diffusion dans l'eau. A basse température, il y a compétition entre la diffusion de l'hélium contenu dans l'eau de porosité et celle de surface et aux joints de grain. A haute température, l'hélium extrait est un mélange entre de la diffusion dans les solides (minéraux) et dans de l'eau plus liée (eau interfoliaire ; groupements hydroxyles).

Il serait intéressant de mesurer les quantités d'eau extraites par déshydratation des roches afin d'effectuer un bilan de masse et ainsi quantifier plus précisément la contribution de ces différents types d'eau dans la migration de He.

XVII. ETUDE DE LA DISTRIBUTION DE L'URANIUM DANS LES ROCHES SEDIMENTAIRES PAR TRACES DE FISSION

Cette étude a été réalisée en collaboration avec l'université de Munich et plus particulièrement avec le concours de Lutz Hecht.

XVII.1. METHODE ANALYTIQUE

Le but de ces analyses est de répertorier les sites contenant de l'uranium dans 3 échantillons de roches sédimentaires : i) Grès du Trias ; ii) Calcaire du Dogger ; iii) Argilites du Callovo-Oxfordien, afin de préciser les sites à partir desquels l'hélium (élément fils de U) est émis.

Le principe de cette méthode consiste à irradier les échantillons, afin de provoquer la fission des noyaux de ^{235}U et d'étudier les traces engendrées par cette réaction.

Des lames minces polies, réalisées sur des plaquettes en silice pure, pour éviter toute contamination, sont recouvertes d'un film polyamide, Kapton H (produit Dupont de Nemours). Elles sont ensuite soumises à un flux de neutrons thermiques (Price and Walker, 1963) selon la technique du détecteur externe (Hamilton, 1966 ; Kleeman and Lovering, 1967) pour des temps variant de 1 à 10 minutes dans le réacteur de recherche FRM I (Technische Universität München). Le flux intégré est de 2.3×10^{13} neutrons/cm². s. Cette irradiation provoque la fission du noyau de l'isotope ²³⁵U et l'émission de produits de fission, qui sont ralentis par le film et y occasionnent des défauts au voisinage immédiat de la réaction nucléaire, ce qui permet de cartographier l'uranium de l'échantillon. Les traces de fission enregistrées sur le détecteur sont révélées au moyen d'une solution d'hypochlorite de sodium à 100°C pendant 8 minutes (Storzer and Selo, 1974) et le film kapton est rincé à l'eau courante avant d'être séché.

Les teneurs en uranium de la matrice ou de certains minéraux sont estimées par comparaison des densités des traces avec des standards. Les étalons 613b et 615b sont des verres standards (National Institute of Standards & Technology, USA) ayant une distribution homogène en uranium et une concentration de 0.8 et 37.4 ppm respectivement. Leurs teneurs ont été déterminées par activation neutronique.

La nature des phases donnant lieu à des traces de fission sont déterminées par mesure semi-quantitative au microscope électronique à balayage (MEB).

XVII.2. L'URANIUM DANS LES GRES

Dans les grès du Trias, les traces de fission sont principalement associées aux minéraux accessoires de la roche et à quelques minéraux principaux. Sur l'ensemble de la roche, aucune distribution homogène n'a pu être observée.

Les traces sont très denses dans le cas des magnétites (Figure 50 et Figure 51). Leur densité étant directement corrélée à la teneur en U, cette magnétite doit contenir environ 70 ppm d'uranium. Une telle concentration peut s'expliquer par la structure de ce minéral (Figure 53), qui s'avère très poreuse et qui permet ainsi l'adsorption d'uranium.

Des traces de même intensité, réparties sur un espace très restreint (Figure 55 et Figure 61), mettent en évidence de l'uranium localisé aux joints des grains dans des microphases (Figure 56 et Figure 60). Les minéraux accessoires caractéristiques de ces figures en forme d'étoile ou d'oursin sont les zircons, les rutiles, les monazites et les silicates d'uranium. Ce type de traces très rapprochées et très nombreuses ne permet pas un comptage rigoureux et empêche toute estimation des concentrations en U dans les phases associées. A titre d'exemple, des zircons peuvent contenir jusqu'à 30 fois la teneur de la roche totale en U.

La dernière phase susceptible de concentrer de l'uranium dans les grès est le quartz (Figure 57 et Figure 58). Les traces (Figure 55 et Figure 59) associées sont homogènes et moins denses que celles observées pour la magnétite. Ces minéraux doivent contenir environ 10 ppm d'uranium. La structure de ce type de quartz est poreuse (Figure 57), comme celle de la magnétite, ce qui facilite l'adsorption d'uranium. La Figure 59 montre également des traces reproduisant le contour du minéral sous le quartz. Ainsi, des auréoles d'oxydes d'uranium se développent à la périphérie des minéraux.

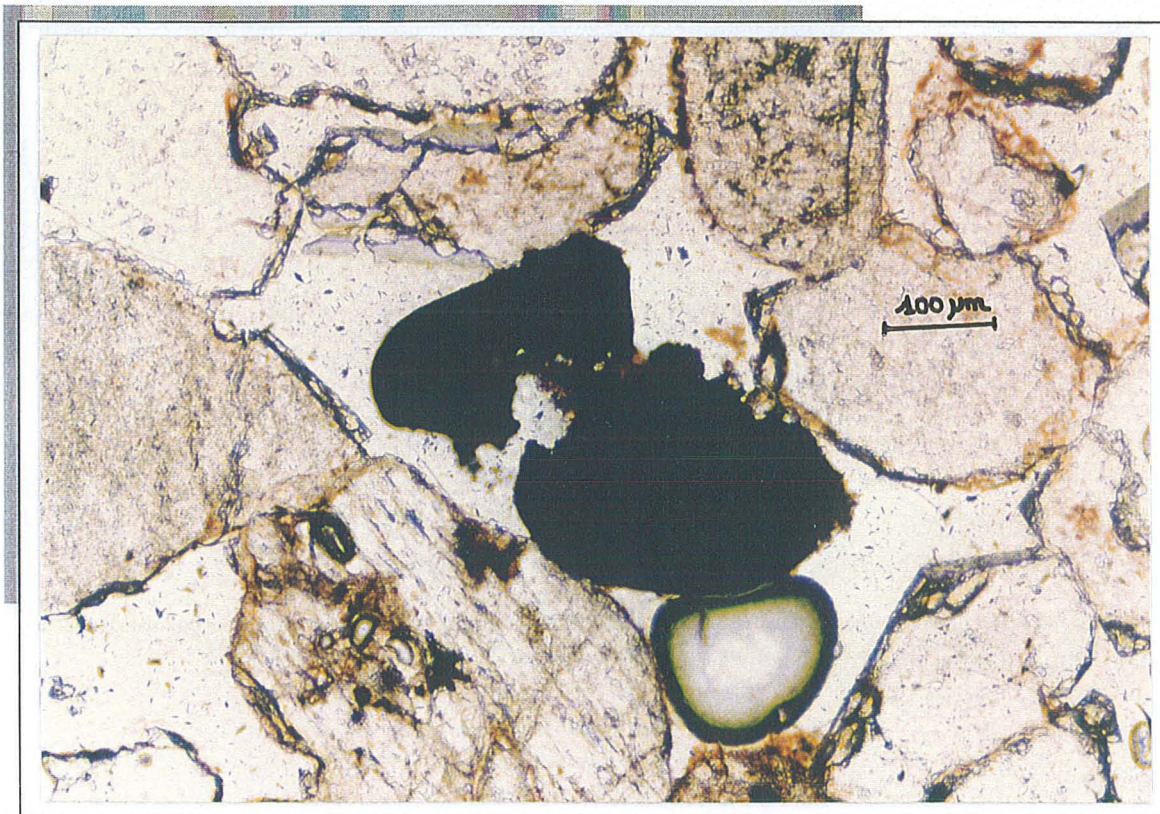


Figure 50 : Magnétite extraite d'un échantillon de grès observée en lumière naturelle transmise.

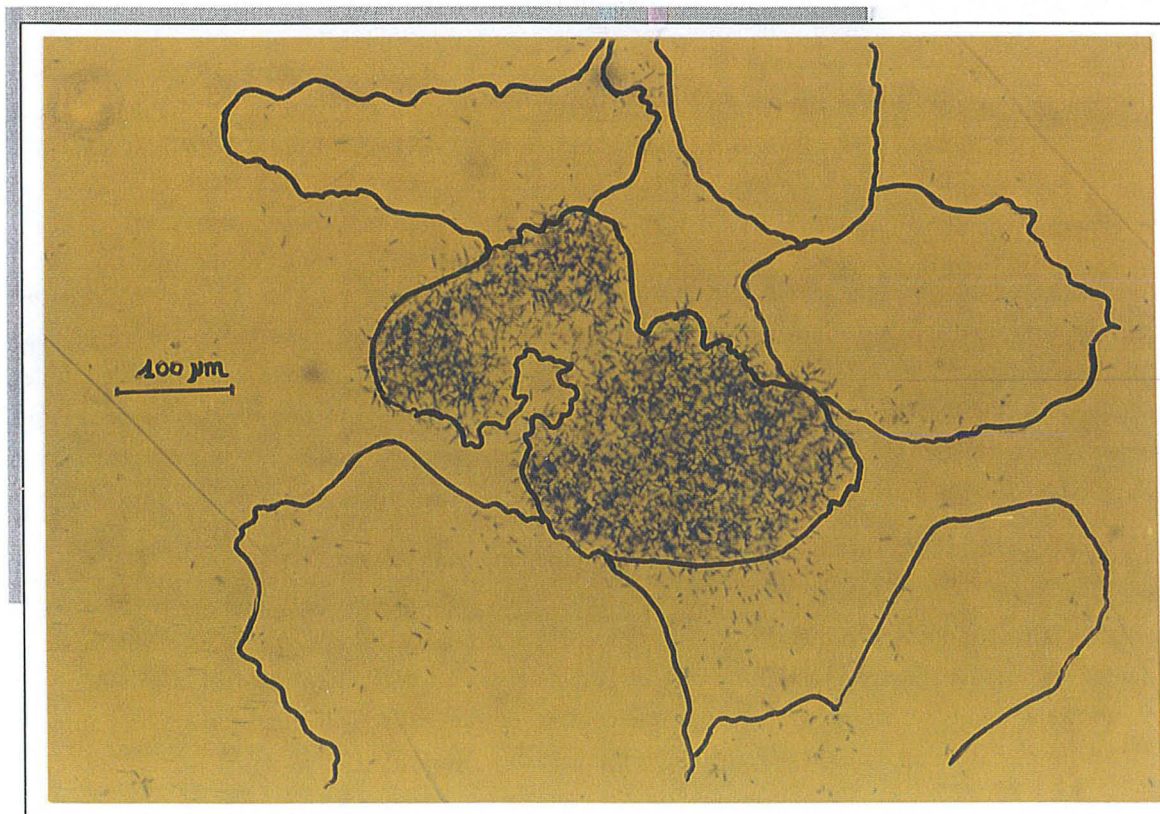


Figure 51 : Traces de fission correspond à la magnétite photographiée ci-dessus. Quelques traces éparses sont corrélées avec les joints de grains de la roche (grès).

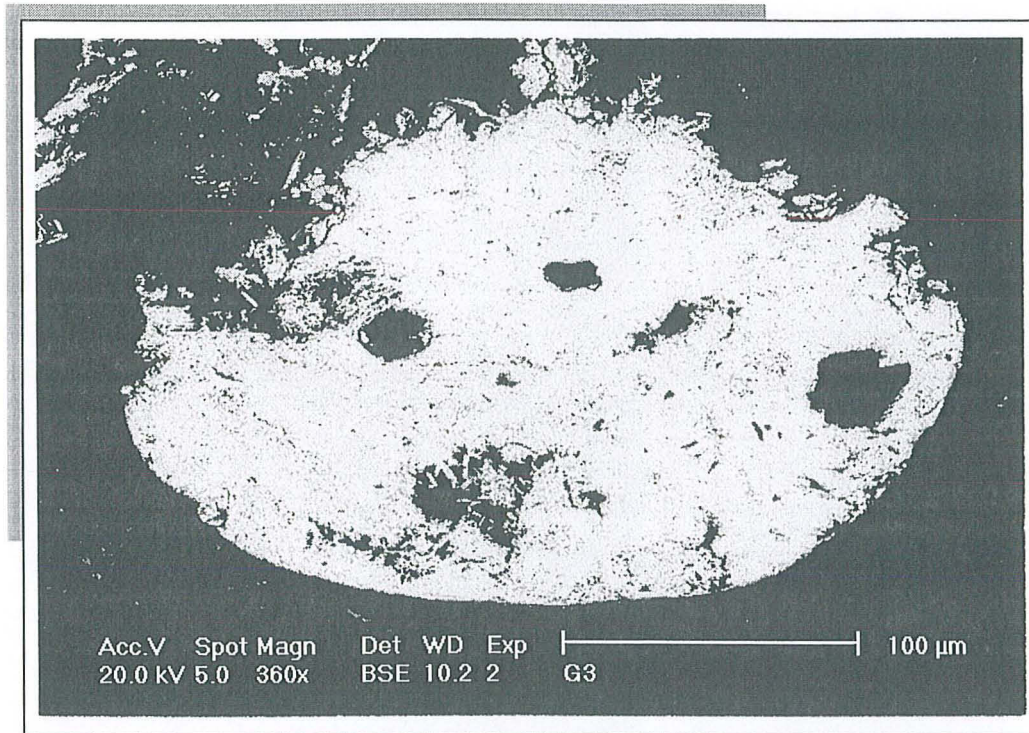


Figure 52 : Magnétite extraite d'un grès observée au MEB en mode rétrodiffusé.

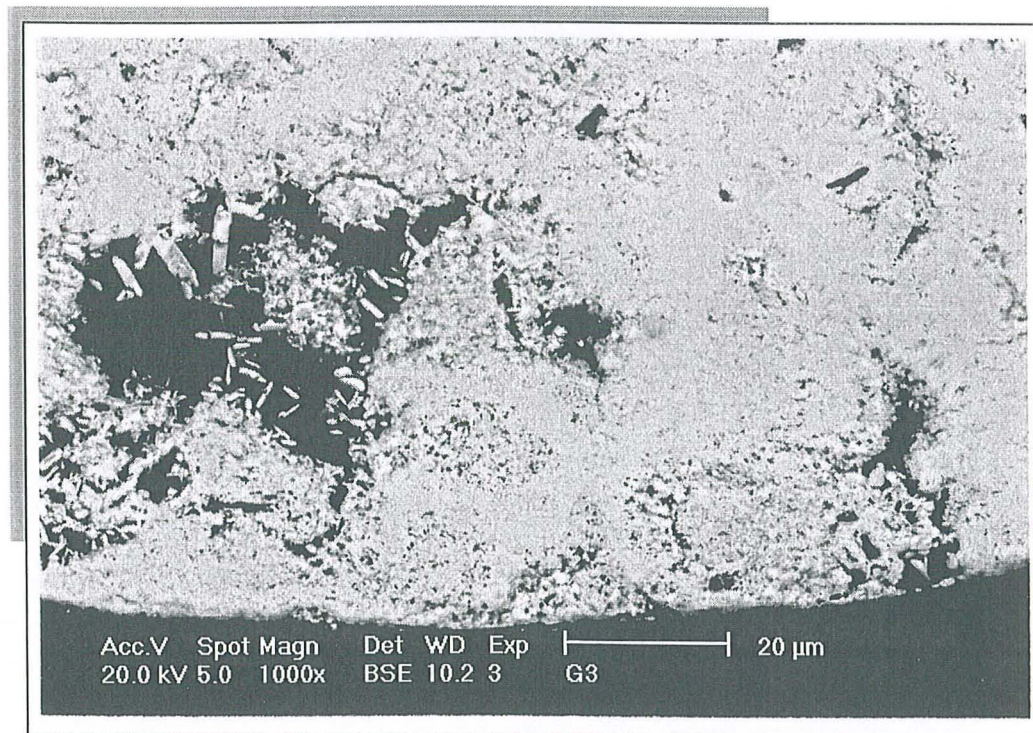


Figure 53 : Détail de la structure poreuse de la magnétite observée au MEB en mode rétrodiffusé.

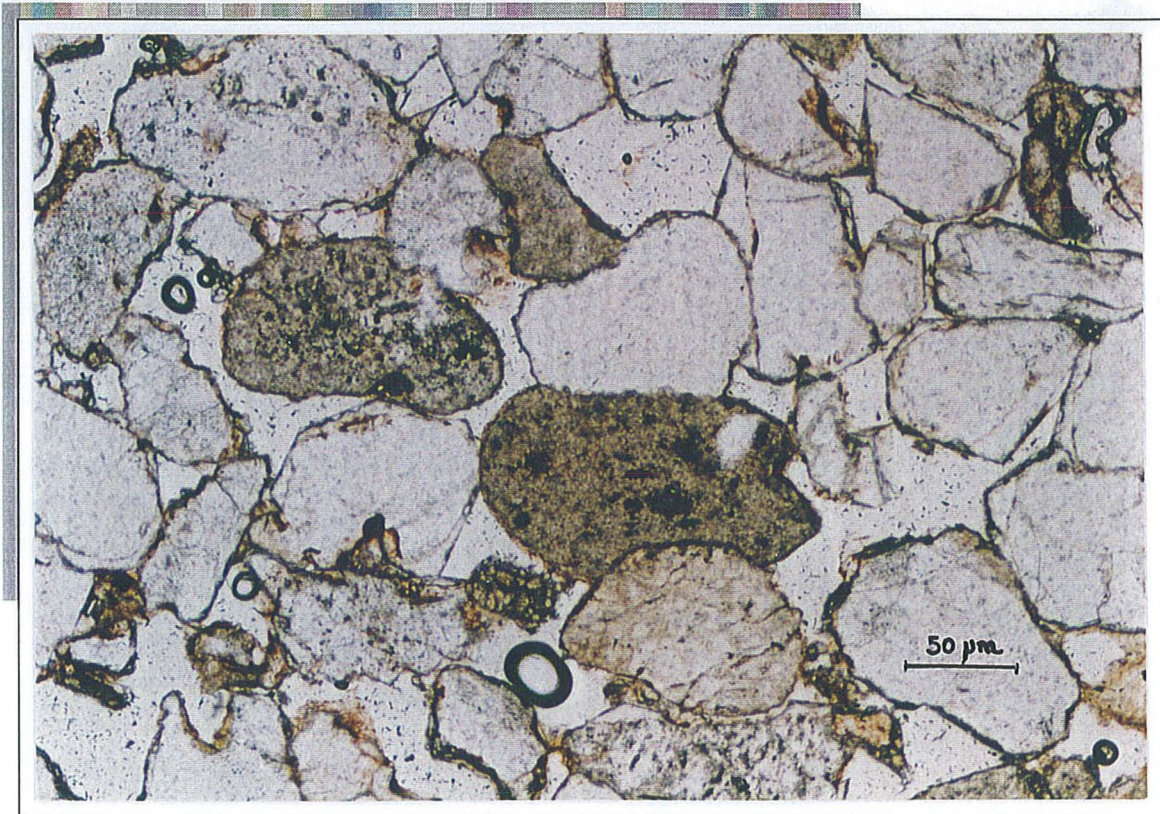


Figure 54 : Vue d'ensemble d'une lame mince de grès en lumière naturelle transmise.

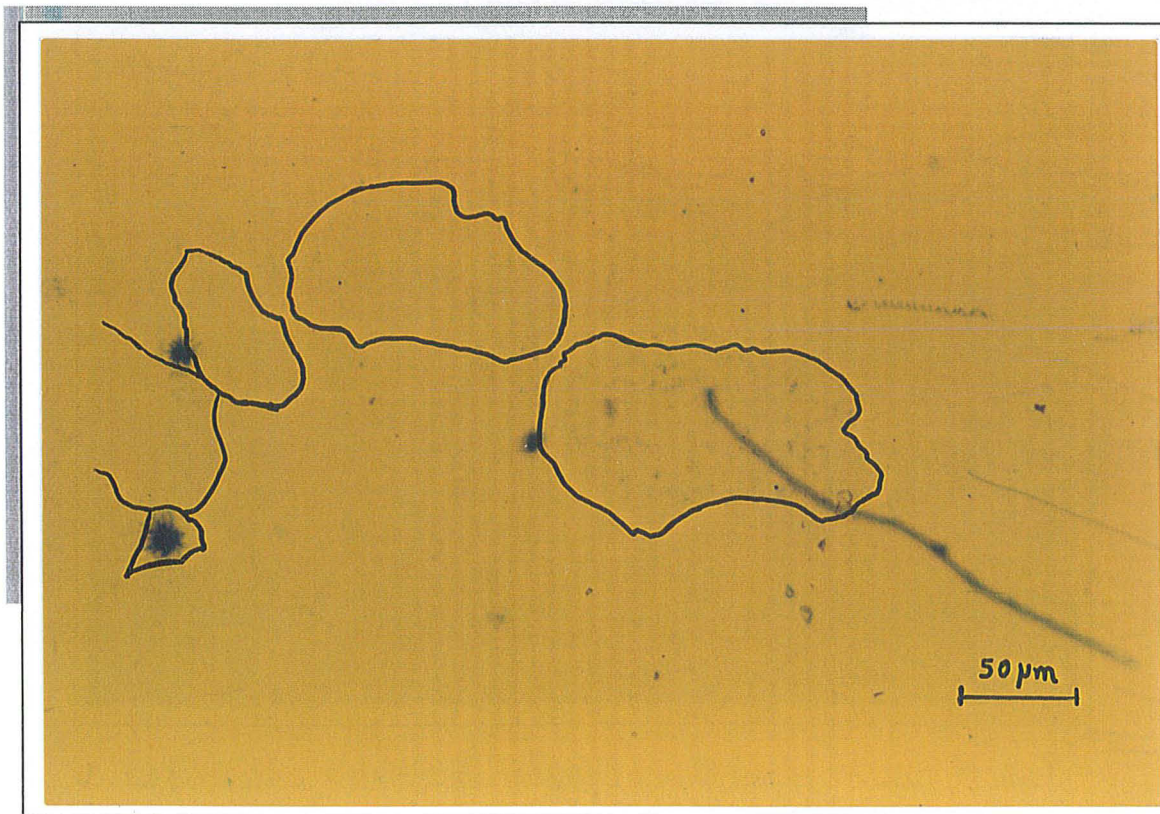


Figure 55 : Traces de fission correspondant à la lame représentée ci-dessus.

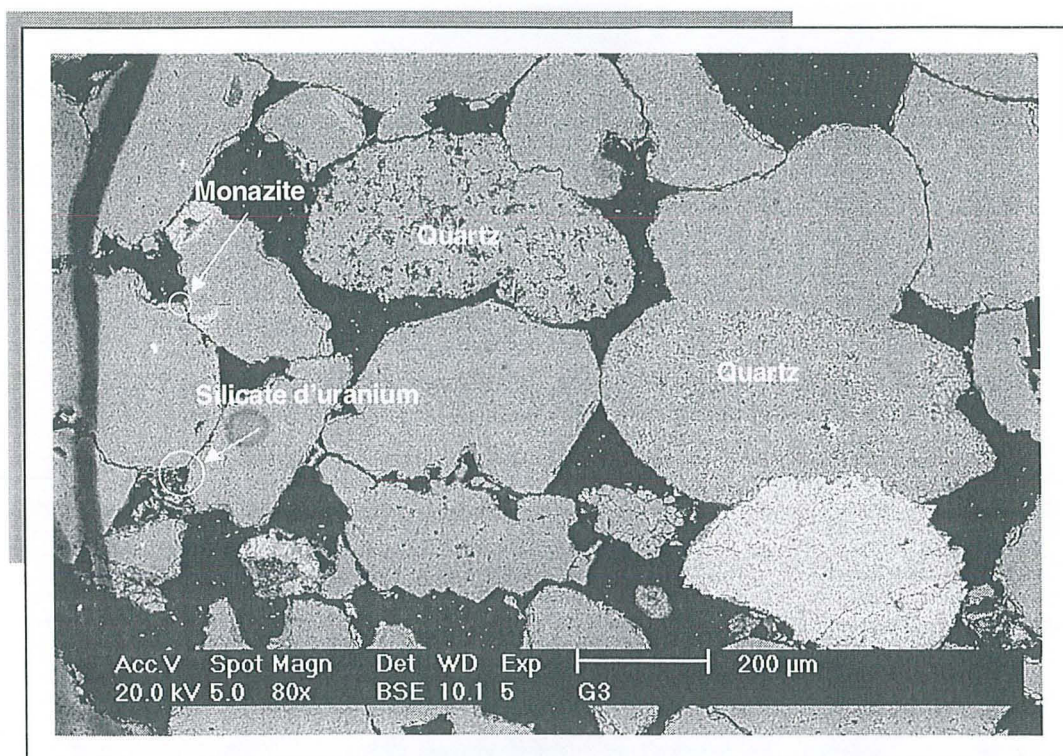


Figure 56 : Vue d'ensemble d'une lame mince de grès observée au MEB en mode rétrodiffusé.

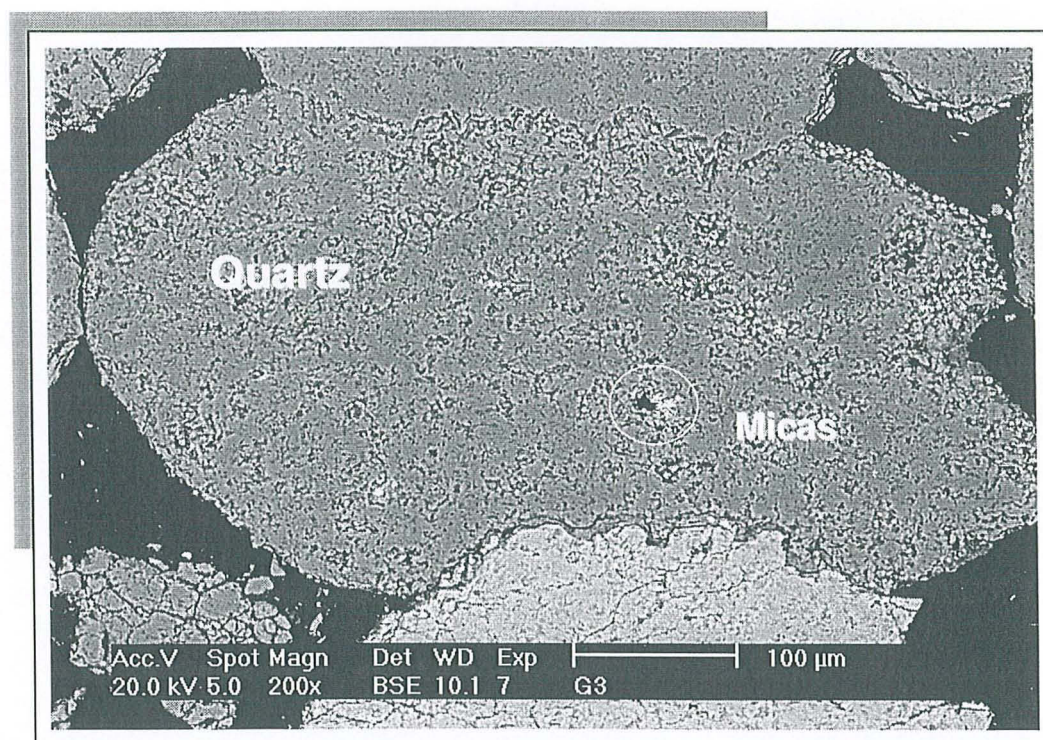


Figure 57 : Détail de la structure du quartz observé ci-dessus : porosité importante facilitant l'adsorption d'oxyde d'uranium.
Inclusion de structures feuilletées : micas contenant de l'apatite.

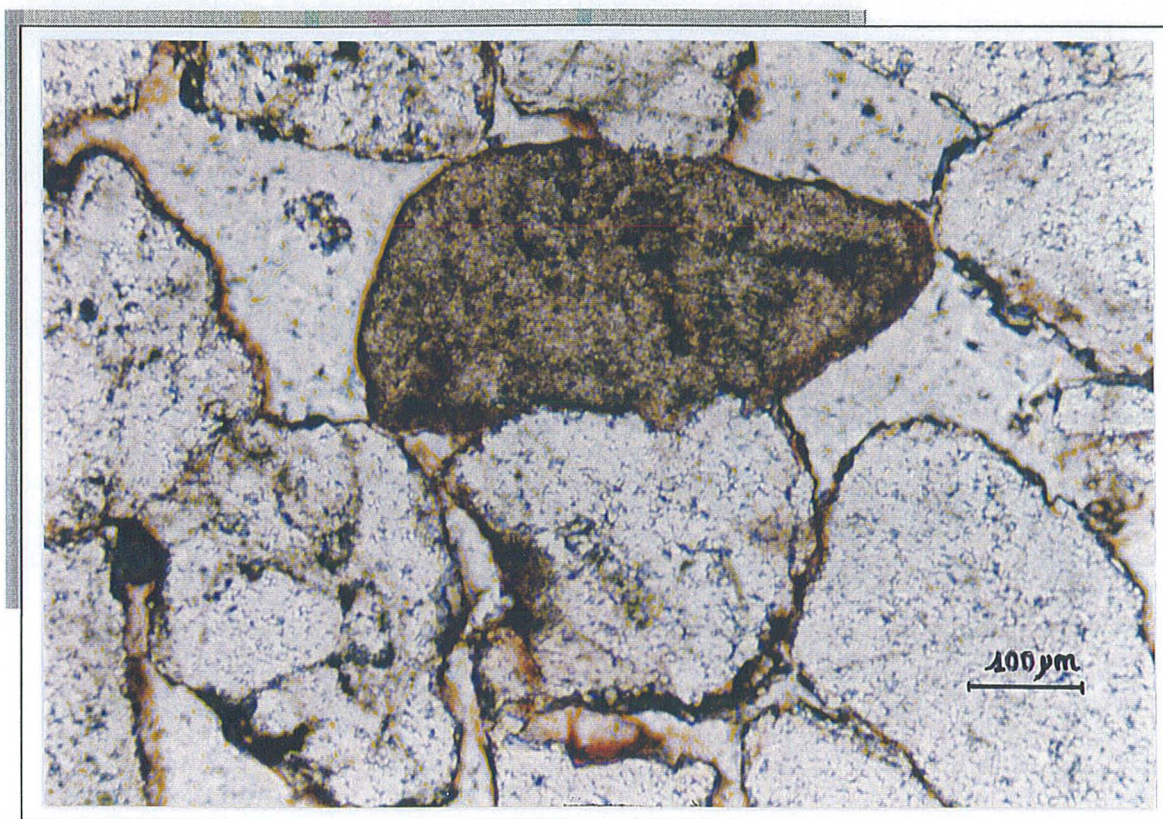


Figure 58 : Quartz extrait d'un grès observé sous lumière naturelle transmise.

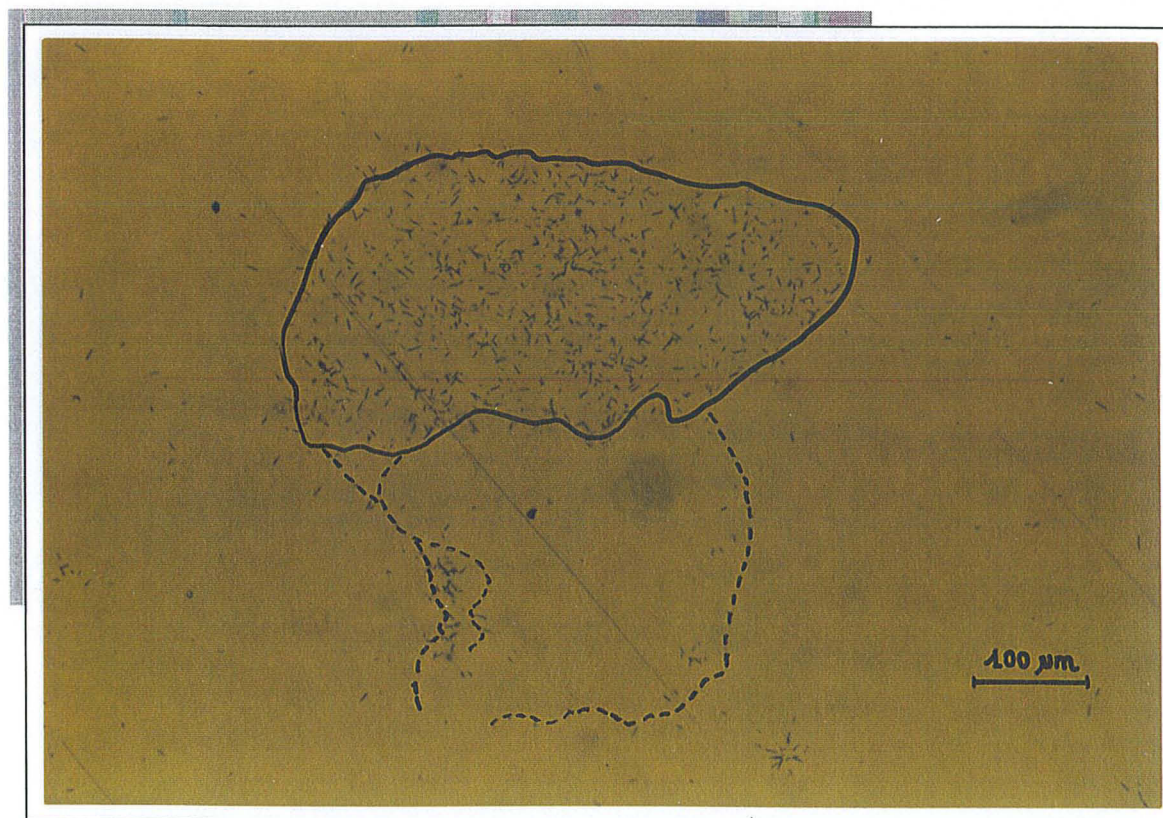


Figure 59 : Traces de fission associées au quartz photographié ci-dessus. Le film révèle aussi des impacts au niveau des joints de grains.

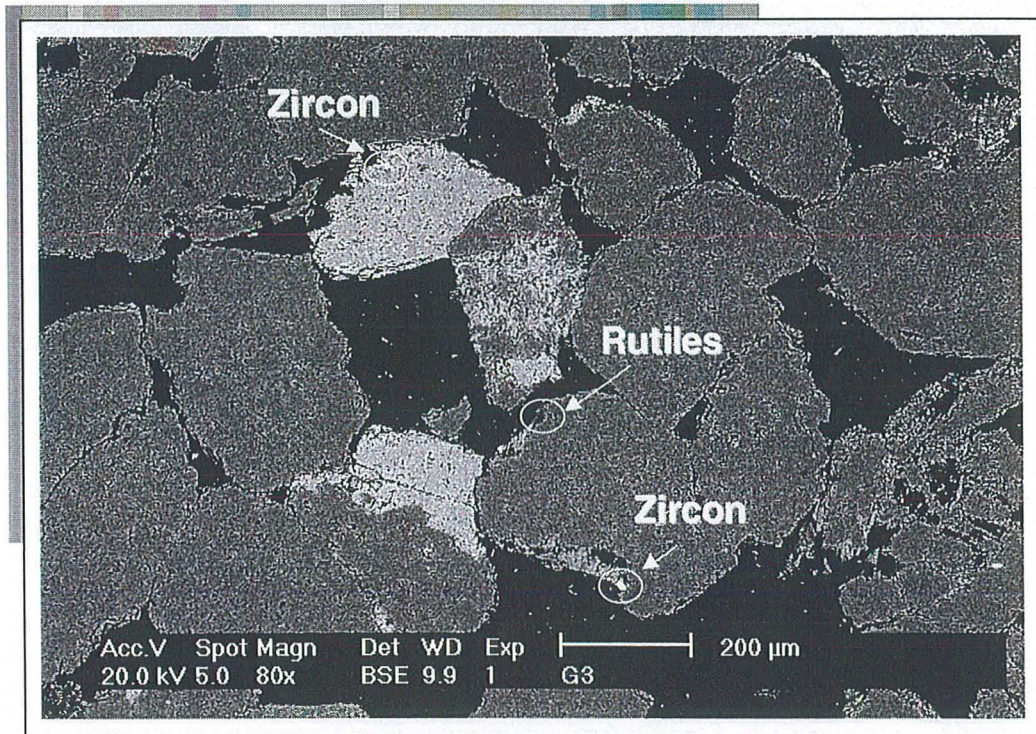


Figure 60 : Vue d'ensemble d'un échantillon de grès au MEB en mode rétrodiffusé.

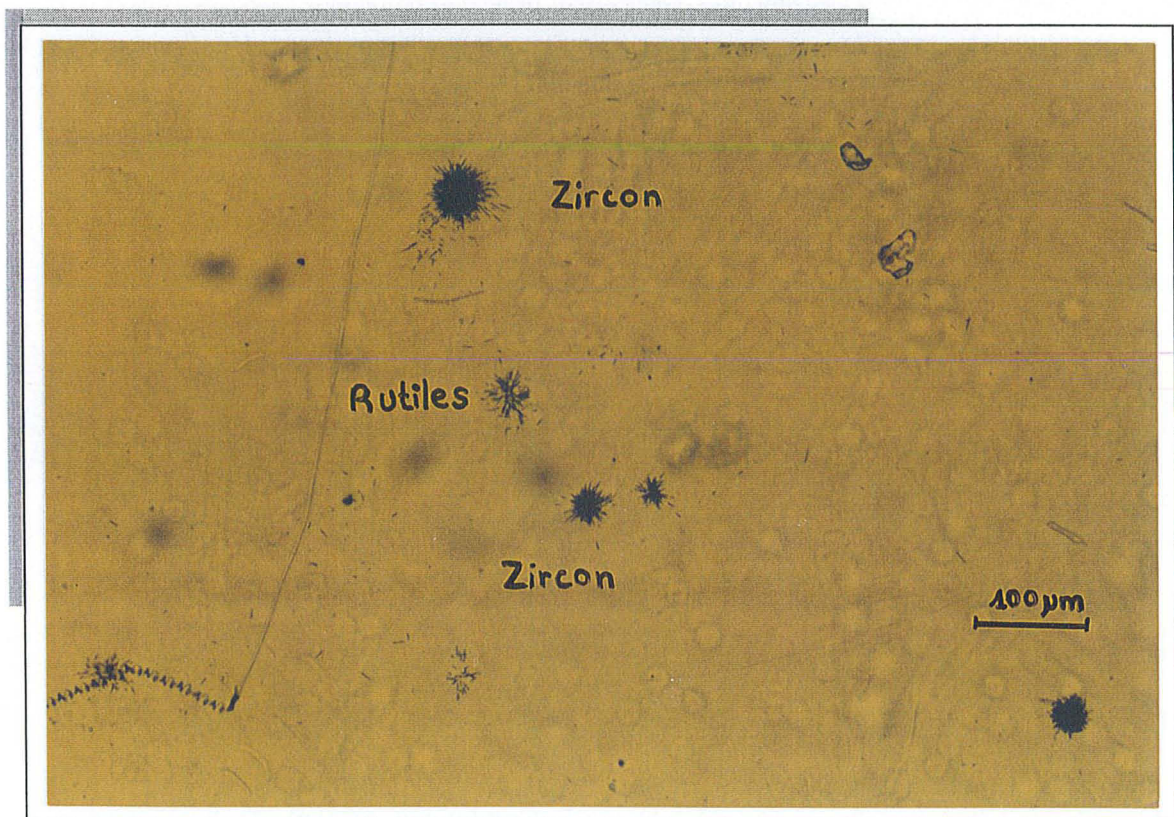


Figure 61 : Traces de fission en forme d'oursin correspondant aux minéraux accessoires décrits ci-dessus.

XVII.3. L'URANIUM DANS LES CALCAIRES

Les traces de fission repérées dans l'échantillon de roche calcaire sont principalement associées à des tests (CaCO_3) de taille millimétrique (Figure 62), qui sont inégalement répartis dans l'ensemble de la roche. Les traces (Figure 63) sont homogènes et très peu denses. Elles correspondent à une concentration de l'ordre du ppm.

Des minéraux accessoires tels que :

- l'ilménite (Figure 62, Figure 65 et Figure 69) ;
- l'apatite (Figure 62, Figure 66 et Figure 68) ;
- le rutile (Figure 67) ;
- la monazite (Figure 68) ;
- la célestine (Figure 68) ;
- le zircon (Figure 67) ;

engendrent des traces de fission, qui dessinent la forme du minéral quand celui-ci est de taille supérieure à $100 \mu\text{m}$ (Figure 64 et Figure 69) ou regroupées en forme d'oursin quand le minéral est de taille inférieure à la dizaine de micromètres.

Des oxydes Fe/Ti, telles les ilménites, concentrent beaucoup d'uranium (traces denses) et n'ont pas de phases accessoires en inclusions. En revanche, ces ilménites sont altérées (Figure 65). Par conséquent, la relation entre surface altérée et concentration en uranium suggère que le processus d'altération s'est accompagné d'une adsorption d'uranium en surface. Ce type de réaction a été décrit également dans des échantillons de roches volcaniques (Flehoc et al., 1987).

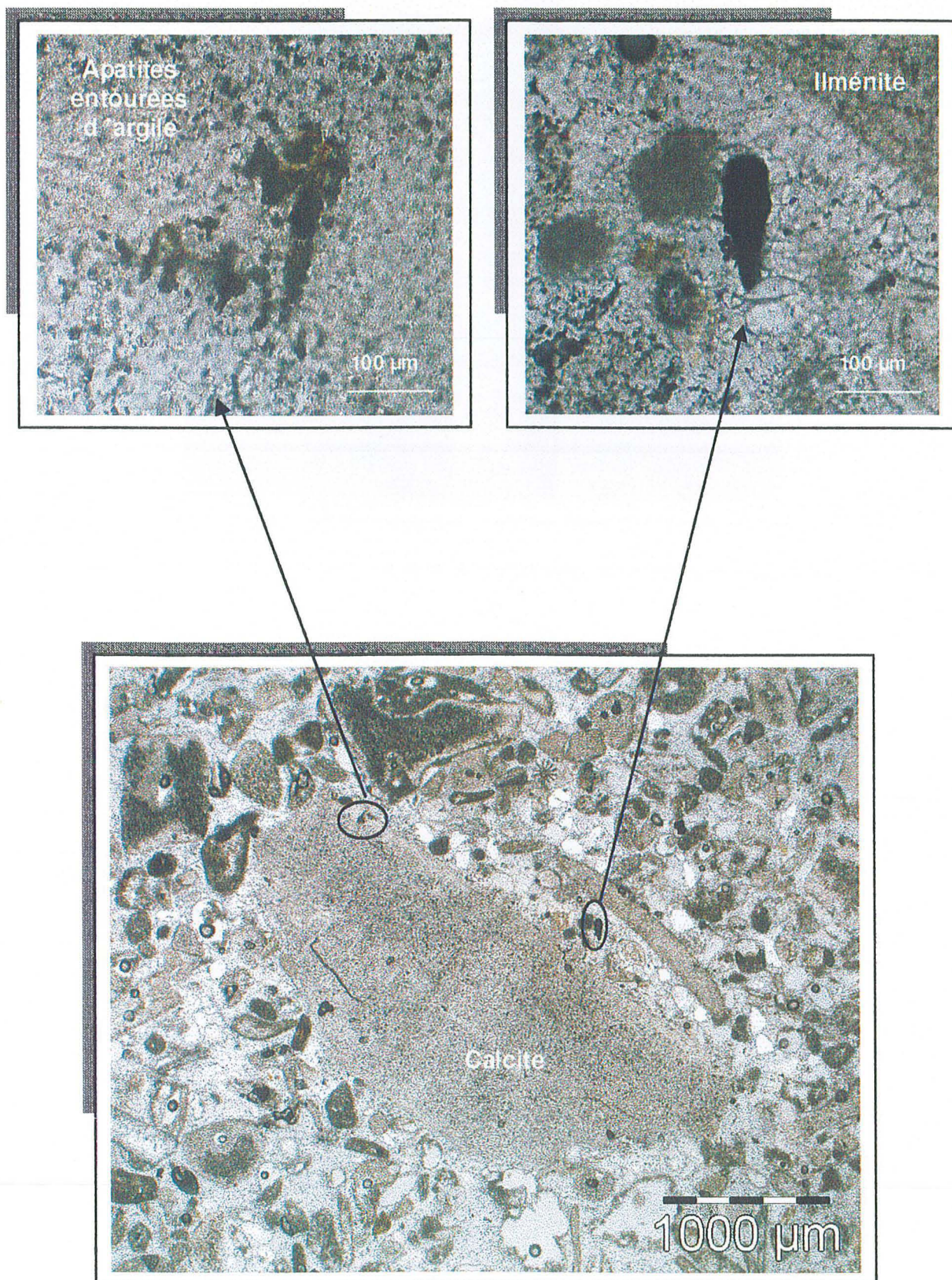


Figure 62 : Calcaire oolithique observé en lumière naturelle transmise.

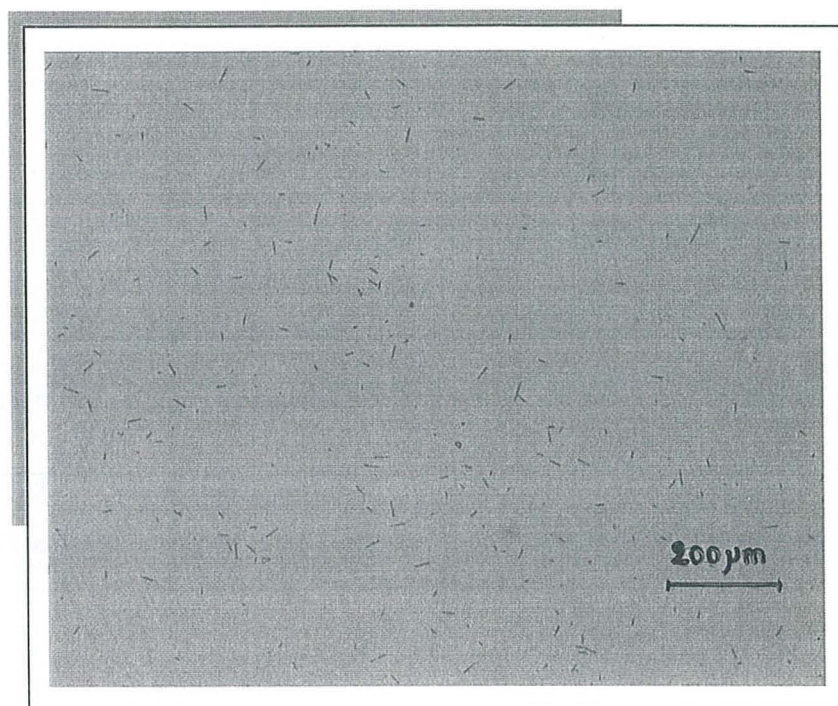


Figure 63 : Détail des traces de fission associées au test représenté figure 62.

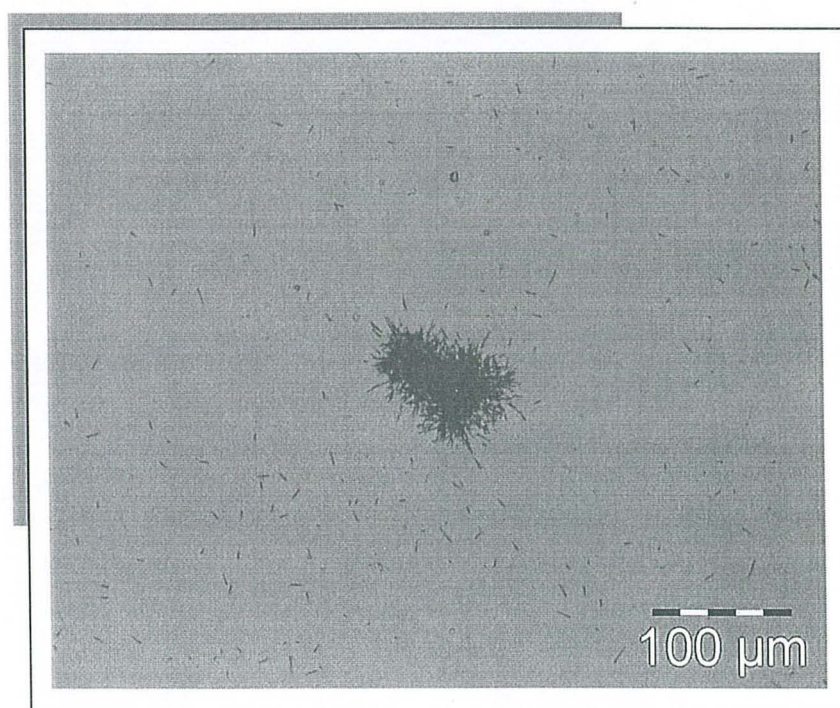


Figure 64 : Traces de fission associées à l'ilménite.

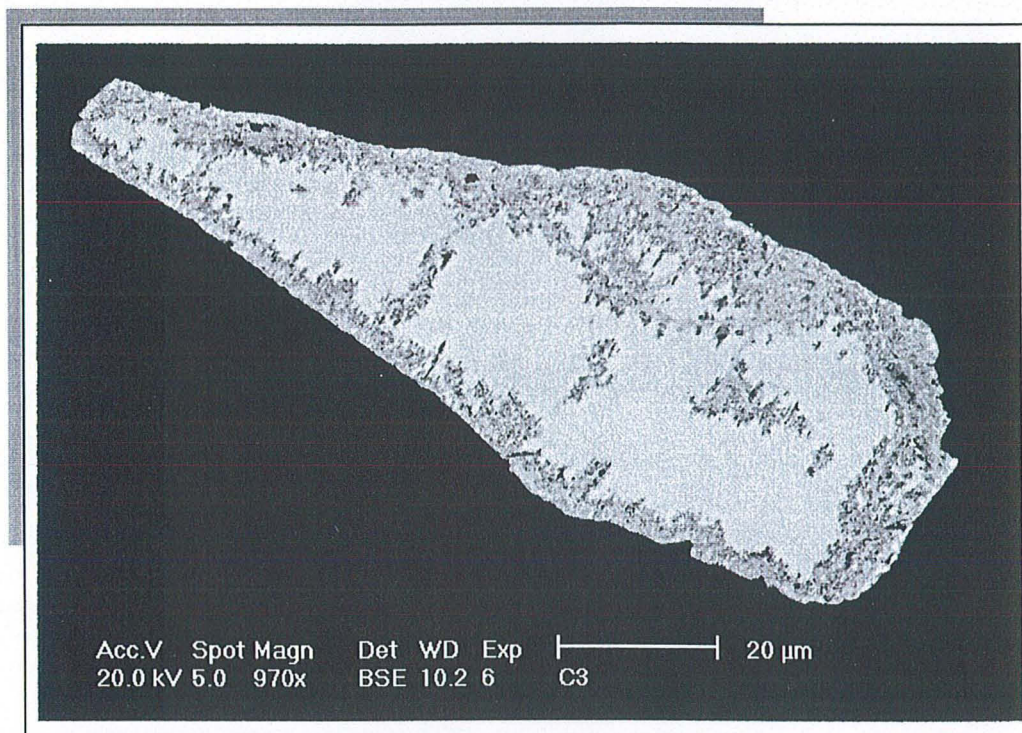


Figure 65 : Ilménite extraite de la roche calcaire observée au MEB en mode rétrodiffusé.

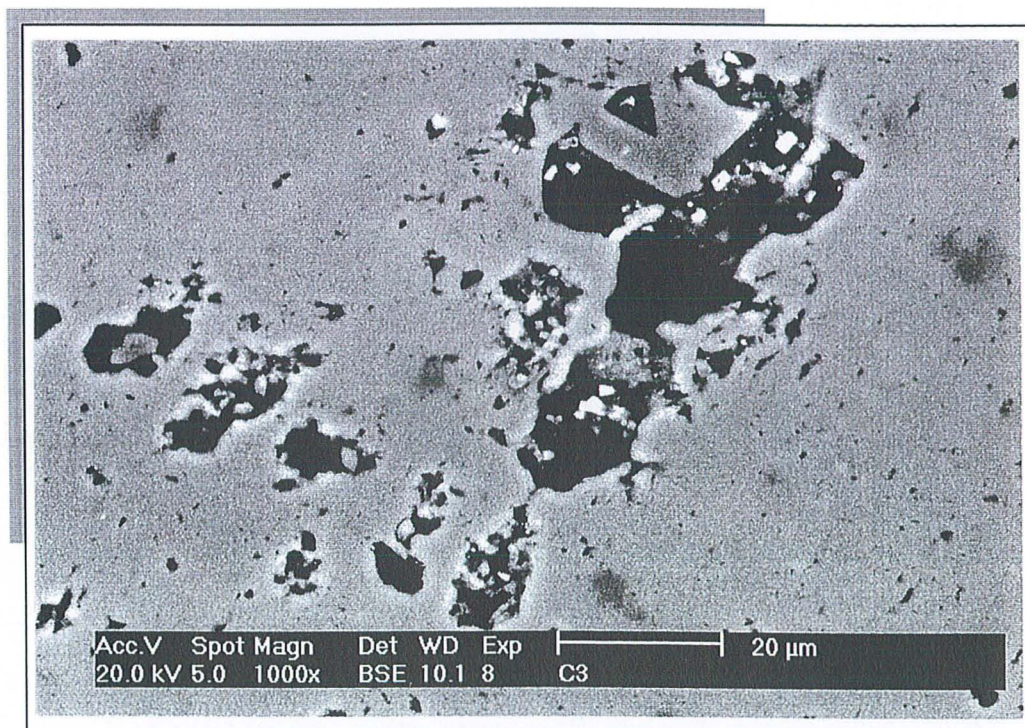


Figure 66 : Apatites (minéraux très brillants) entourées d'argiles (Si, Al, Fe, K) dans un ciment calcaire observées au MEB en mode rétrodiffusé.

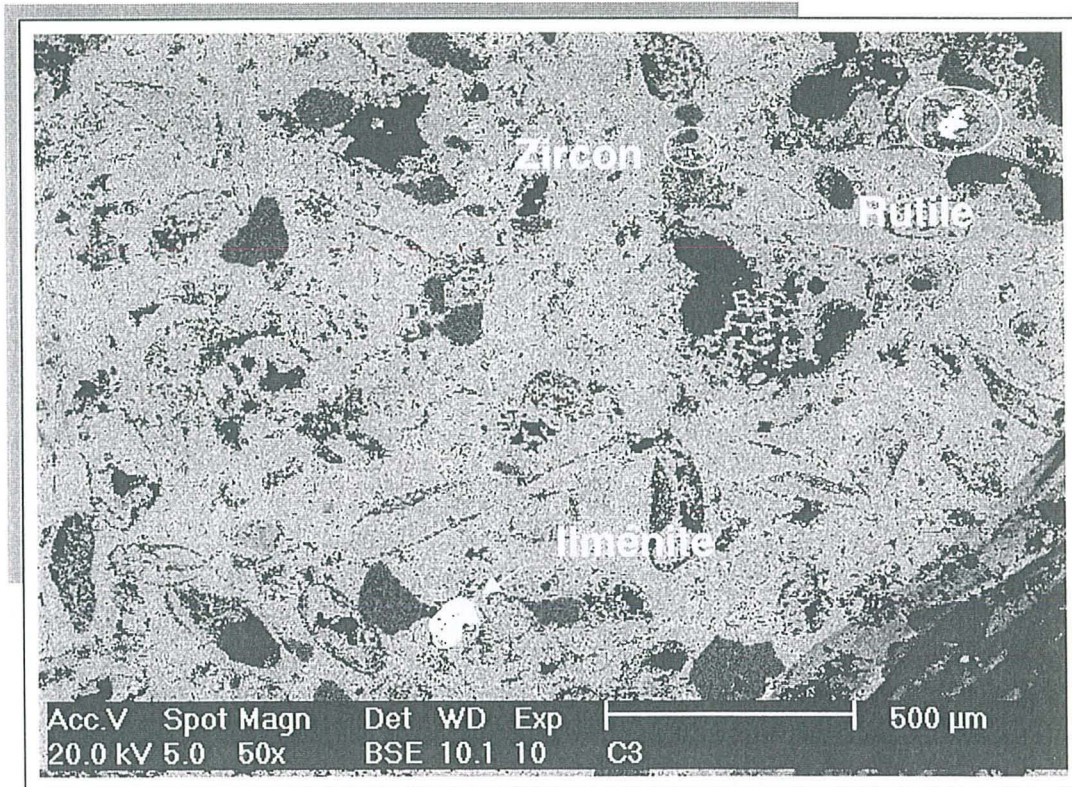


Figure 67 : Zircons et rutiles extraits de calcaire observés au MEB en mode rétrodiffusé et donnant des traces de fission regroupées en étoile.

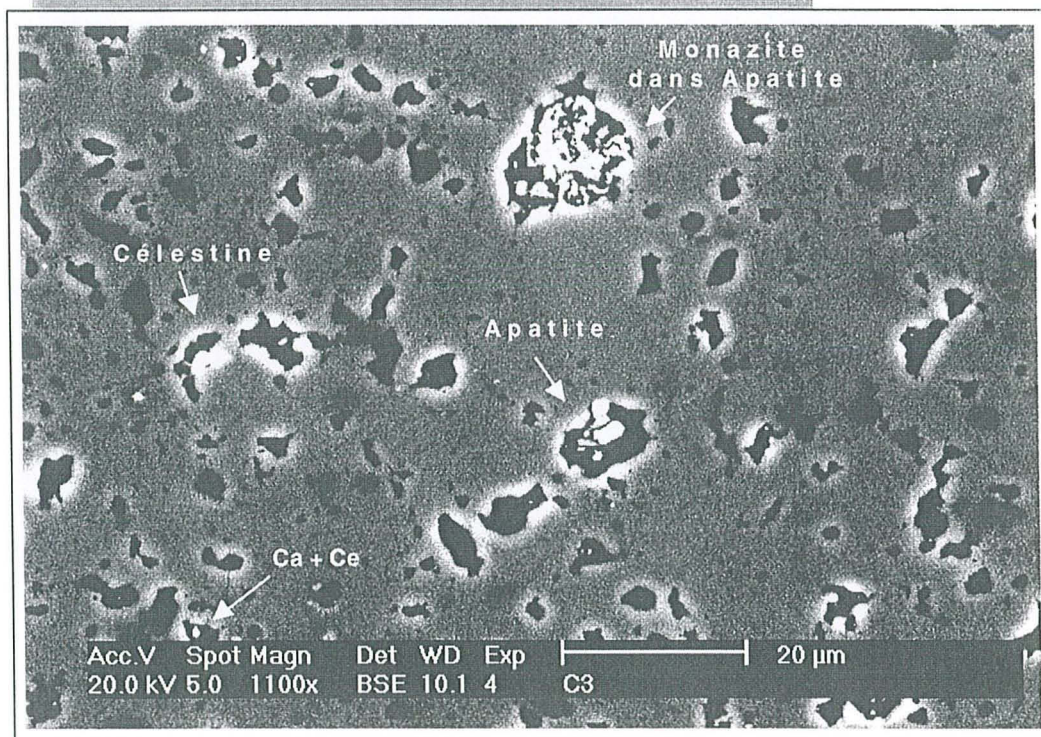


Figure 68 : Minéraux accessoires, observés au MEB en mode rétrodiffusé, extraits des calcaires donnant des traces de fission en forme d'oursin.

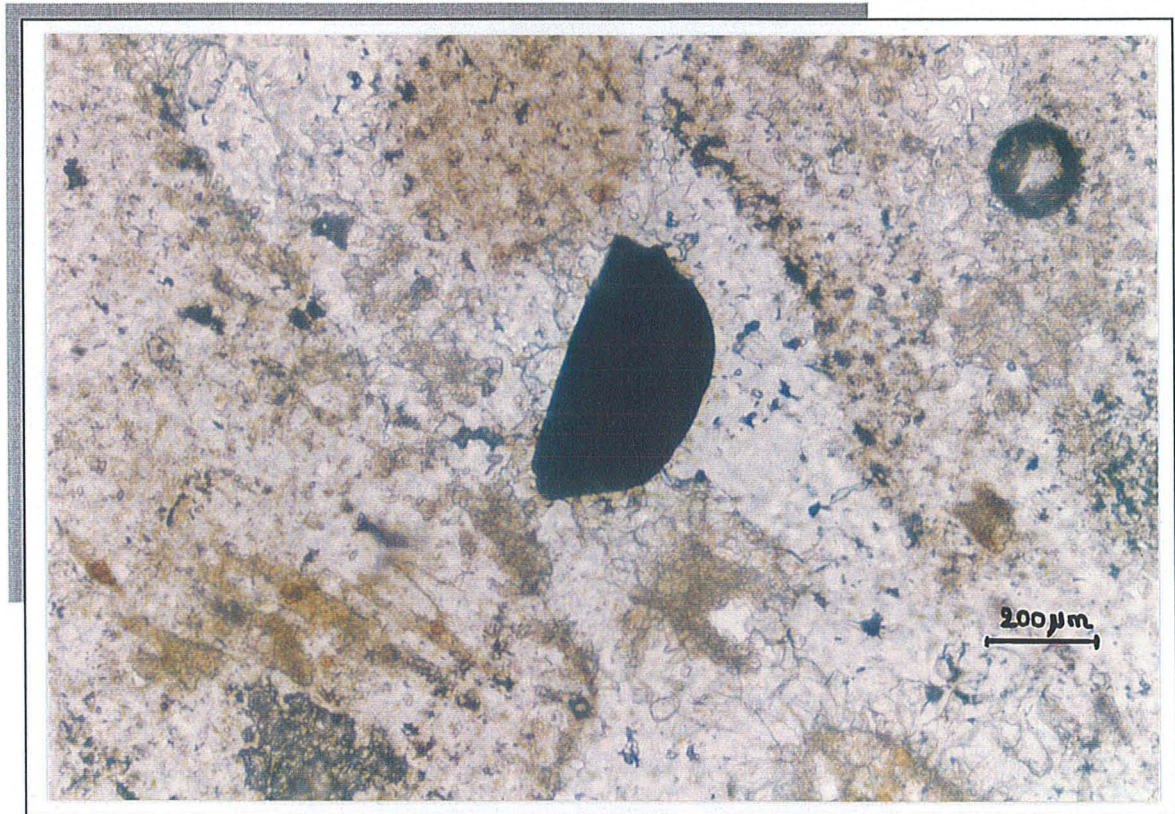


Figure 69 : Ilménite altérée extraite d'un calcaire observée en lumière naturelle transmise.

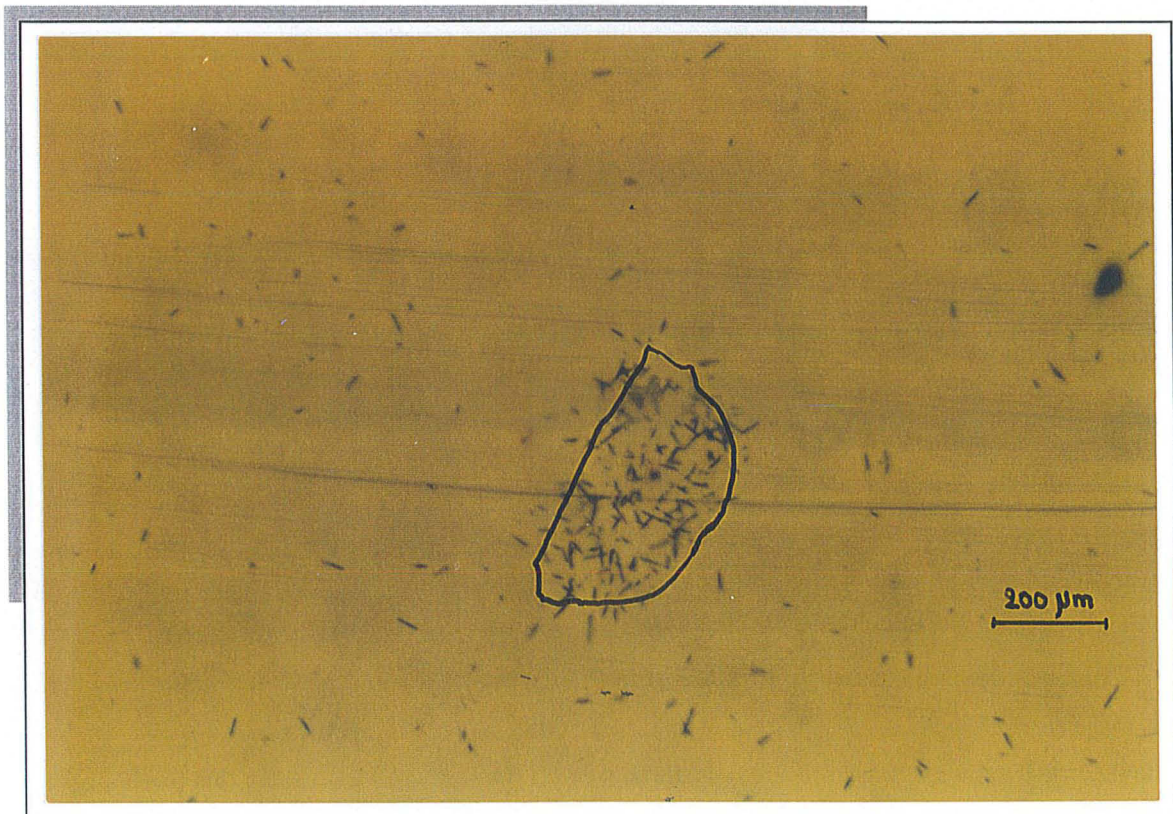


Figure 70 : Traces de fission correspondant à l'ilménite représentée ci-dessus.

XVII.4. L'URANIUM DANS LES ARGILITES

Les films kapton contiennent des traces

- très peu denses (équivalentes à ≈ 3 ppm) réparties de façon homogène sur l'ensemble du détecteur. Ces marques forment une sorte de bruit de fond (Figure 73), qui est vraisemblablement causé par de l'uranium situé aux joints de grain de la roche. Comme, dans de tels matériaux, les grains sont extrêmement fins ($< 50 \mu\text{m}$), ils sont très nombreux (Figure 72) et représentent une surface spécifique aux joints de grains plus importante.
- regroupées en forme d'étoile (Figure 71).

Aucune forme caractéristique n'a pu être identifiée parmi ces traces de fission. Et, comme la structure des argiles est très fine, les marques de type « oursins » n'ont pu être identifiées avec les microphases minérales. Toutefois, la composition chimique des argilites (Annexe I) signale des teneurs non négligeables en Zr et Hf, supérieures à 160 ppm et 4.55 ppm respectivement, traduisant la présence de petits zircons. Cette hypothèse est confortée par des analyses minéralogiques aux rayons X (Annexe III). Or, les zircons sont des émetteurs de traces de fission dans les calcaires et dans les grès. Il est alors envisageable de supposer qu'ils aient un comportement similaire dans une matrice argileuse.

Un raisonnement identique peut être effectué pour le rutile et le quartz, phases incluses dans les argilites (Annexe I) et émettrices de traces de fission dans les grès et les calcaires.

Des octaèdres de pyrite (FeS_2) en amas framboïdal sont très fréquemment rencontrés dans cette matrice argileuse (Figure 74). Ils pourraient également contribuer au bruit de fond s'ils ont adsorbé de l'uranium à leur surface. Cette supposition n'a pu être vérifiée. Des analyses au MET (microscope électronique à balayage) permettraient de valider ou de réfuter cette hypothèse car cet appareil possède une résolution spatiale de l'ordre du nanomètre qui permet d'accéder à une structure aussi fine que celle des argiles.

XVII.5. CONCLUSION

Les différentes phases engendrant des traces de fission sont résumées dans le tableau ci-dessous (Tableau 32). Il en ressort que l'uranium est souvent associé à des composés phosphatés et des oxydes de fer, titane ou zirconium, qui peuvent contenir des terres rares légères. Zielinski (1978) a remarqué les mêmes phases dans des roches magmatiques.

L'étude des traces de fission montre que l'uranium est localisé :

- au niveau des joints de grains. En surface, l'uranium est en milieu oxydant, mais en milieu plus confiné, il précipite et on le retrouve sous sa forme oxydée (UO_2) d'où l'observation d'auréoles brunâtres à la périphérie des minéraux.
- dans des minéraux en adsorption sur leur surface et en phases accessoires en inclusion dans ces minéraux ;
- disséminé sur l'ensemble de la roche dans le cas de structure à grains très fins (roche argileuse).

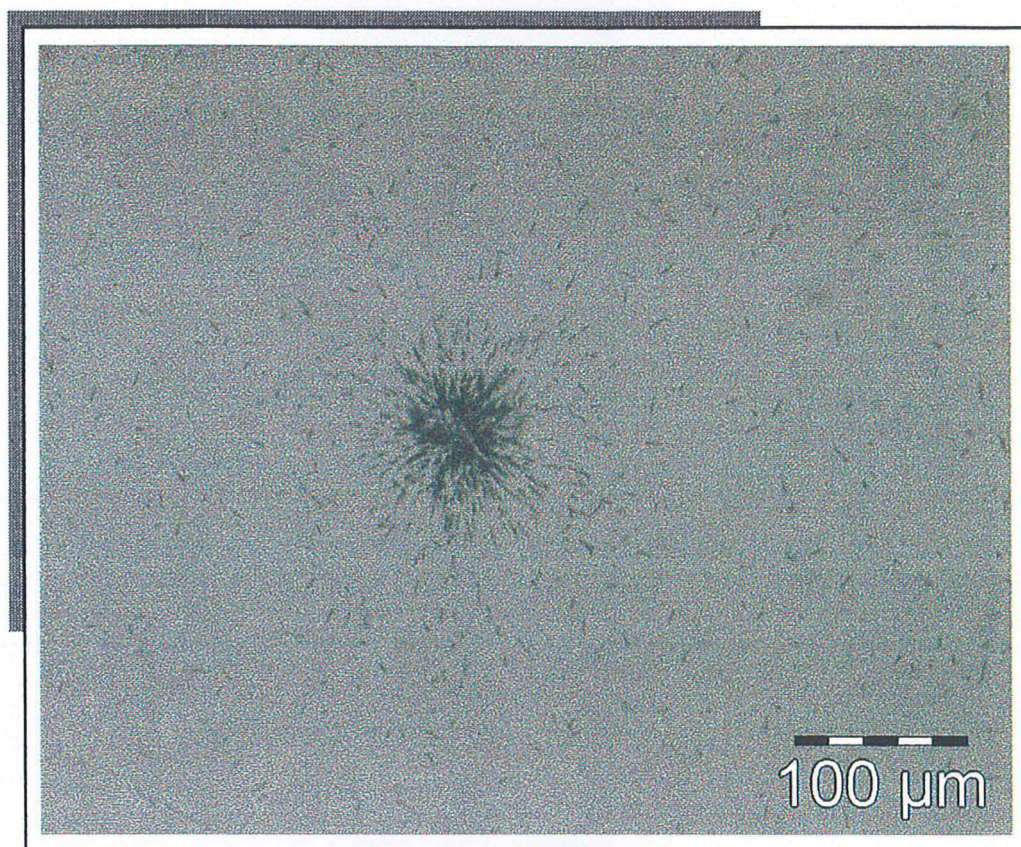


Figure 71 : Traces de fission dans les argilites du Callovo-Oxfordien : bruit de fond et oursins. Du fait du manque de repères minéralogiques, les traces ci-dessus ne correspondent pas exactement à l'image 72.

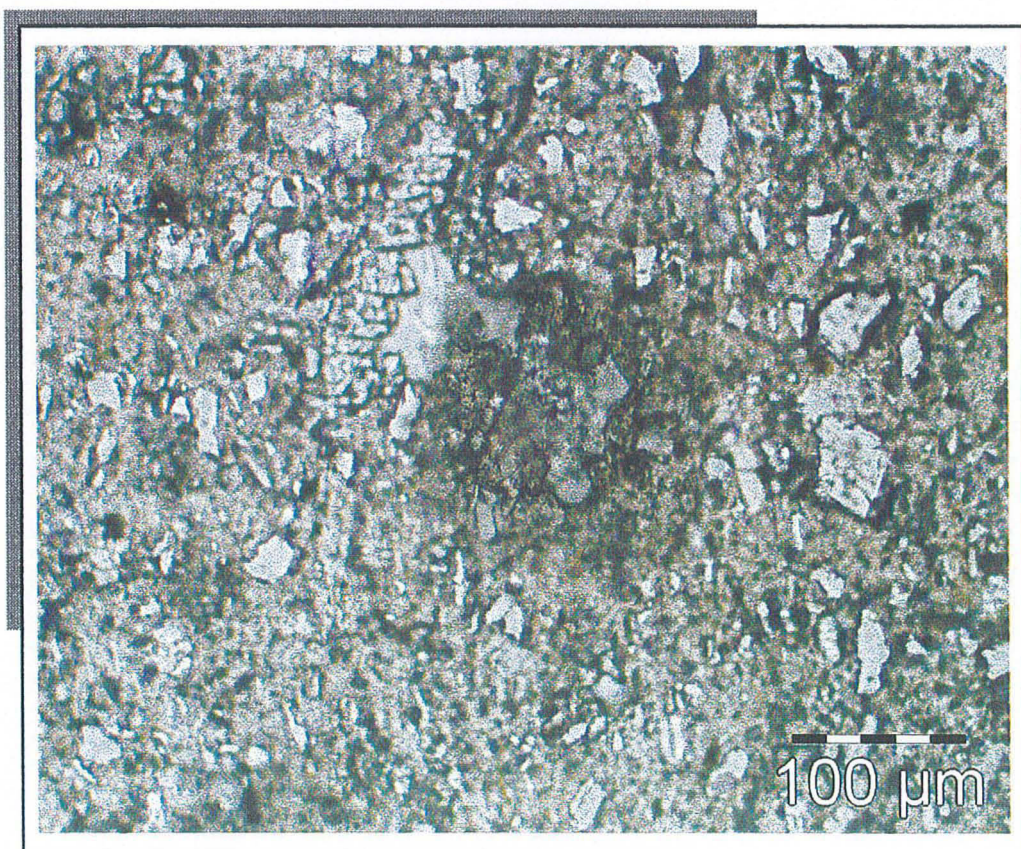


Figure 72 : Détail de la structure très fine des argilites du Callovo-Oxfordien observée en lumière naturelle transmise.

Figure 73 : Argilites du Callovo-Oxfordien observées en mode secondaire. Amas d'octaèdres de pyrite enchevêtrés dans une pellicule d'argile.

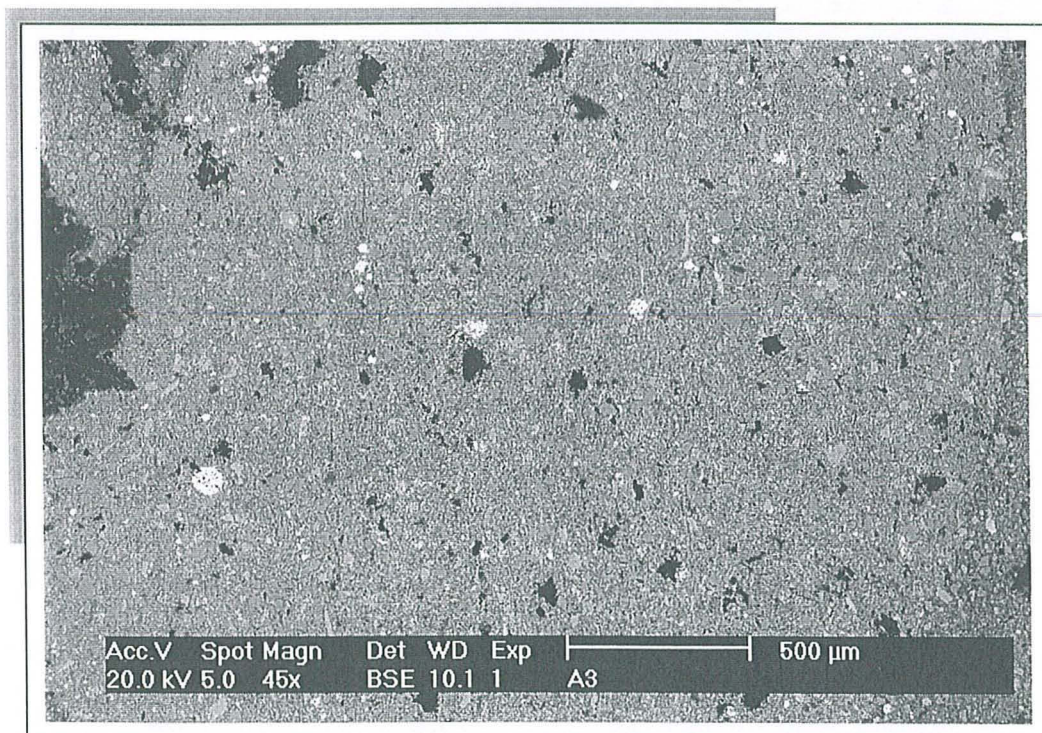


Figure 74 : Vue d'ensemble d'une section polie d'argilite du Callovo-Oxfordien observée au MEB en mode rétrodiffusé : les taches blanches représentent des amas de pyrite.

| PHASES | Formules | CALCAIRE | GRES | ARGILITE |
|--------------------------|---|----------|------|----------|
| Calcite (+ terres rares) | CaCO ₃ (Ce, La) | + | | |
| Apatite | CaPO ₄ | + | | |
| Monazite | CePO ₄ (La) | + | + | |
| Ilménite | FeTiO ₃ | + | | |
| Rutile | TiO ₂ | + | + | + |
| Célestine | SrSO ₄ | + | | |
| Zircon | ZrSiO ₄ (Hf) | + | + | + |
| Magnétite | Fe ²⁺ (Fe ³⁺) ₂ O ₄ (Ti) | | + | |
| Silicate d'uranium | SiO ₄ + U | | + | |
| Quartz | SiO ₂ | | + | + |
| Pyrite | FeS ₂ | | | (?) |

Tableau 32 : Récapitulatif des différentes phases produisant des traces de fission en fonction de la matrice.

L'uranium étant l'élément parent de l'hélium, les sites associés à l'uranium sont, par analogie, des sites liés à l'hélium. Ainsi, les différents profils de diffusion mis en évidence lors des expériences de chauffage par palier peuvent effectivement s'expliquer par cette différence de localisation, comme nous l'avions supposé.

Précisons enfin, qu'à notre connaissance, c'est la première fois qu'une étude de traces de fission est réalisée sur des roches sédimentaires pour déterminer les minéraux contenant de l'uranium.

Chapitre VII : Conclusions sur les capacités de migration des radionucléides dans les unités géologiques de l'Est du Bassin Parisien

L'étude géochimique de gaz rares dans les séries sédimentaires du Bassin Parisien a confirmé une origine principalement radiogénique pour ^3He et ^{40}Ar .

La comparaison des concentrations en isotopes radiogéniques produits par la roche et celles réellement mesurées témoigne :

- d'un comportement conservatif pour l'argon. Par rapport aux quantités produites depuis l'âge de sédimentation de la roche, aucune perte n'a pu être détectée. A l'inverse, un léger enrichissement, du fait de l'incorporation d'argon produit antérieurement à la roche dans les minéraux détritiques, est mis en évidence.
- d'un comportement extrêmement mobile pour l'hélium. Plus de 90% de l'hélium produit dans les formations sédimentaires depuis leur âge de sédimentation est perdu.

Ces pertes en hélium ont été caractérisées du point de vue cinétique. La roche libère près de 50% de sa teneur en hélium à température ambiante. L'autre moitié est nettement moins mobile, car il a fallu chauffer l'échantillon (100 – 1 000°C) pour accélérer les cinétiques d'extraction. D'autre part, en faisant l'hypothèse d'un milieu homogène, des temps de diffusion de l'ordre du million d'années, pour une température de 300 °C et une distance à parcourir de 10 mètres, ont été estimés à partir des expériences de chauffage par palier.

Dans un diagramme d'Arrhénius, les coefficients de mobilité dérivés de ces expériences de chauffage séquentiel définissent plusieurs segments de droite caractéristiques d'un comportement diffusif en milieu hétérogène. En fonction du type de diffusion (en surface, le long des grains ou encore volumique), les sites de la roche concernés sont différents, ce qui explique les variations observées avec la température dans les rapports isotopiques $^3\text{He}/^4\text{He}$. Lors des premiers paliers de température, la diffusion de surface et le long des grains prévaut et les rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ trahissent un mélange binaire entre l'atmosphère et la composante radiogénique. A haute température, la diffusion solide prend l'avantage, et les rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ sont typiquement radiogéniques. La baisse générale des énergies d'activation à très haute température traduit un épuisement des sites de diffusion volumique.

Afin de documenter les sites préférentiels de He sous forme dissoute et sous forme solide dans les roches, nous avons cherché

- i) à caractériser l'eau extraite en fonction de la température par l'intermédiaire de sa composition isotopique en hydrogène
- ii) où était localisé l'uranium, élément parent de He, par l'intermédiaire de l'étude des traces de fission.

√ L'étude de l'hydrogène, comme analogue d'un autre élément léger, He, permet de définir à quelle température sont extraits les différents types d'eau constitutives de la roche. Il en ressort que l'hydrogène libéré pour une température inférieure à 200°C est typique des eaux de porosité et adsorbées ($\delta D = -44.4\%$). Ensuite, les valeurs se différencient en fonction de la nature de la roche : pour les argiles à partir de 250°C, l'eau structurale est extraite ($\delta D = -59.1 / -54.4\%$). Vers 400°C, les calcaires libèrent de l'eau caractéristique de la matière organique ($\delta D = -90.3\%$) et les grès des groupements hydroxyles ($\delta D = -55.6 / -54.8\%$) dérivés de minéraux accessoires comme la goéthite.

√ Les impacts laissés par les réactions nucléaires :

- se situent au niveau des joints de grains. En surface, l'uranium est en milieu oxydant, mais en milieu plus confiné, il précipite et on le retrouve sous sa forme oxydée (UO_2) d'où l'observation d'auréoles brunâtres à la périphérie des minéraux.
- correspondent à des minéraux. L'uranium est soit en adsorption (magnétite, calcite, quartz, ilménite) soit en phases accessoires en inclusion dans ces minéraux (apatite, monazite, zircon, rutile) ;
- sont disséminés sur l'ensemble de la roche dans le cas de structure à grains très fins (roche argileuse).

TROISIEME PARTIE :

LES EAUX SOUTERRAINES

DANS L'EST DU BASSIN PARISIEN

Cette troisième partie développe l'hydrodynamique des aquifères du Bassin Parisien.

Le chapitre VIII rassemble les caractéristiques géochimiques (isotopes stables de l'oxygène et de l'hydrogène, carbone-14 et gaz rares) des principaux aquifères.

L'ensemble de ces résultats est discuté ensuite (Ch IX) en termes d'origine des fluides, de flux crustaux entrant dans les aquifères et de temps de résidence des eaux souterraines.

Le chapitre X récapitule les conclusions importantes mises en évidence au cours de cette étude sur les eaux.

Chapitre VIII : Résultats Géochimiques

XVIII. LES ISOTOPES STABLES DE L'OXYGENE ET DE L'HYDROGENE

Les isotopes stables sont de bons traceurs de l'origine des fluides et permettent également de discuter des interactions eau-roche. Ils sont utilisés sous forme de rapports isotopiques, D/H et $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$, et sont exprimés en unité δ par rapport au standard SMOW (Standard Mean Ocean Water) qui correspond à l'eau océanique moyenne tel que :

$$\delta\text{D} = \left\{ \left[\frac{(\text{D}/\text{H})_{\text{ech}}}{(\text{D}/\text{H})_{\text{smow}}} - 1 \right] \right\} * 1000$$

$$\delta^{18}\text{O} = \left\{ \left[\frac{(^{18}\text{O}/^{16}\text{O})_{\text{ech}}}{(^{18}\text{O}/^{16}\text{O})_{\text{smow}}} - 1 \right] \right\} * 1000$$

Les différentes sources de fluides qui peuvent être à l'origine des eaux rencontrées dans un bassin sédimentaire sont représentées dans un diagramme $\delta^{18}\text{O}$ et δD (Figure 75) .

- Par définition, les eaux océaniques sont caractérisées par un $\delta\text{D} = 0\text{‰}$ et un $\delta^{18}\text{O} = 0\text{‰}$
- Les eaux météoriques sont reconnaissables au fait qu'elles s'alignent selon une droite d'équation $\delta\text{D} = 8 \delta^{18}\text{O} + 10$ (Craig, 1961). La température, donc l'altitude (Payne and Yurtsever, 1974) et la latitude sont les facteurs contrôlant le fractionnement isotopique (Friedman et al., 1964). Ils vont faire évoluer ces eaux vers des δD plus ou moins négatifs.
- Les eaux profondes, c'est-à-dire métamorphiques ou magmatiques, ayant pu échanger de l'eau avec des roches à haute température sont caractérisées par un enrichissement en isotope lourd ^{18}O .
- L'eau dérivée de la matière organique en décomposition a une composition fortement négative en δD .

Les différents processus d'interaction eau-roche sont également décrits Figure 75. Le mécanisme le plus classique et le plus souvent rencontré dans les bassins sédimentaires est dû à un échange avec les carbonates (Clayton et al., 1966 ; Hitchon and Friedman, 1969 ; Kharaka and Carothers, 1986), qui provoque un enrichissement en ^{18}O . Ce phénomène prend vraiment de l'importance s'il se produit dans un environnement de hautes températures. Une autre cause importante de fractionnement est l'effet de membrane ou d'ultrafiltration, qui intervient essentiellement dans des milieux de très faible porosité, comme celui des argiles, en produisant des compositions plus négatives (Graf et al., 1965 ; Yeh, 1980).

Plus rarement, des cas de fractionnement isotopique ont été expliqués par la néoformation de silicates (hydratation) ou par leur altération (déshydratation). Des interactions avec la matière organique, avec H_2S (Blaga, 1968) ou encore avec les hydrocarbures (Friedman and O'Neil, 1977) peuvent aussi causer un enrichissement en deutérium. Un dernier mécanisme peut être évoqué : celui de la décomposition de calcaires à haute température, qui entraîne une production de CO_2 enrichi en ^{18}O (Shieh and Taylor, 1969 ; Valley, 1986). Toutefois, ces mécanismes restent exceptionnels dans un bassin sédimentaire et supposent des températures supérieures à $100^\circ C$.

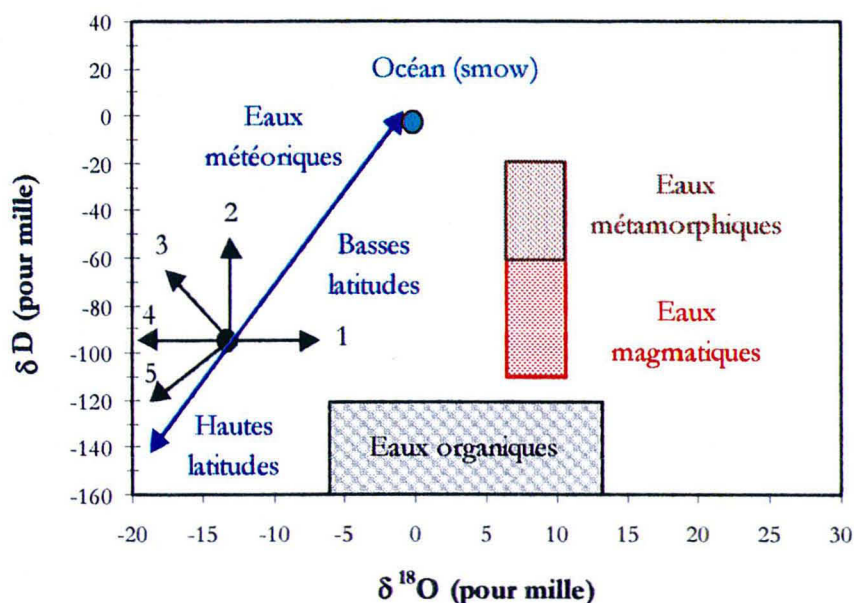


Figure 75 : Caractérisation par les isotopes stables des différentes sources de fluides pouvant circuler dans un bassin sédimentaire (D'après France-Lanord, 1999) et des différents processus susceptibles de modifier la composition isotopique des eaux : 1) Echange avec la matrice rocheuse à haute température ; 2) Echange avec H_2S ; 3) Hydratation des silicates ; 4) Echange avec le CO_2 ; 5) Ultrafiltration.

XVIII.1. TITHONIEN

Les rapports isotopiques de l'hydrogène dans l'aquifère du Tithonien sont comparables à ceux d'une eau de surface actuelle (Figure 76). Ce sont donc des eaux très jeunes, issues de la recharge qui n'ont pas encore évolué sous l'effet de mélange ou d'interaction eau-roche. Ces résultats sont en accord avec la géochimie des gaz rares (cf. XX). Un forage, celui d'Auzécourt, se démarque par des valeurs plus négatives. Il doit contenir des eaux rechargées plus précocement que les précédentes, ce qui est en accord avec les valeurs isotopiques de l'hélium (cf. XX).

| Forage | δD (‰ vs SMOW) | $\delta^{18}O$ (‰ vs SMOW) | Forage | δD (‰ vs SMOW) | $\delta^{18}O$ (‰ vs SMOW) |
|------------------|---------------------------|-------------------------------|-----------------|---------------------------|-------------------------------|
| TRIAS | | | | | |
| Agincourt | -68.60 | -9.45 | Hériménil | -72.00 | -9.62 |
| Baudricourt | -67.36 | -9.87 | La Neuveville | -66.32 | -9.73 |
| Bénamont | -65.97 | -9.25 | Lunéville | -69.81 | -9.62 |
| Chenevières | -70.45 | -9.75 | Manonviller | -71.15 | -10.03 |
| Contrexéville* | -56.87 | -8.26 | Nancy | -67.09 | -9.33 |
| Courbessaux** | -50.11 | -7.00 | Rozelieures | -64.07 | -9.58 |
| Escles | -58.00 | -8.50 | St Clément | -67.95 | -9.51 |
| Essey | -71.21 | -9.56 | Tomblaine | -69.01 | -9.45 |
| Florémont | -65.60 | -9.42 | Valfroicourt | -59.21 | -8.59 |
| Gélacourt | -71.38 | -9.99 | Varangéville | -69.05 | -9.46 |
| DOGGER | | | | | |
| Etain | -58.29 | -8.47 | Rouvres-en-W. | -59.57 | -8.75 |
| MSE 101 | -46.6 | -6.93 | Valleroy | -51.16 | -7.70 |
| Piennes | -56.68 | -8.19 | | | |
| TITHONIEN | | | | | |
| Auzécourt | -57.08 | -8.86 | Laimont | -49.45 | -7.50 |
| Bonnet | -59.48 | - | Neuville droite | -49.15 | -7.36 |
| Gondrecourt | -50.57 | -8.01 | Neuville gauche | -50.07 | -7.06 |
| Laheycourt | -48.31 | -7.51 | Ribeaucourt | -50.44 | -7.62 |

Tableau 33 : Les isotopes stables de l'hydrogène et de l'oxygène des eaux souterraines de l'Est du Bassin Parisien. L'erreur est de $\pm 2\text{‰}$ sur les δD et $\pm 0.2\text{‰}$ sur les $\delta^{18}O$. (*) : Buntsandstein ; (**) : Rhétien

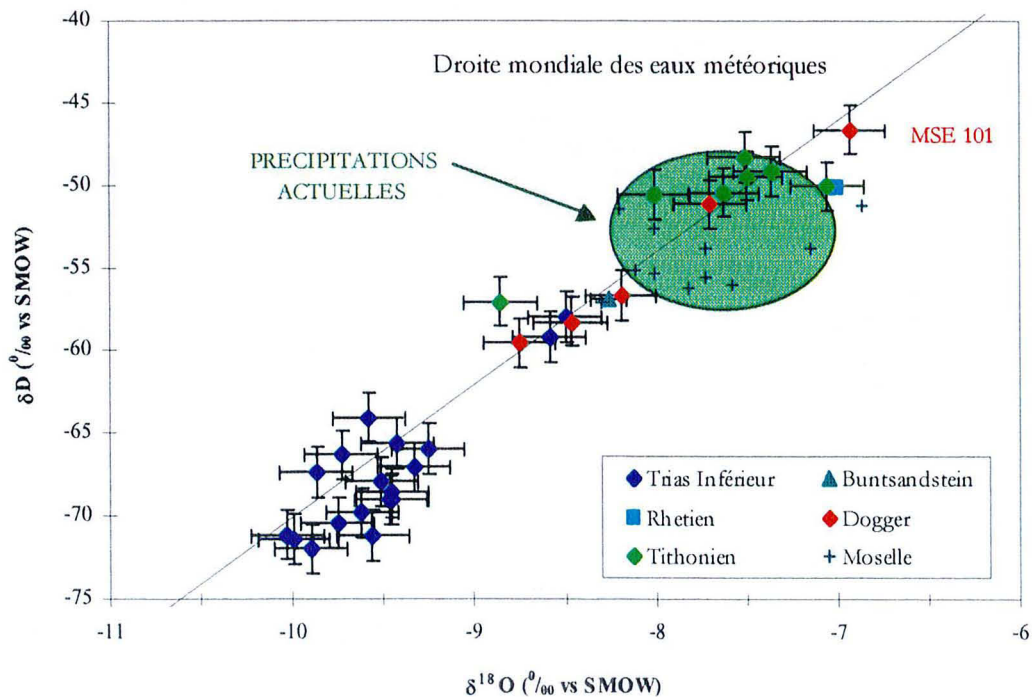


Figure 76 : Relation entre les isotopes stables de l'oxygène et de l'hydrogène dans le Tithonien, le Dogger et le Trias.

XVIII.2. DOGGER

Les eaux échantillonnées dans le Dogger de l'Est du bassin s'alignent selon la droite mondiale des eaux météoriques et traduisent ainsi une origine principalement météorique. Sachant que ces eaux ont des rapports isotopiques qui se répartissent de part et d'autre de la zone assimilée aux précipitations actuelles, et que les eaux du Dogger du centre du bassin sont beaucoup plus enrichies en isotopes lourds (D et ^{18}O), les eaux de l'Est peuvent être séparées en 2 groupes (Figure 76) :

- le premier correspond à des eaux récentes, dont la composition isotopique est proche de celles de la recharge actuelle. Graduellement, les valeurs deviennent plus négatives et se rapprochent des eaux infiltrées lors d'une période plus froide (Figure 77 : tracé n°1). Cette hypothèse est confortée par les rapports isotopiques de He, qui évoluent de la valeur atmosphérique de la recharge vers une contribution radiogénique (cf. XX). Les eaux de ce groupe semblent moins âgées que celles du Trias, dont les compositions isotopiques sont plus négatives

- le second groupe, situé dans une gamme de valeurs moins négatives (Figure 77 : tracé n°2), correspond à des eaux plus anciennes que le premier groupe, et surtout plus anciennes que les dernières glaciations. Si l'on suit l'évolution de cet ensemble, on obtient les eaux du centre du bassin, qui ont la particularité de s'éloigner de la droite des eaux météoriques et de s'enrichir préférentiellement en $\delta^{18}\text{O}$. Cet enrichissement pourrait résulter d'un échange avec les roches carbonatées, réservoir important d'atomes d'oxygène facilement échangeables (Figure 77 tracé n° 3). Cependant, Matray et al. (1994) écartent cette hypothèse et proposent que cet enrichissement est le résultat d'un mélange entre des eaux météoriques et des eaux salées (saumures triasiques) car la composition isotopique en hydrogène varie également et qu'il est difficile de concevoir un mécanisme qui fasse évoluer $\delta^{18}\text{O}$ et δD en même temps. De plus, les isotopes stables ne varient pas avec la température mais avec la concentration en chlorures.

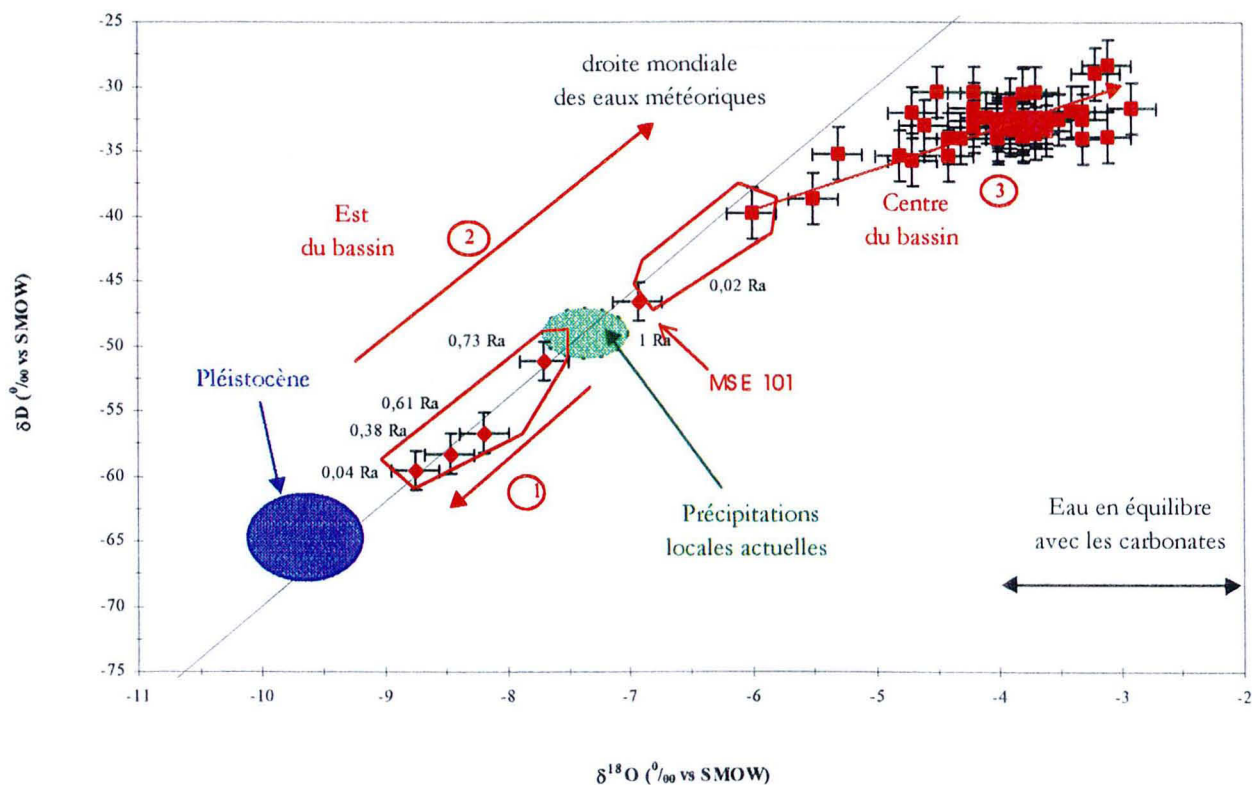


Figure 77 : Evolution comparée des isotopes de l'hélium et des isotopes stables de l'oxygène et de l'hydrogène dans le Dogger de la recharge au centre du bassin. Données « Pléistocène » compilées par Rozanski (1985) ; « Précipitations locales » par Dever et al. (1990) et « centre du Bassin » par Matray et al. (1994).

XVIII.3. TRIAS

Les eaux triasiques lorraines s'alignent selon la droite d'évolution des eaux météoriques (Tableau 33). L'appauvrissement en isotopes ^{18}O et D par rapport aux eaux actuelles est compatible avec une recharge de la nappe durant une période plus froide (Figure 78). Escles et Valfroicourt font exception par leur δD et leur $\delta^{18}\text{O}$ proches de ceux des eaux de surface actuelles. Ces valeurs suggèrent une recharge plus récente en accord avec les données gaz rares (cf. XX : faible concentration élémentaire en He, rapport isotopique de He proche de celui de l'air et paléotempérature de recharge moins froide).

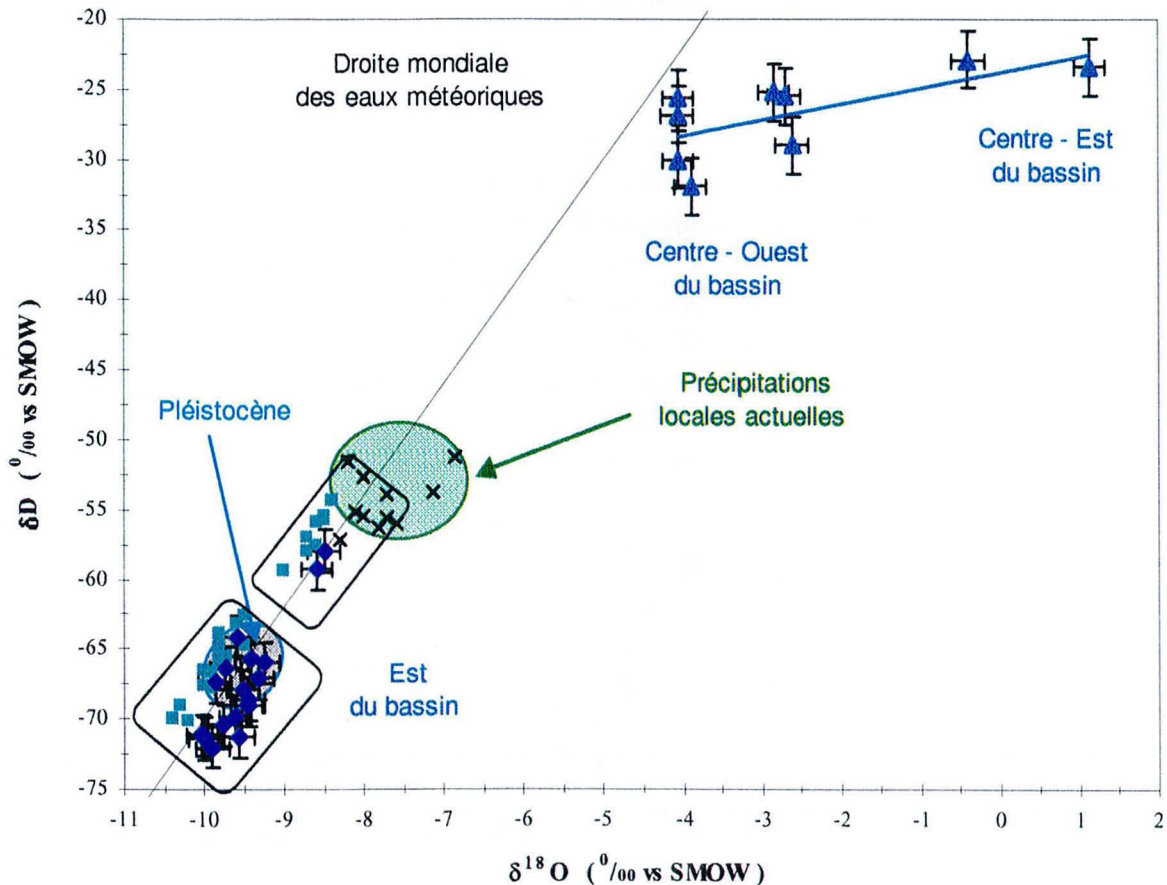


Figure 78 : Répartition des isotopes stables de l'oxygène et de l'hydrogène dans le Trias de la recharge au centre du bassin. Les carrés turquoise correspondent à l'étude de Blavoux et Olive (1981) et les triangles bleus à celle de (Pinti et al., 1995a).

Les données isotopiques de l'hydrogène et de l'oxygène obtenues durant cette étude sont similaires à celles reportées par Blavoux et Olive (1981) pour des forages au Trias lorrain. Les auteurs distinguent également 2 groupes, qu'ils interprètent de la façon suivante : Le premier, dont les $\delta^{18}\text{O}$ sont inférieurs à -9.5‰ , correspond à des eaux confinées dans le Trias Inférieur et rechargées durant une période plus froide que l'actuelle. Le second, dont les $\delta^{18}\text{O}$ sont supérieurs à -8.7‰ , concorde avec des eaux pas tout à fait captives ou échantillonnées dans des aquifères supérieurs à celui des Grès du Trias Inférieur.

Les eaux triasiques du centre du bassin (Figure 78 : triangles), qui résulteraient d'un mélange entre des eaux météoriques et des eaux paléo-météoriques ayant dissous de la halite (Matray et al., sous presse ; Worden and Matray, 1995), affichent une composition isotopique bien distincte de celles de l'Est. Cette différence conforte l'idée que la source de salinité remarquée dans les eaux du centre Est du bassin se situe bien entre Nancy et Châlons-sur-Marne.

XIX. AGES ^{14}C

Les analyses ont été effectuées à l'Université de Tucson (Arizona) par l'intermédiaire du Scottish Universities Research And Reactor Centre. La méthode utilisée est celle de la spectrométrie de masse par accélérateur, AMS, (Bard, 1987 ; Arnold et al., 1987), qui consiste à compter directement les ions après les avoir accélérés avec des énergies de l'ordre du MeV. Cette technique créée en 1979 requiert seulement 5 mg de carbone inorganique dissous (CID) contre 2 à 3 g pour le comptage de la radioactivité β . Ainsi, un volume d'eau de 0.5 l suffit pour une telle analyse alors qu'il en fallait environ 250 l avec la méthode traditionnelle. De plus, les limites de datation sont repoussées de 30 000 à 50 000 ans.

XIX.1. ACTIVITE EN ^{14}C

Dans le Trias, la plupart des activités mesurées sont de quelques pour-cents et les $\delta^{13}\text{C}$ de l'ordre de -10 ‰ (Figure 79). Ces caractéristiques laissent supposer des temps de résidence élevés et des eaux ayant peu échangé avec les carbonates. D'après la relation obtenue : $A^{14}\text{C} = -7.13 \delta^{13}\text{C} - 67.99$, à une activité initiale en ^{14}C de 100% est associée une valeur $\delta^{13}\text{C}$ de -23.6‰, qui s'intègre parfaitement dans la gamme de CO_2 généré biologiquement (-21‰ à -35‰ : Troughton, 1972). Ainsi, l'hypothèse d'une concentration initiale en ^{14}C de 100% est justifiée. D'autre part, les valeurs basses en $\delta^{13}\text{C}$ pourraient être liées à la réduction des sulfates en présence de matière organique ($\text{SO}_4 + \text{CH}_3\text{CO}_2 \rightarrow 2\text{HCO}_3 + \text{HS}$). Ce processus est connu pour générer des carbonates allégés en ^{13}C rencontrés dans les bassins sédimentaires.

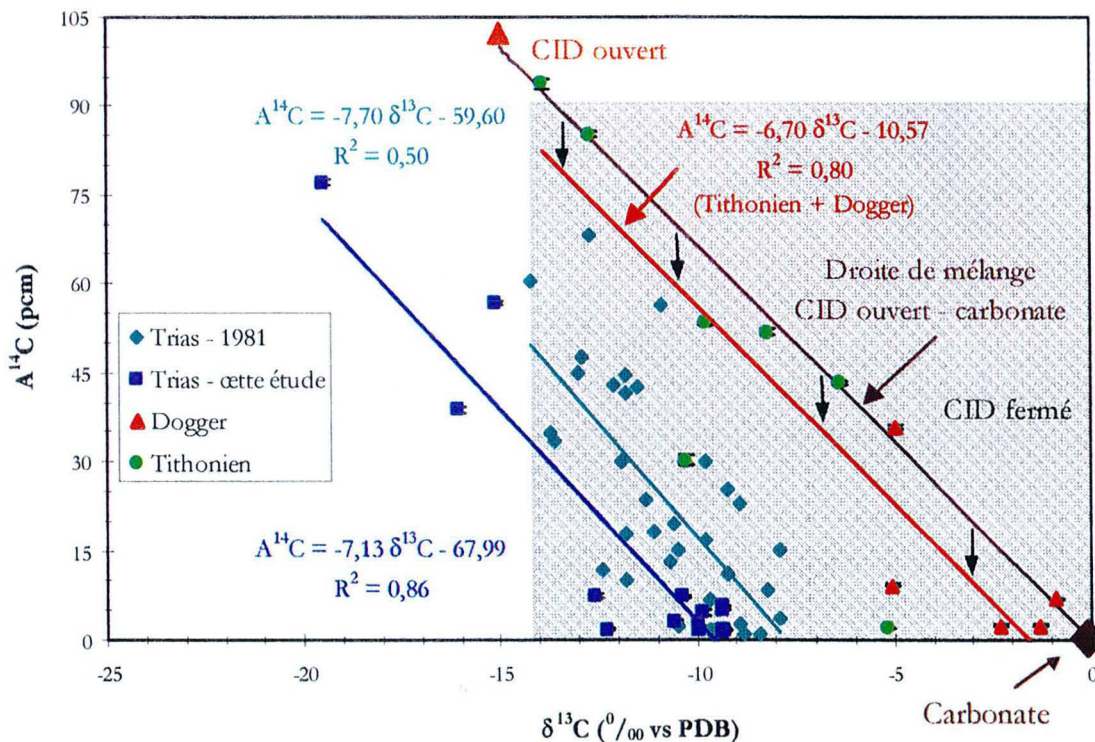


Figure 79 : Activité en ^{14}C en fonction du rapport $\delta^{13}\text{C}$ pour les 3 aquifères étudiés (Trias, Dogger, Tithonien). Les données du Trias sont comparées à celles résultant d'une étude de Blavoux et Olive (1981) et les données des aquifères carbonatés sont comparées à une évolution entre un pôle carbone inorganique dissous (CID) en système ouvert et un pôle carbonate solide.

| Forage | $\delta^{13}\text{C}$ (‰ vs PDB) | Activité ^{14}C (%) | Forage | $\delta^{13}\text{C}$ (‰ vs PDB) | Activité ^{14}C (%) |
|------------------|-------------------------------------|---------------------------------|------------------------|-------------------------------------|---------------------------------|
| TRIAS | | | | | |
| Agincourt | -9.3 | 1.7 ± 0.1 | La Neuveville Montfort | -12.3 | 1.8 ± 0.1 |
| Baudricourt | -12.6 | 7.4 ± 0.2 | Lunéville | -10.6 | 3.2 ± 0.2 |
| Bénamont | -10.0 | 2.3 ± 0.2 | Rozelieures | -9.4 | 5.8 ± 0.1 |
| Courbessaux ** | -15.1 | 56.8 ± 0.4 | St Clément | -10.4 | 7.3 ± 0.2 |
| Escles | -19.5 | 77.0 ± 0.5 | Tomblaine | -9.4 | 1.5 ± 0.2 |
| Essey | -10.0 | 1.7 ± 0.2 | Valfroicourt | -16.1 | 38.7 ± 0.4 |
| Florémont | -9.9 | 4.6 ± 0.4 | Varangéville | -9.4 | 1.8 ± 0.1 |
| Hériménil | -9.4 | 5.0 ± 0.1 | | | |
| DOGGER | | | | | |
| Etain | -5.1 | 9.2 ± 0.2 | Rouvres-en-W. | -2.3 | 2.5 ± 0.2 |
| MSE 101 | -1.3 | 2.5 ± 0.1 | Valleroy | -5.0 | 35.7 ± 0.3 |
| Piennes | -0.9 | 7.0 ± 0.2 | | | |
| TITHONIEN | | | | | |
| Auzécourt | -5.2 | 2.0 ± 0.1 | Laheycourt | -10.3 | 30.2 ± 0.7 |
| Bonnet | -8.2 | 51.7 ± 0.5 | Laimont | -9.8 | 53.4 ± 0.4 |
| Gondrecourt | -12.7 | 85.1 ± 0.5 | Ribeaucourt | -13.9 | 93.7 ± 0.8 |
| Guerpont | -6.4 | 43.2 ± 0.4 | | | |

Tableau 34 : Ages conventionnels des eaux souterraines de l'Est du Bassin Parisien calculés à partir de l'activité en ^{14}C .
(**) Aquifère du Rhétien.

La majorité des forages du Dogger présentent des activités similaires à celles du Trias, mais des $\delta^{13}\text{C}$ nettement moins négatifs (Figure 79). Ces résultats traduisent des temps de résidence élevés et/ou un mélange avec du carbone dissous car la droite de mélange théorique entre un pôle CID ouvert et un pôle carbonate solide est parallèle à la droite de régression calculée pour les aquifères carbonatés.

Cas du MSE 101 : La composition isotopique du carbone ($\delta^{13}\text{C} = -1.2$ et -1.4 ‰) mesurée sur un échantillon prélevé à quelques heures d'intervalles du nôtre, par ANTEA-STO (rapport ANDRA D RP 0ANT 98-027/A), est comparable à celle de notre étude ($\delta^{13}\text{C} = -1.3$ ‰). Par contre, les activités ^{14}C reportées par ce groupe sont plus élevées (9.6 ± 2 % sur un échantillon non filtré et 5.9 ± 3.3 % sur un échantillon filtré). Cet écart est trop conséquent pour être le résultat d'une erreur analytique. Comme les fluides échantillonnés contenaient de nombreuses particules en suspension et que la présence de graisses ou d'additifs sur le tubage du forage ne peut être écartée, il est probable que les variations d'activité ^{14}C entre ces études soient dues à des problèmes de contamination.

Quant au Tithonien, il renferme majoritairement des eaux dont l'activité est de plusieurs dizaines de pour-cent malgré un environnement calcaire et des $\delta^{13}\text{C}$ proches de -10 ‰ (Figure 79). Ces caractéristiques, temps de résidence courts et $\delta^{13}\text{C}$ différents de ceux des carbonates, traduisent le régime karstique des écoulements dans ce contexte (Fontes, 1978 ; Alexander and Alexander Jr., 1997). Quelques points, dont le plus représentatif est Auzécourt, ont des caractéristiques plus en adéquation avec un aquifère calcaire classique (cf. Dogger).

XIX.2. DETERMINATION DES AGES RADIOMETRIQUES

La datation radiométrique est basée sur l'incorporation de carbone atmosphérique et de sa décroissance dans les eaux souterraines. En considérant un écoulement souterrain de type piston, l'équation de décroissance radioactive classiquement utilisée pour estimer l'âge des eaux à partir de leur activité en carbone est (âge conventionnel) :

$$t = \frac{1}{\lambda} \cdot \ln \left(\frac{A_0}{A_t} \right)$$

t : âge ^{14}C en années

λ : constante de décroissance radioactive = $1.209 \times 10^{-4} \text{ an}^{-1}$ ($T_{1/2} = 5730 \pm 40$ ans ; Libby, 1946)

A_0 : activité initiale en ^{14}C au moment de la recharge exprimée en pourcentage de carbone moderne (pcm)

A_t : activité restante en ^{14}C à la date t en pcm

Les deux sources principales d'erreurs sont :

- i) les variations du ^{14}C atmosphérique au cours du temps dues aux variations du flux de neutrons secondaires émis par les radiations cosmiques (Bard et al., 1990) ;
- ii) la dissolution du CO_2 de la roche. Les interactions entre l'eau et les carbonates entraînent une diminution de l'activité en ^{14}C par la présence de carbone « mort » (= activité nulle). Dans ce cas, la signature isotopique du carbone apporte des informations sur les différentes sources en cet élément.

De nombreux auteurs (Pearson, 1965 ; Pearson Jr and White, 1967 ; Mook et al., 1974 ; Tamers, 1975 ; Wigley et al., 1978 ; Reardon and Fritz, 1978 ; Fontes and Garnier, 1979 ; Plummer et al., 1990) proposent des modèles de correction. Toutefois, l'estimation d'âges « réels » reste extrêmement complexe et délicate.

En accord avec Blavoux et Olive (1981), nous avons choisi de discuter sur les âges conventionnels pour les eaux triasiques car elles sont dans un réservoir gréseux où la proportion de carbonate n'est pas prépondérante. De plus, nous avons vérifié que l'hypothèse d'une activité initiale de 100% était validée (cf. XIX.1).

Pour le Dogger et certains points du Tithonien (de type Auzécourt), il est évident que les âges conventionnels doivent être corrigés car les $\delta^{13}\text{C}$ sont en général proches des valeurs typiques des carbonates marins. Toutefois, en utilisant la méthode Alexander and Alexander Jr. (1997) reproduite en annexe IV, les caractéristiques chimiques de ces eaux ne permettent aucune correction classique. En outre, les valeurs $A^{14}\text{C}$ et $\delta^{13}\text{C}$ se positionnant parallèlement à une droite de mélange « CID ouvert et carbonate » (Figure 79) et les $\delta^{13}\text{C}$ étant proches de 0‰, un doute sur l'utilisation de ce traceur pour la datation des eaux en milieu carbonaté subsiste.

Les eaux du Tithonien ayant des activités élevées constituent un système ouvert (cf. XIX.1), qui ne nécessite pas de correction pour les âges.

XIX.3. RELATION ENTRE LES RAPPORTS DES ISOTOPES STABLES ET L'ÂGE DES EAUX

Pour les 3 aquifères étudiés et à l'exception du point MSE 101, les corrélations entre les isotopes stables de l'oxygène et les activités ^{14}C permettent de définir des courbes identiques, ce qui indique une évolution climatique similaire (Figure 80), et démontre une bonne cohérence entre l'ensemble de ces valeurs.

Les âges radiométriques théoriques ($A_0 = 100\%$) calculés pour un écoulement de type piston et de type exponentiel en fonction des activités ^{14}C sont reportés sur cette même figure ainsi que deux courbes climatiques (Courbouleix, 1998) modélisées pour un scénario thermique chaud (reconstitution du climat à partir de données paléobotaniques \rightarrow température de l'air) ou froid (reconstitution du climat à partir d'informations sur les traces fossiles périglaciaires \rightarrow température du sol) et calées selon les âges « piston ». Cette modélisation climatique s'accorde de façon satisfaisante avec la courbe définie à partir des activités ^{14}C mesurées dans le Trias et suggère que les caractéristiques hydrodynamiques du réservoir gréseux seraient cohérentes avec un modèle d'écoulement de type piston et que les eaux du Trias pourraient résider dans cet aquifère depuis 20 à 35 000 ans. Pour les deux autres formations, le doute subsiste.

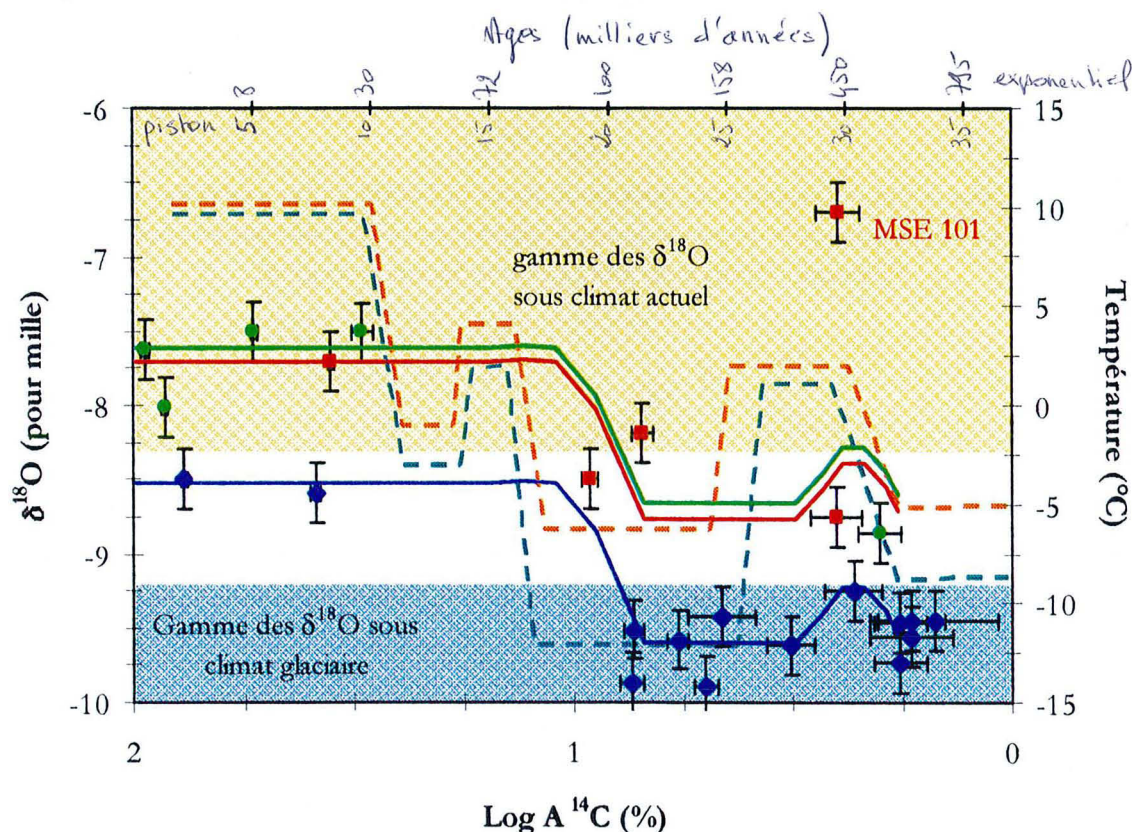


Figure 80 : Evolution des rapports isotopiques de l'oxygène en fonction de l'activité ^{14}C des eaux (Trias : bleu ; Dogger : rouge ; Tithonien : vert) et comparaison des courbes climatiques obtenues, calées d'après leur activité en ^{14}C , avec celles estimées pour un scénario thermique (Courbouleix, 1998) chaud (tirets orange) ou froid (tirets turquoise), calées pour un âge correspondant aux activités ^{14}C de l'axe des abscisses principal.

Logiquement, nous retrouvons la même adéquation avec les isotopes stables de l'hydrogène (Figure 81). De plus, il est important de noter que cette tendance est également symétrique à celles obtenues dans d'autres études : Grès du Trias en Angleterre ; aquifère du Buntsandstein en Allemagne ; Aquifère de la Grande Plaine Hongroise (Figure 83).

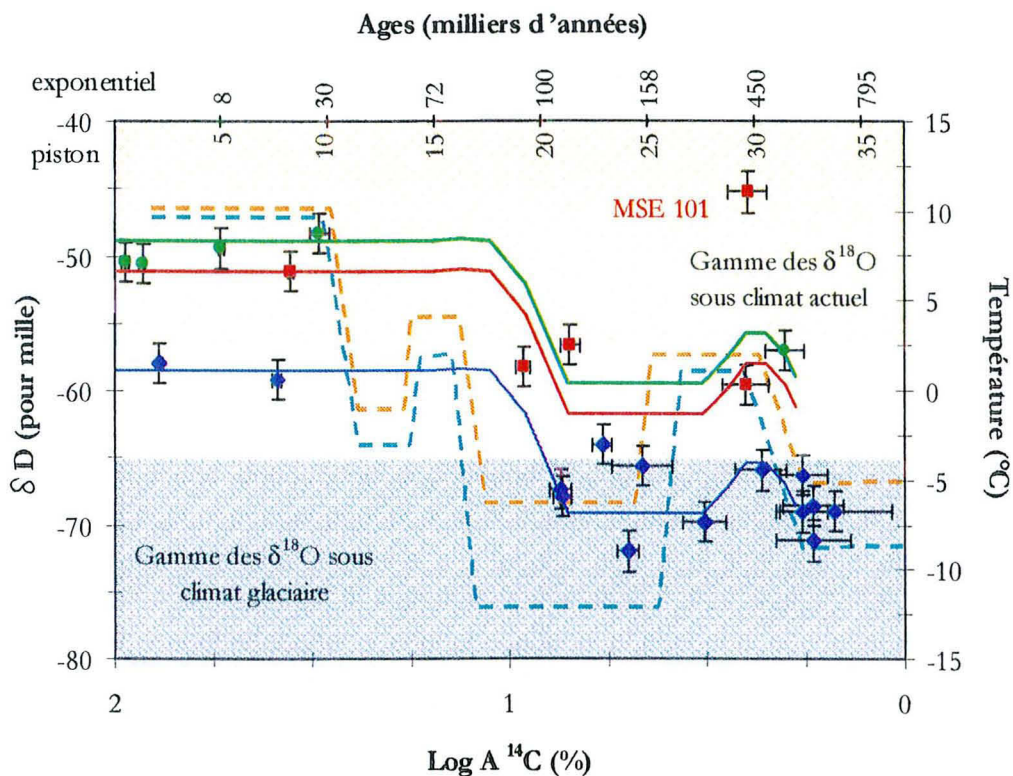


Figure 81 : Evolution des rapports isotopiques de l'hydrogène en fonction de l'activité ¹⁴C des eaux (Trias : bleu ; Dogger : rouge ; Tithonien : vert) et comparaison des courbes climatiques obtenues avec celles estimées pour un scénario thermique (Courbouleix, 1998) chaud (tirets orange) ou froid (tirets turquoise).

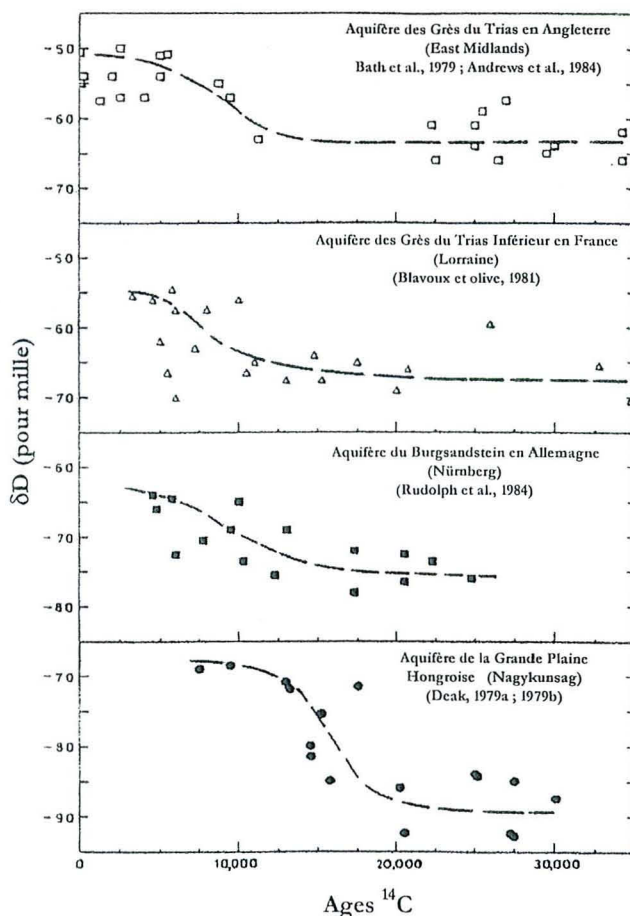


Figure 82 : Evolution des compositions isotopiques en deutérium des eaux souterraines en Europe en fonction de leur temps de résidence (extrait de Rozanski, 1985).

Un point se démarque : le forage MSE 101. Cette singularité confirme que l'activité mesurée ne permet pas de déterminer un âge et pose le problème de la limite de la méthode. D'autre part, les valeurs δD et $\delta^{18}O$ suggèrent une période de recharge sous un climat non glaciaire, ce qui est en accord avec les paléotempératures de recharge ($6.7 \pm 1^\circ C$; cf. paragraphe XXV).

XIX.4. ESTIMATION DES VITESSES D'ÉCOULEMENT

Dans le Trias, les vitesses d'écoulement ont été déterminées à partir de l'âge radiométrique et de l'éloignement du forage par rapport aux affleurements (Figure 83). Les valeurs sont comprises entre 7.5 m/an et 1.2 m/a.

Comme les vitesses de circulation des eaux à La Neuveville sous Montfort (1.2 m/a) sont faibles comparativement à celles des eaux situées au Sud de la faille de Vittel (7.5 m/a), et que les temps de résidence des eaux augmentent très vite à partir des affleurements, il est probable que l'accident de Vittel-Epinal constitue un frein important dans la progression des eaux. En accord avec cette hypothèse, le rapport hydrogéologique relatif à ce forage mentionne une différence de composition dans les sels dissous comparativement aux ouvrages voisins (diminution des bicarbonates avec Ca et Mg et augmentation des chlorures avec Na et K), ce qui tend à prouver un lien entre la salinité élevée et l'âge des eaux. Ce rôle de barrière sera précisé davantage grâce aux abondances d'hélium.

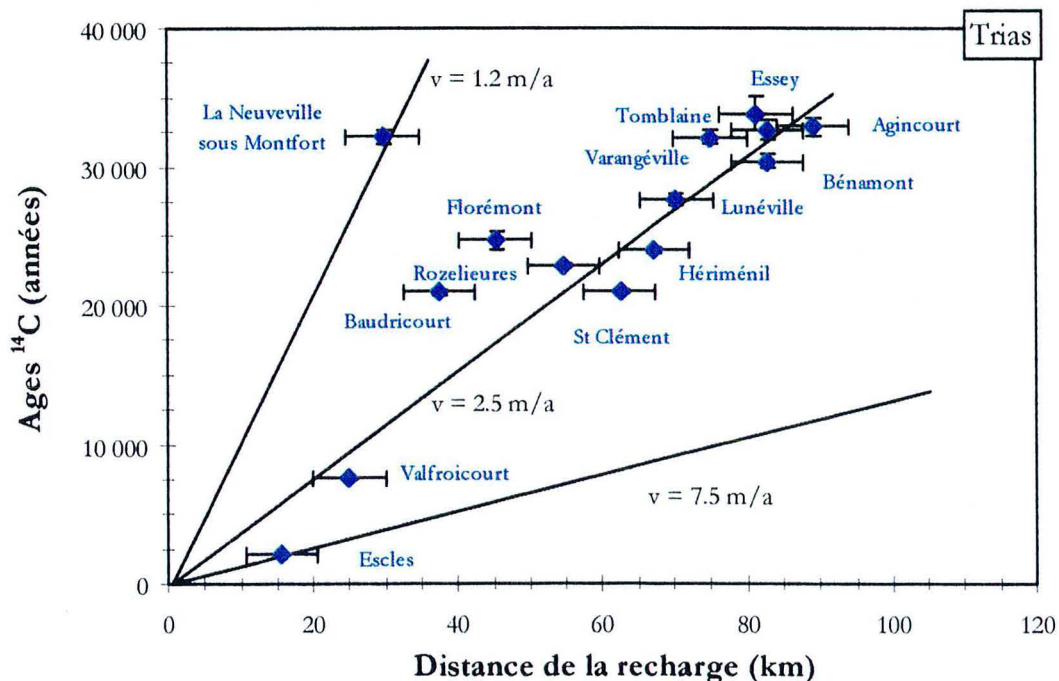


Figure 83 : Evolution des âges en fonction de la distance à la recharge des eaux triasiques.

Les incertitudes sur les activités ^{14}C des eaux du Dogger et du Tithonien ne permettant pas d'estimer un temps de résidence, aucune vitesse de circulation ne peut être proposée pour ces eaux. En effet, un raisonnement symétrique à celui mené pour les eaux triasiques sur celles du MSE 101, aboutit à une vitesse de 1.6 m/an peu réaliste si l'on se réfère aux perméabilités extrêmement faibles mesurées à cet endroit (10^{-13} m/s $< K < 10^{-9}$ m/s). Toutefois, en ce qui concerne les eaux à caractère karstique du Tithonien (activité élevée), des vitesses de l'ordre du mètre par an sont vraisemblables.

XX. LES GAZ RARES

XX.1. DANS LE THITONIEN

Les analyses de gaz rares (Tableau 35) mettent en évidence deux catégories d'eau dans cet aquifère :

- Le premier groupe (Bonnet, Gondrecourt, Neuville-sur-Ornain et Ribeaucourt) se démarque par des concentrations en hélium ($2.8 - 3.5 \times 10^{-12}$ mol/g) et en argon ($1.80 - 1.96 \times 10^{-8}$ mol/g) dans la gamme de celles de l'ASW (2.1×10^{-12} mol $^4\text{He}/\text{g}$ et 1.77×10^{-8} mol $^{40}\text{Ar}/\text{g}$ pour une eau à 10°C) et par des rapports isotopiques $^3\text{He}/^4\text{He}$ de type atmosphérique (0.9 – 1.1 Ra). En accord avec les isotopes stables, ces eaux, vraisemblablement jeunes, sont en équilibre avec l'atmosphère et n'ont pas encore atteint la partie captive de l'aquifère.

- Le second groupe (Auzécourt, Laheycourt) se distingue par des teneurs en hélium ($12 - 1.5 \times 10^{-11}$ mol/g), plus élevées que l'ASW et des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ se rapprochant des valeurs typiquement radiogéniques ($R/\text{Ra} = 0.07 - 0.08$). Ces eaux, situées à quelques kilomètres au N-O des précédentes, sont un peu plus sous couverture et s'isolent progressivement de la surface en s'enrichissant en hélium radiogénique.

Les rapports isotopiques $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ (Tableau 35) sont typiquement dans la gamme atmosphérique (295.5), même pour les eaux du second groupe, ce qui confirme que l'argon est bien retenu dans les roches de formation comme nous l'avons démontré dans la seconde partie de ce mémoire.

En revanche, pour obtenir une quantité d'hélium-4 de 12×10^{-11} mol/g (Auzécourt) par la seule production *in situ* en système fermé dans l'aquifère, 0.4 Ma seraient nécessaires (Tableau 35). Or, il semble peu probable que ces eaux atteignent un temps de résidence aussi important compte tenu de la faible distance (5 km), qui sépare ce forage de ceux de Neuville-sur-Ornain. Il est plus vraisemblable qu'elles perçoivent un apport extérieur en ^4He (Figure 84 : Kimméridgien ou socle) ou qu'elles résultent d'un mélange avec des eaux anciennes.

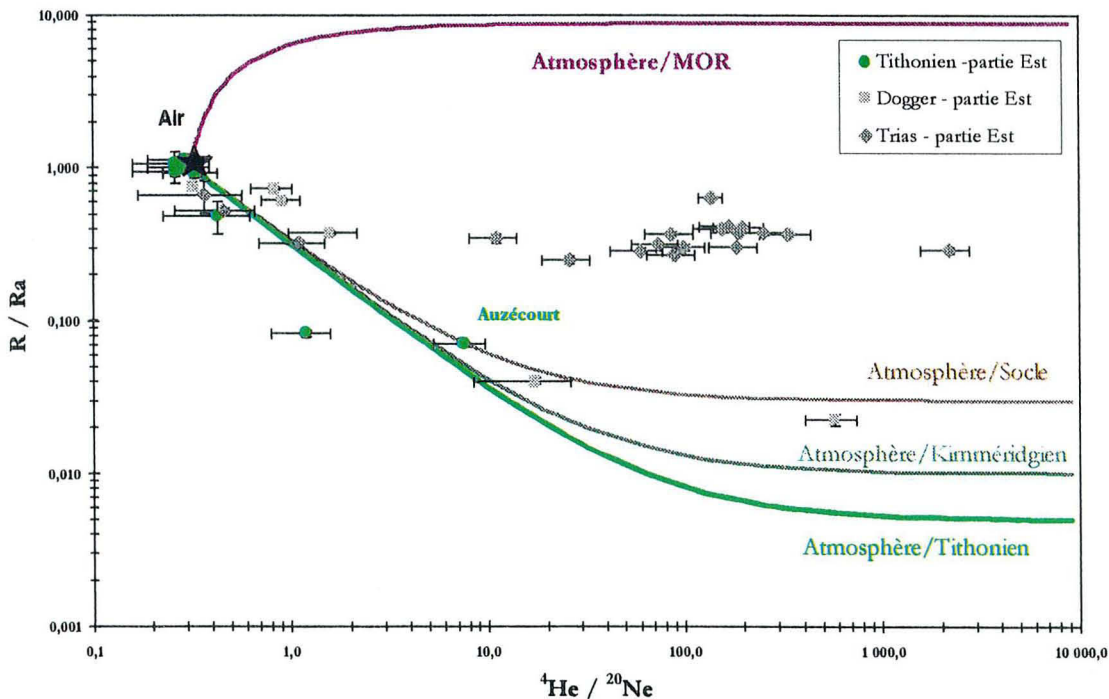


Figure 84 : Comparaison des rapports isotopiques de l'hélium et des rapports He/Ne dans le Tithonien par rapport à ceux calculés pour un mélange bipolaire air/production radiogénique in situ dans le Tithonien et Kimméridgien ou air/MOR.

| Forage | ⁴ He (±15%) mol/g | ²⁰ Ne (±15%) mol/g | ³⁶ Ar (±15%) mol/g | ⁸⁴ Kr (±15%) mol/g | R/Ra | 2σ | ⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar | 2σ | ⁴ He/ ²⁰ Ne | 2σ | ⁴ He/ ⁴⁰ Ar* | 2σ | Age He (Ma) |
|-----------------|------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------|-------|---------------------------------------|-----|--------------------------------------|-----|---------------------------------------|----|----------------|
| Auzécourt | 1.17E-10 | 1.56E-11 | 7.95E-11 | - | 0.07 | 0.002 | 295.3 | 1.6 | 7.5 | 2.2 | - | - | 0.4 ± 0.1 |
| Bonnet | 3.02E-12 | 7.03E-11 | 4.57E-11 | 2.71E-12 | 0.488 | 0.12 | 294.2 | 3.2 | 0.43 | 0.2 | - | - | 0.003 ± 0.001 |
| Gondrecourt | 2.82E-12 | 1.09E-11 | 6.10E-11 | 3.45E-12 | 0.95 | 0.15 | 295.2 | 1.8 | 0.26 | 0.1 | - | - | 0.002 ± 0.001 |
| Guerpont | 7.02E-11 | 1.12E-11 | 5.55E-11 | 3.41E-12 | - | - | 296.7 | 1.8 | 6.2 | 1.8 | - | - | 0.23 ± 0.08 |
| Laheycourt | 1.55E-11 | 1.34E-11 | 8.73E-11 | 4.40E-12 | 0.080 | 0.004 | 296.7 | 1.8 | 1.2 | 0.4 | - | - | 0.05 ± 0.02 |
| Laimont | 3.56E-12 | 1.22E-11 | 7.29E-11 | 4.07E-12 | 1.14 | 0.08 | 296.6 | 1.6 | 0.29 | 0.1 | - | - | 0.005 ± 0.002 |
| Neuville droite | 2.76E-11 | 8.24E-11 | 11.0E-11 | 8.12E-12 | 0.94 | 0.08 | 293.2 | 1.8 | 0.33 | 0.1 | - | - | 0.09 ± 0.03 |
| Neuville gauche | 2.89E-12 | 1.01E-11 | 6.37E-11 | 3.24E-12 | 1.01 | 0.06 | 295.2 | 1.6 | 0.29 | 0.1 | - | - | 0.003 ± 0.001 |
| Ribeaucourt | 3.02E-12 | 1.17E-11 | 6.62E-11 | 3.61E-12 | 1.1 | 0.2 | 295.9 | 1.8 | 0.26 | 0.1 | - | - | 0.003 ± 0.001 |
| Eau 10°C (ASW) | 2.12E-12 | 8.34E-12 | 5.85E-11 | 2.36E-12 | 1 | | 295.5 | | 0.254 | | - | | - |

Tableau 35 : Analyses de gaz rares dans les eaux du Tithonien.

| Forage | ⁴ He (±15%) mol/g | ²⁰ Ne (±15%) mol/g | ³⁶ Ar (±15%) mol/g | ⁸⁴ Kr (±15%) mol/g | R/Ra | 2σ | ⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar | 2σ | ⁴ He/ ²⁰ Ne | 2σ | ⁴ He/ ⁴⁰ Ar* | 2σ | Age He (Ma) |
|----------------|------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------|-------|---------------------------------------|-----|--------------------------------------|-----|---------------------------------------|----|----------------|
| Etain | 2.41E-11 | 1.19E-11 | 5.92E-11 | 3.47E-12 | 0.376 | 0.006 | 295.9 | 1.6 | 2 | 0.6 | - | - | 0.20 ± 0.06 |
| MSE 101 | 7.27E-09 | 1.21E-11 | 7.01E-11 | 3.71E-12 | 0.023 | 0.002 | 297.2 | 1.8 | 599 | 168 | - | - | 60 ± 20 |
| Piennes | 1.58E-11 | 2.32E-11 | 8.02E-11 | 3.95E-12 | 0.62 | 0.02 | 296.5 | 1.8 | 0.68 | 0.2 | - | - | 0.11 ± 0.04 |
| Rouvres-en-W. | 3.95E-10 | 1.25E-11 | 6.64E-11 | 3.91E-12 | 0.040 | 0.002 | 295.7 | 1.6 | 32 | 9 | - | - | 3 ± 1 |
| Valleroy | 5.49E-09 | 1.42E-11 | 7.98E-11 | 3.99E-12 | 0.73 | 0.02 | 296.0 | 1.8 | 0.39 | 0.2 | - | - | 0.03 ± 0.01 |
| Eau 10°C (ASW) | 2.12E-12 | 8.34E-12 | 5.85E-11 | 2.36E-12 | 1 | | 295.5 | | 0.254 | | - | | - |

Tableau 36 : Analyses de gaz rares dans les eaux du Dogger.

| Forage | ⁴ He (±15%) mol/g | ²⁰ Ne (±15%) mol/g | ³⁶ Ar (±15%) mol/g | ⁸⁴ Kr (±15%) mol/g | R/Ra | 2σ | ⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar | 2σ | ⁴ He/ ²⁰ Ne | 2σ | ⁴ He/ ⁴⁰ Ar* | 2σ | Age He (Ma) |
|------------------------|------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------|-------|---------------------------------------|-----|--------------------------------------|-----|---------------------------------------|------|----------------|
| Agincourt | 2.31E-09 | 1.17E-11 | 6.03E-11 | 3.44E-12 | 0.41 | 0.01 | 300.2 | 2 | 198 | 56 | 15 | 5.8 | 22 ± 7 |
| Baudricourt | 1.16E-09 | 1.58E-11 | 7.30E-11 | 3.58E-12 | 0.318 | 0.006 | 297.2 | 1.6 | 74 | 20 | 9.4 | 3.8 | 11 ± 4 |
| Bénamont | 8.89E-10 | 1.02E-11 | 8.85E-11 | 4.11E-12 | 0.37 | 0.01 | 297.2 | 1.8 | 87 | 24 | 5.8 | 2.3 | 8 ± 3 |
| Chenevières | 1.49E-09 | 1.68E-11 | 8.63E-11 | 4.35E-12 | 0.27 | 0.006 | 296.6 | 1.2 | 89 | 24 | 15 | 6.1 | 14 ± 5 |
| Contrexéville (*) | 6.94E-12 | 1.51E-11 | 6.65E-11 | 3.41E-12 | 0.52 | 0.02 | 297.6 | 2.4 | 0.46 | 0.2 | 0.05 | 0.02 | 0.05 ± 0.02 |
| Courbessaux (**) | 4.27E-12 | 1.15E-11 | 6.19E-11 | 3.61E-12 | 0.67 | 0.16 | 295.4 | 1.8 | 0.37 | 0.2 | - | - | 0.02 ± 0.01 |
| Escles | 1.05E-11 | 9.77E-12 | 6.16E-11 | 3.30E-12 | 0.32 | 0.016 | 295.3 | 2.2 | 1.1 | 0.4 | - | - | 0.08 ± 0.03 |
| Essey | 3.27E-09 | 1.27E-11 | 7.37E-11 | 4.12E-12 | 0.37 | 0.01 | 298.4 | 1.2 | 257 | 72 | 15 | 6 | 31 ± 11 |
| Florémont | 1.14E-09 | 1.62E-11 | 8.92E-11 | 4.39E-12 | - | - | 297.2 | 1.4 | 70 | 20 | 7.6 | 3 | 11 ± 4 |
| Gélacourt | 2.81E-10 | 1.08E-11 | 7.03E-11 | 3.49E-12 | 0.249 | 0.014 | 297.1 | 2.2 | 26 | 7 | 2.4 | 1 | 3.4 ± 0.9 |
| Hériménil | 1.84E-09 | 1.09E-11 | 7.11E-11 | 4.22E-12 | 0.41 | 0.01 | 296.8 | 1.6 | 169 | 48 | 21 | 8.2 | 17 ± 6 |
| La Neuveville Montfort | 1.62E-09 | 1.63E-11 | 9.89E-11 | 4.62E-12 | 0.303 | 0.014 | 297.4 | 1.6 | 100 | 28 | 8.5 | 3.4 | 15 ± 5 |
| Lunéville | 1.52E-09 | 1.10E-11 | 7.65E-11 | 4.20E-12 | 0.643 | 0.012 | 294.0 | 1.6 | 138 | 20 | - | - | 14 ± 5 |
| Manonviller | 1.34E-10 | 1.20E-11 | 7.68E-11 | 4.14E-12 | 0.347 | 0.024 | 296.9 | 1.6 | 11 | 3 | 1.2 | 0.5 | 1.3 ± 0.4 |
| Nancy | 2.85E-08 | 1.31E-11 | 6.91E-11 | 3.92E-12 | 0.289 | 0.014 | 311.2 | 2.4 | 2180 | 616 | 26 | 11 | 272 ± 95 |
| Rozelieures | 2.32E-09 | 1.50E-11 | 9.33E-11 | 4.31E-12 | 0.401 | 0.016 | 298.0 | 1.4 | 155 | 44 | 10 | 12 | 22 ± 8 |
| St Clément | 2.00E-09 | 1.08E-11 | 8.27E-11 | 3.31E-12 | 0.304 | 0.005 | 296.4 | 1.6 | 185 | 52 | 28 | 4 | 3.7 ± |
| Tomblaine | 4.57E-09 | 1.34E-11 | 8.59E-11 | 5.14E-12 | 0.368 | 0.008 | 299.3 | 1.4 | 340 | 96 | 14 | 11 | 44 ± 15 |
| Valfroicourt | 5.65E-10 | 9.38E-12 | 5.11E-11 | 2.87E-12 | 0.287 | 0.006 | 297.3 | 1.8 | 60 | 18 | 6.1 | 2.4 | 5.4 ± 1.9 |
| Varangéville | 2.30E-09 | 1.20E-11 | 6.59E-11 | 4.00E-12 | 0.38 | 0.02 | 298.8 | 1 | 191 | 54 | 18 | 7.2 | 22 ± 8 |
| Eau 10°C (ASW) | 2.12E-12 | 8.34E-12 | 5.85E-11 | 2.36E-12 | 1 | | 295.5 | | 0.254 | | - | | - |

Tableau 37 : Analyses de gaz rares dans les eaux du Trias Inférieur, (*) du Buntsandstein, (**) du Rhétien.

XX.2. DANS LE DOGGER

Les deux forages captant des exhaures de mines (Piennes et Valleroy) présentent de faibles concentrations en He ($0.55 - 1.58 \times 10^{-11}$ mol/g) et des rapports isotopiques $^3\text{He}/^4\text{He}$ (0.6 – 0.7 Ra) intermédiaires entre une composante radiogénique et une composante atmosphérique (Tableau 36). Ces eaux n'évoluant pas en système confiné, présentent une contamination atmosphérique importante et concentrent peu de He radiogénique. Comme l'on pouvait s'y attendre du fait de leur nature, elles n'apportent pas de réelles informations sur les caractéristiques hydrodynamiques du Dogger.

Les forages de Rouvres-en-Woëvre et d'Etain, situés à proximité immédiate des affleurements, contiennent 10 à 200 fois plus d'hélium (0.2 et 3.9×10^{-10} mol/g) que l'eau de recharge et affichent des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ évoluant vers un pôle radiogénique (0.38 – 0.04 Ra).

Bien que ces deux forages soient distants de moins de 10 km, des différences significatives de concentration et de composition isotopique apparaissent, traduisant assurément des hétérogénéités hydrodynamiques à cet endroit. Si Rouvres-en-Woëvre concentre des eaux dont l'hélium est principalement d'origine radiogénique (0.04 Ra), Etain capte des eaux qui n'ont pas encore perdu leur signal atmosphérique (0.38 Ra). Les eaux circulant à Etain sont plus récentes que celles de Rouvres comme le suggèrent aussi les isotopes stables de l'eau (Figure 77) et les activités ^{14}C .

Compte tenu de la situation géographique du forage MSE101 (le plus éloigné des affleurements), les eaux prélevées dans ce puits sont de loin les plus représentatives de la partie orientale de l'aquifère en milieu captif. Ainsi, il est logique de trouver une concentration en hélium (7.3×10^{-9} mol/g) très largement supérieure aux conditions ASW et un rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ radiogénique (0.02 Ra). La composante atmosphérique originaire de la recharge est devenue négligeable devant l'accumulation de ^4He produit par la radioactivité naturelle. Ces eaux sont certainement les plus anciennes de ce groupe. D'autre part, aucune contamination par de l'hélium atmosphérique injecté avec les boues de forage n'est visible dans cet échantillon.

Il est intéressant de noter que les teneurs en hélium du MSE101 sont plus faibles d'un facteur 5 par rapport à celles du Dogger au centre du bassin (3×10^{-8} mol/g). Comme la production radiogénique augmente avec le temps de résidence des eaux dans l'aquifère, cette concentration plus faible s'explique par un temps de résidence moins long pour les eaux de l'Est par rapport à celles du centre du bassin, du fait de leur moindre éloignement de la zone de recharge.

Si l'on assimile l'aquifère à un système fermé et si l'on considère un taux de production moyen de ^4He de 7×10^{-18} mol/g . an dans les séries calcaires du Dogger (Annexe II), les eaux du Nord du département de la Meuse (Rouvres-en-Woëvre et Etain) auraient des âges compris entre 0.2 et 3 Ma (Tableau 36), et celles circulant à la verticale du site de l'Est 60 Ma. Sachant que les eaux du Dogger au centre du bassin sont supposées avoir 4 ± 2 Ma (Marty et al., 1993), les âges avancés ci-dessus sont très certainement surestimés et suggèrent une origine externe pour l'hélium. D'autres auteurs (Marty et al., 1988 ; Pinti, 1993 et Castro, 1995) s'accordent également à penser qu'une composante radiogénique extérieure à l'aquifère est injectée dans le Dogger.

L'ensemble de ces forages présente des rapports isotopiques supérieurs à ceux calculés pour un mélange entre un pôle atmosphérique et la production *in situ* dans l'aquifère du Dogger (Figure 85). En revanche, il s'aligne entre une courbe de mélange atmosphère – production radiogénique dans les argiles du Callovo-Oxfordien ou du Lias, formations adjacentes au Dogger, et une courbe atmosphère – production radiogénique dans le socle (Figure 85).

Dans le centre du bassin, les eaux du Dogger suivent la même évolution, mais elles semblent incorporer une composante de type socle en plus grande proportion (Figure 85). En outre, les rapports R/R_a au-dessus de la ligne de mélange binaire « atmosphère/socle » indiquent un léger excès de ^3He (Pinti et Marty, 1998). Cette différence interdit une filiation directe entre les eaux de l'Est et celles du centre du bassin, ces dernières ayant vraisemblablement intégré des apports d'eau venant du Sud du bassin (Pinti and Marty, 1998).

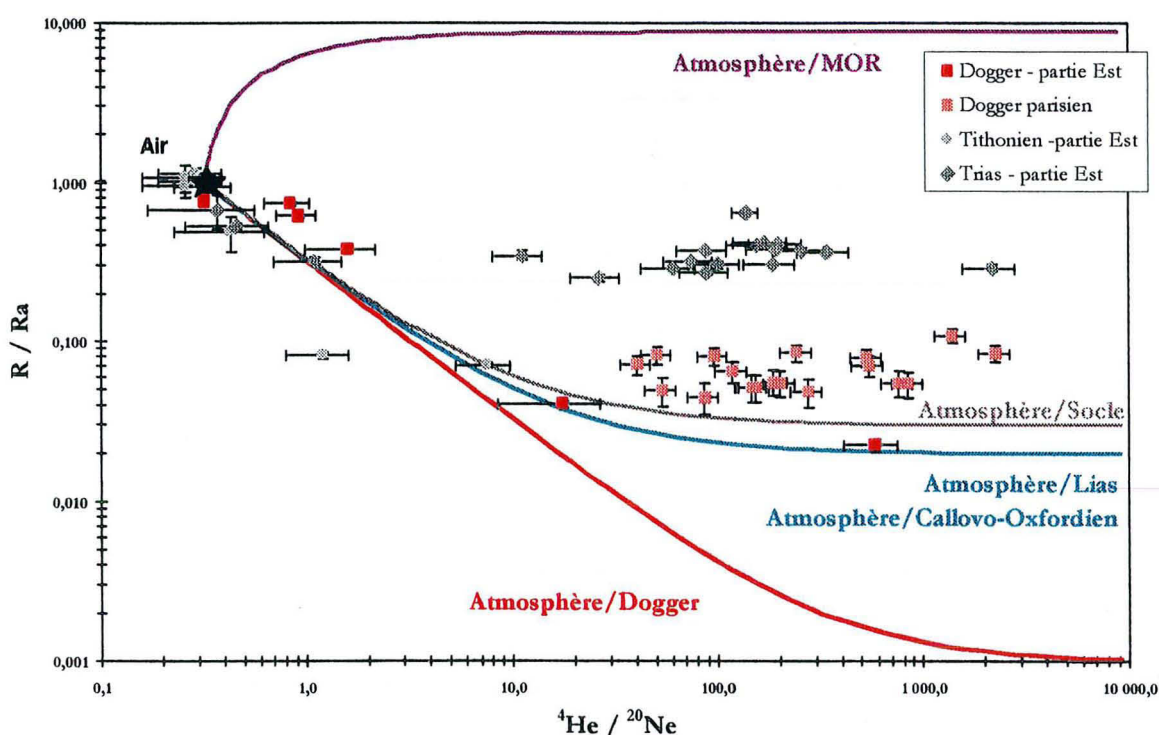


Figure 85 : Comparaison des rapports isotopiques de l'hélium et des rapports d'abondance He et Ne dans le Dogger par rapport à ceux calculés pour un mélange bipolaire air/production radiogénique *in situ* dans le Dogger, le Lias, le Callovo-Oxfordien, le socle ou air/MOR.

Les rapports isotopiques $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ (Tableau 36 et Figure 86) mesurés dans le Dogger sont légèrement supérieurs au rapport atmosphérique pour les échantillons prélevés à grande profondeur (MSE 101). Mais, dans la plupart des cas, nous n'avons pas détecté de $^{40}\text{Ar}^*$ dans les eaux. L'étude sur les roches ayant démontré le comportement conservatif de cet élément, il est cohérent de ne pas trouver de traces d'argon radiogénique dans ces fluides souterrains.

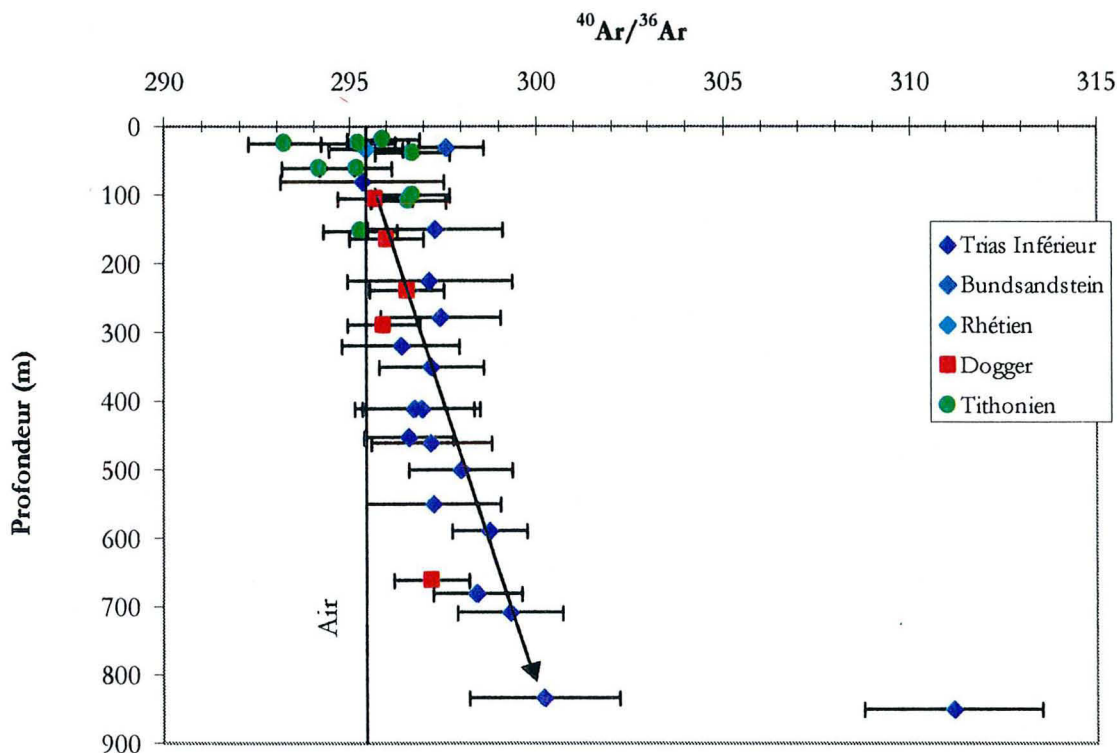


Figure 86 : Evolution des rapports isotopiques $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ en fonction de la profondeur des forages.

XX.3. DANS LE TRIAS

Les eaux triasiques présentent des concentrations en hélium (Tableau 37) variant selon 3 ordres de grandeur ($0.1 - 285 \times 10^{-10} \text{ mol/g}$). Cette variation est en relation avec la profondeur des forages (Figure 87) et laisse ainsi supposer une accumulation de ^4He radiogénique croissant avec la subsidence de l'aquifère, donc avec l'âge des eaux.

Comme les teneurs en hélium ont également tendance à augmenter avec les âges ^{14}C calculés par Blavoux et Olive en 1981 (Figure 88), l'idée d'un enrichissement en hélium en fonction du temps de résidence des eaux est renforcée. D'autre part, la répartition des concentrations en hélium et des rapports $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ (Tableau 37) par rapport à l'aire de recharge montrent que, très rapidement après enfouissement des Grès Vosgiens sous couverture, la signature atmosphérique des gaz rares disparaît au profit d'un signal radiogénique.

La faille de Vittel (Figure 88) semble jouer un rôle de frein dans les écoulements triasiques car on passe brutalement d'une eau à caractéristiques atmosphériques à une eau enrichie en isotopes radiogéniques (^4He et ^{40}Ar).

Notons également la brutale augmentation de concentration en ^4He au niveau de Nancy, qui coïncide avec le passage de la salinité à une valeur supérieure à 1g/l .

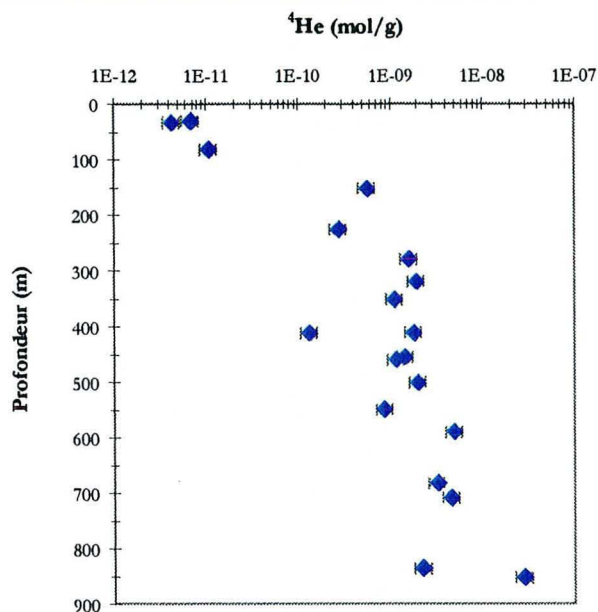


Figure 87 : Relation entre les abondances en ^4He des eaux triasiques et la profondeur des forages.

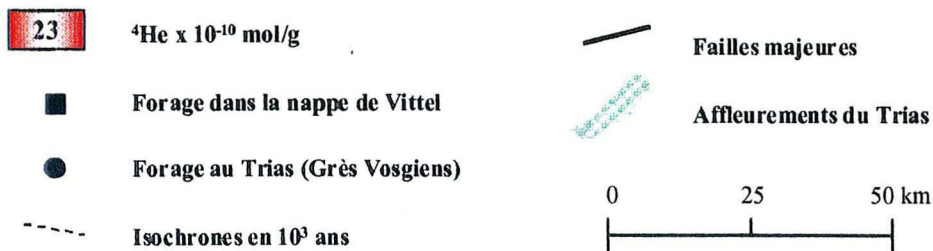
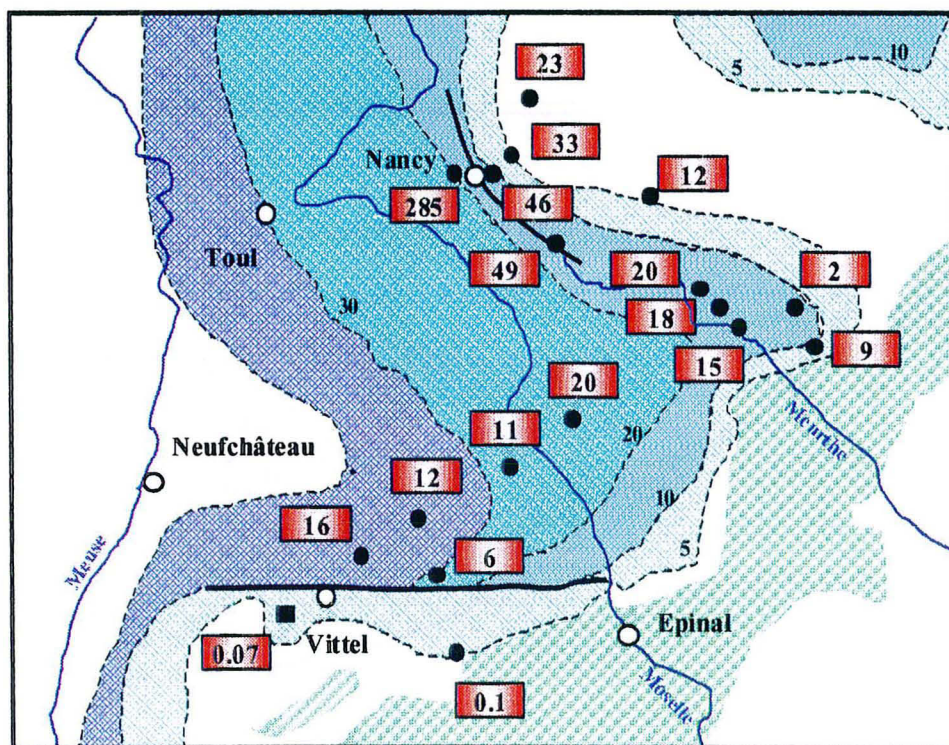


Figure 88 : Relation entre les teneurs en ^4He et les temps de résidence des fluides (dérivés des concentrations en ^{14}C , Blavoux et Olive, 1981).

En faisant l'approximation d'une évolution en système fermé et en considérant une porosité de 15%, une concentration en U de 0.57 ppm et en Th de 2.33 ppm et une densité de 2.6 pour la roche (Annexe II), les âges hélium calculés pour ces eaux sont compris entre 0.02 et 272 Ma (Tableau 37). Ces âges sont très nettement supérieurs aux isochrones ^{14}C (< 30 000 ans) et impliquent une injection de ^4He non in-situ. Ce point sera discuté au paragraphe XXI.

Les rapports isotopiques $^3\text{He}/^4\text{He}$ des eaux triasiques sont compris entre 0.28 et 0.53 Ra (Tableau 37). Ils varient peu, que ce soit en fonction de la profondeur ou de la localisation des forages.

La radioactivité naturelle des roches encaissantes (Grès du Trias) produit de l'hélium caractérisé par un rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ de l'ordre de 0.005 Ra compte tenu de la gamme d'abondance de U, Th et Li dans ces roches. Or, les valeurs $^3\text{He}/^4\text{He}$ mesurées dans les eaux triasiques sont plus élevées de 2 ordres de grandeur comparativement à cette production purement radiogénique dans les grès triasiques. Ces eaux ne suivent pas une évolution classique (mélange bipolaire : air / production radiogénique dans le Trias). Leur composition ne peut s'expliquer uniquement par l'injection d'une composante radiogénique de type argiles ou socle. Ces eaux incorporent forcément des quantités d'hélium-3 en excès (Figure 89). Cet enrichissement est le plus important que l'on ait jamais observé dans les fluides du Bassin Parisien et ne se retrouve pas dans les fluides triasiques du centre du bassin. Son origine sera discutée ultérieurement (Cf. XXIII).

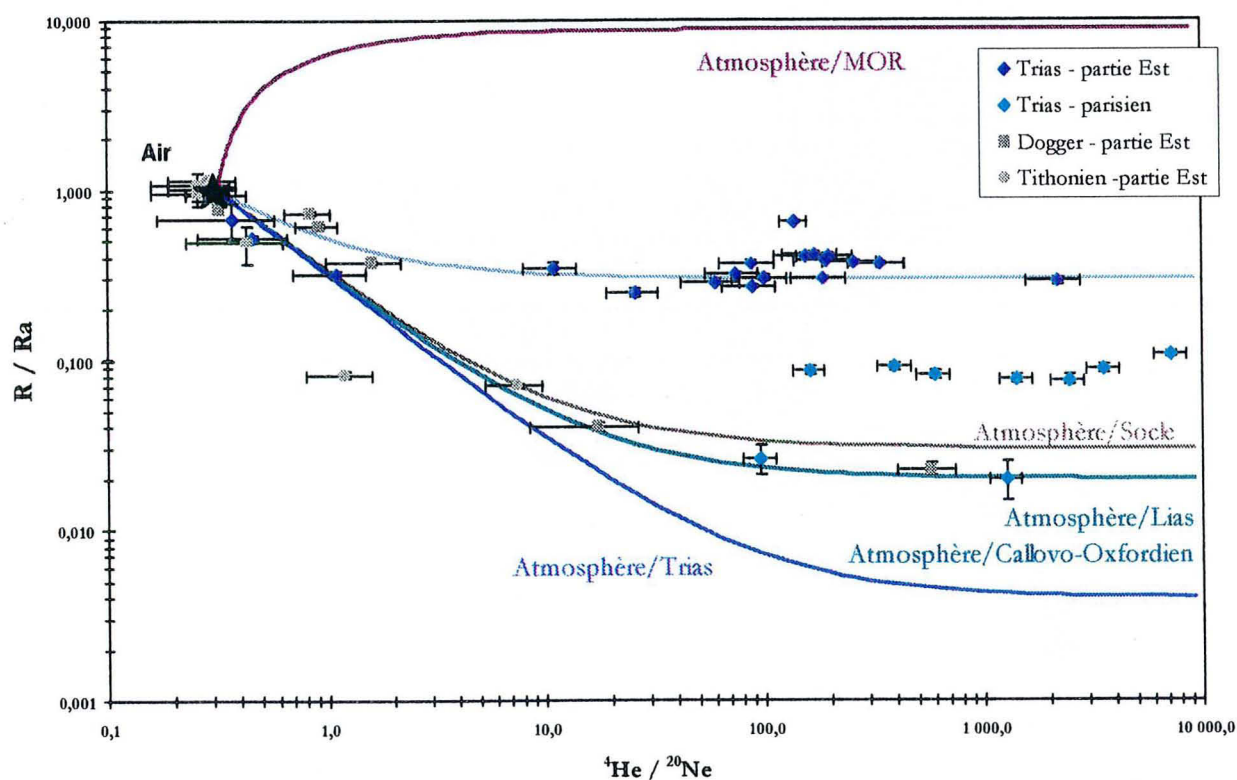


Figure 89 : Comparaison des rapports isotopiques de l'hélium et des rapports d'abondance He et Ne dans le Trias Inférieur par rapport à ceux calculés pour un mélange bipolaire air/production radiogénique in situ dans le Trias, le Lias, le Callovo-Oxfordien, le socle ou air/MOR.

Les rapports isotopiques $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ (Tableau 37) mesurés dans le Rhétien et le Buntsandstein sont similaires à la valeur atmosphérique (295.5). En revanche, dans le Trias, quelques rapports sont légèrement supérieurs (Tableau 37 : 311 pour le forage de Nancy) à la gamme atmosphérique (295.5) et indiquent une faible incorporation de $^{40}\text{Ar}^*$.

Cette addition de $^{40}\text{Ar}^*$ peut être la conséquence de la production radiogénique *in situ* dans la formation hôte et/ou d'une intrusion de fluides profonds dans les eaux météoriques en provenance de la recharge.

La faiblesse de l'apport radiogénique et la corrélation positive entre le temps de résidence et le rapport $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ (Figure 90) des eaux tend à prouver une incorporation de $^{40}\text{Ar}^*$ dérivée de la radioactivité naturelle dans les roches. Toutefois, la présence d'un gradient isotopique vertical (Figure 86), certes moins marqué que celui observé dans le centre du bassin ($299 < ^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} < 700$), impliquerait la contribution du socle. En outre, l'écart important entre le forage de Nancy (311) et les forages voisins (Agincourt, Essey, Tomblaine : 300), à temps de résidence et profondeur de forage similaires, montre clairement une contribution du socle à cet endroit.

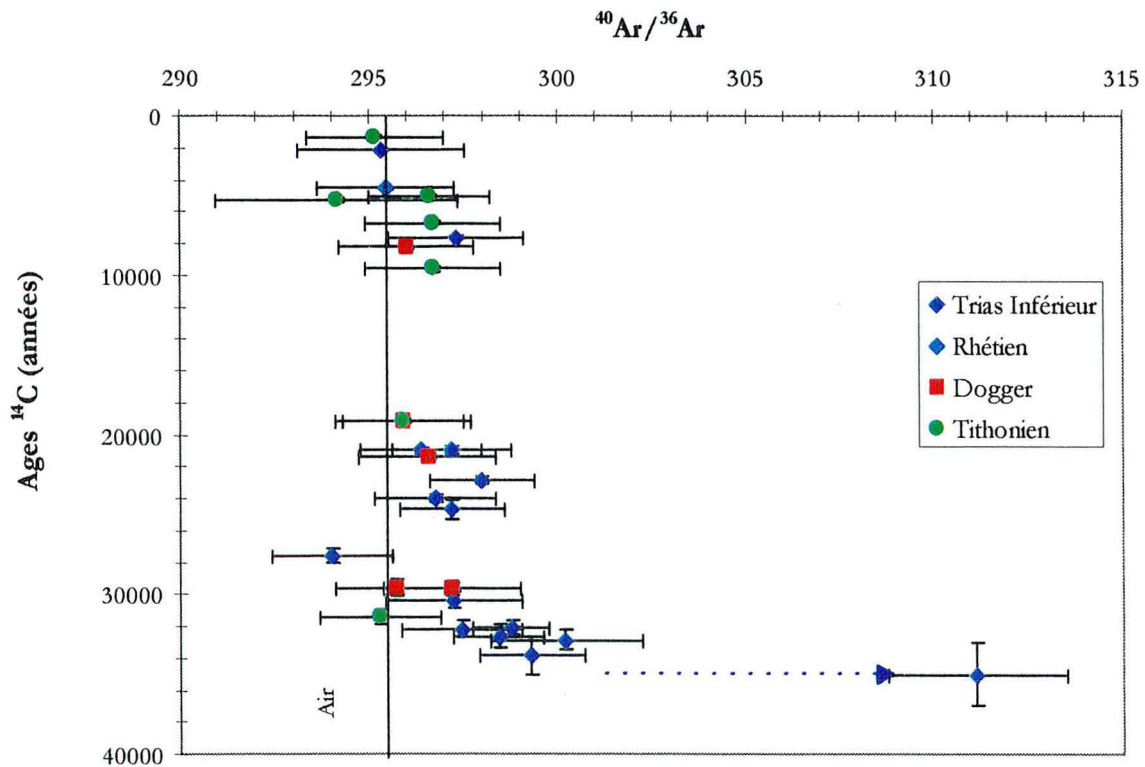


Figure 90 : Evolution des rapports isotopiques $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ en fonction de l'âge des eaux.

Chapitre IX : Discussion

XXI. L'HELIUM RADIOGENIQUE DANS LES AQUIFERES : ORIGINE ET FLUX CRUSTAUX

Nous avons montré précédemment que les eaux souterraines de Lorraine ont fréquemment des quantités de gaz rares radiogéniques supérieures à celles pouvant être produites dans les roches de porosité. Ces excès peuvent résulter :

- i) d'un mélange *in situ* entre des eaux anciennes, stagnantes, enrichies en isotopes radiogéniques et des eaux d'origine météorique plus jeunes, donc peu chargées en ^4He radiogénique, infiltrées à partir des zones de recharge et drainées par l'aquifère ;
- ii) d'un transfert (ou diffusion) des isotopes radiogéniques produits dans les couches adjacentes (argiles Callovo-Oxfordiennes, liasiques ou socle Permien) ;
- iii) d'un apport d'eau en provenance d'horizons inférieurs dont le socle.

XXI.1. DANS LE TRIAS

L'hypothèse d'un mélange entre des eaux anciennes et récentes ne semble pas appropriée pour la partie orientale de l'aquifère du Trias (Est de Nancy) car :

- i) ces eaux ne présentent pas de composante saline marquée (<1 g/l) ;
- ii) les isotopes stables de l'oxygène et de l'hydrogène révèlent une origine météorique et l'absence d'interaction eau-roche (Blavoux and Olive, 1981) ;
- iii) les modèles et les études hydrodynamiques (Wendling, 1997 ; Blavoux and Olive, 1981) ne détectent pas de zones confinées (excepté dans la région de la Sarre) dans cette partie Est, qui de plus, est fortement exploitée pour l'AEP (alimentation en eau potable) ;
- iv) les eaux sont fortement enrichies en ^3He .

Considérer le second mécanisme nous amène à estimer le flux de ^4He injecté dans le Trias. Les courbes théoriques de distribution de ^4He au cours du temps (Figure 91) tenant compte de ^4He atmosphérique en provenance de la recharge, de ^4He radiogénique produit *in situ* et d'un flux externe de ^4He (Andrews, 1985) suggèrent que le Trias reçoit environ 10^{-5} mole $^4\text{He}/\text{m}^2 \cdot \text{an}$. Le fait que l'ensemble des eaux triasiques échantillonnées emmagasinent un flux analogue, quel que soit leur temps de résidence, suggère que la source d'hélium est un phénomène continu dans le temps et, spatialement, uniformément réparti dans la partie orientale.

Quelle est l'origine de ce flux ?

i) La couche argileuse du Lias. Pour un coefficient de diffusion de He de $5 \pm 1 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ dans les argiles (Rebour, 1995) et un temps de résidence moyen de 30 000 ans pour les eaux, une distance de $7 \pm 1 \text{ m}$ peut être parcourue, ce qui correspond à l'injection d'un flux de $3.3 \times 10^{-10} \text{ mol } ^4\text{He}/\text{m}^2 \cdot \text{an}$. Cette valeur est 5 ordres de grandeur inférieure à celle détectée. Par conséquent, les argiles liasiques semblent jouer un rôle négligeable dans l'excès de ^4He radiogénique mesuré dans le Trias.

ii) Les horizons sous-jacents tel le socle. A partir du coefficient de diffusion de He dans l'eau ($7 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$: Ohsumi and Horibe, 1984) et de la porosité du socle (0.5%), on peut établir un coefficient de diffusion effectif de $3.5 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, ce qui implique une distance parcourue de 6 m en 30 000 ans, soit un flux sortant du socle de $6.5 \times 10^{-10} \text{ mol}/\text{m}^2 \cdot \text{an}$. Cette source est également insuffisante. En outre, même si l'on considère les flux dérivés de la production crustale ($15 \times 10^{-7} \text{ mol } ^4\text{He}/\text{m}^2 \cdot \text{an}$: Torgersen and Clarke, 1985 et 1987), la quantité diffusée est beaucoup trop faible.

iii) La dernière solution est un apport de fluide du socle. Les seules mesures de gaz rares dans les eaux du socle sont celles extraites du forage de Couy (Meynier et Marty, 1991). La concentration en hélium étant de $7 \times 10^{-8} \text{ mol}/\text{g}$, elle permet d'expliquer les fortes teneurs du Trias.

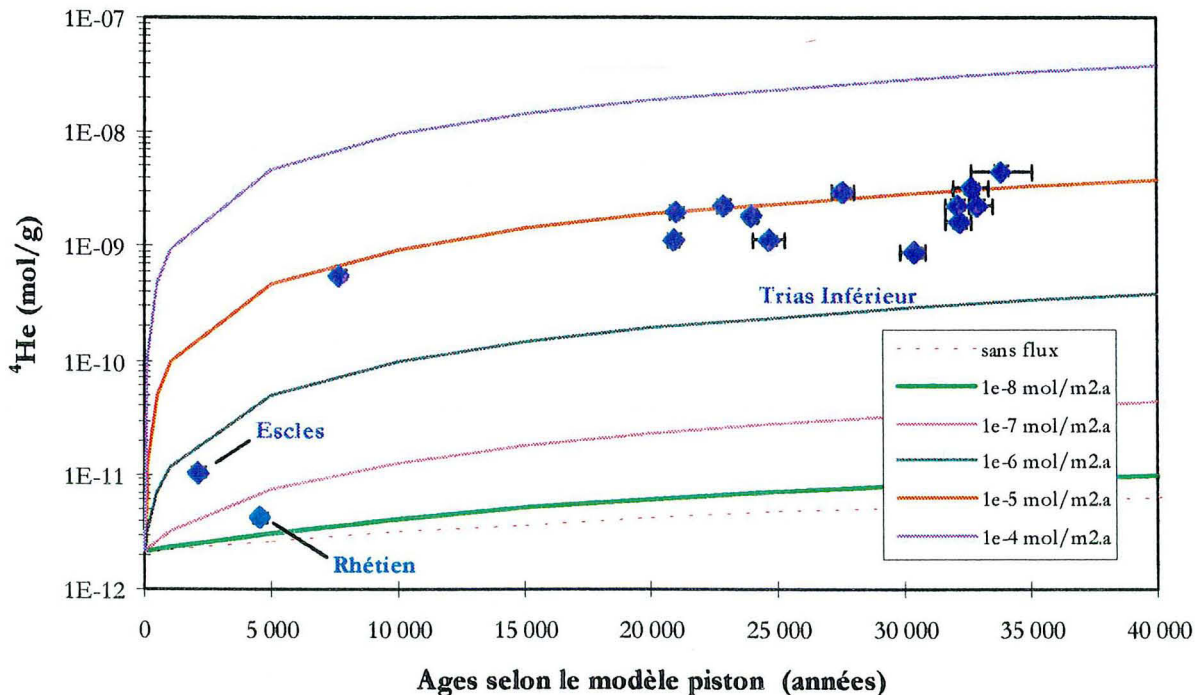


Figure 91 : Relation entre les concentrations en hélium-4 et les âges ^{14}C dans le Trias : un flux de ^4He radiogénique en provenance des horizons sous-jacents, de l'ordre de $1 \times 10^{-5} \text{ mol}/\text{m}^2 \cdot \text{an}$, arrive dans l'aquifère des Grès vosgiens.

L'hélium-4 n'est pas le seul argument en faveur d'un apport extérieur à l'aquifère d'isotopes de gaz rares. En effet, l'étude des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ et $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ a montré qu'une contribution exogène d'isotopes radiogéniques était possible.

XXI.2. DANS LE DOGGER

Il est extrêmement difficile de déterminer l'origine de l'hélium-4 en excès de la production radiogénique in situ dans le Dogger de l'Est du bassin, car les données sont très peu nombreuses.

Un mélange entre des eaux d'âges différents est envisageable dans le cas des exhaures de mines et aussi pour le MSE 101 :

- Les exhaures de mines peuvent refléter des eaux anciennes, qui incorporent des eaux météoriques actuelles infiltrées dans les galeries de mines.

En prenant comme hypothèse de départ un flux moyen équivalent à celui que recevraient les eaux du Dogger au centre du bassin (2×10^{-7} mol $^4\text{He}/\text{m}^2$. an ; Marty et al., 1993), les eaux du MSE 101 auraient 1 Ma. Cette valeur correspond aux caractéristiques hydrauliques mesurées au niveau du site de l'Est (perméabilités $< 10^{-9}$ m/s).

Par un raisonnement similaire à celui décrit pour le Trias, les argiles du Lias et du Callovo-Oxfordien pourraient fournir par diffusion un flux total de 3.8×10^{-9} mol $^4\text{He}/\text{m}^2$. an. Cette valeur est 2 ordres de grandeur inférieure à celle estimée par Marty et al. (1993). Par conséquent, le Dogger devrait recevoir une intrusion d'eau des formations sous-jacentes. Ce point sera discuté à nouveau lors de la modélisation des isotopes de gaz rares (XXVIII.2).

XXII. DECOUPLAGE ENTRE L'HELIUM ET L'ARGON RADIOGENIQUES

Des études antérieures (Great Artesian Basin : Torgersen et al., 1989 ; Bassin Parisien : Pinti, 1993 ; Castro, 1995) ont mentionné un découplage entre les isotopes radiogéniques ^4He et ^{40}Ar .

Cette caractéristique est également reconnue dans les eaux du Trias de l'Est du Bassin Parisien, qui affichent quelques rapports radiogéniques $^4\text{He}/^{40}\text{Ar}^*$ (Tableau 37) supérieurs à la production radiogénique dans la croûte (valeur moyenne : 4 ± 2) et dans le socle (valeur régionale : 5.6).

Plusieurs hypothèses ont été avancées pour expliquer ce découplage (Torgersen et al., 1989 ; Pinti, 1993 ; Castro, 1995) :

- Relargage préférentiel de ^4He par rapport à ^{40}Ar ;
- Injection d'isotopes par convection, contrôlée par la tectonique. Si ce processus est en plus discontinu dans le temps, une grande variation dans les flux libérés peut être observée, d'où des rapports $^4\text{He}/^{40}\text{Ar}^*$ variables ;
- Sources différentes : certaines enrichies en ^4He et d'autres appauvries en ^{40}Ar ;
- Mécanismes de transport distincts : majoritairement diffusif pour ^4He et essentiellement convectif pour ^{40}Ar .

Comme nous l'avons vu dans la partie II, l'argon est bien retenu dans les roches sédimentaires comparativement à l'hélium, qui peut être très mobile. Donc, la première hypothèse est tout à fait applicable à cette étude.

Le forage de La Neuveville sous Montfort, situé près de la faille de Vittel, marqué par de fortes concentrations en isotopes radiogéniques par comparaison à son éloignement des affleurements, ne présente pas un rapport particulièrement élevé. Par conséquent, ces eaux doivent provenir de très profond et la tectonique pourrait alors jouer un rôle pour cet échantillon.

Des mécanismes de transport différents peuvent être envisagés puisque les rapports du Trias sont plus faibles que celui du MSE 101 (eaux du Dogger). Par conséquent, la formation argileuse du Lias pourrait favoriser le passage par diffusion de l'hélium par rapport à l'argon. Toutefois, ne disposant que d'un seul point de mesure, il faut considérer ce résultat avec prudence.

A ces processus peuvent se coupler des hétérogénéités liées à des zones appauvries en K par rapport à d'autres (1 000 ppm dans le Dogger ; 35 000 ppm dans le Trias).

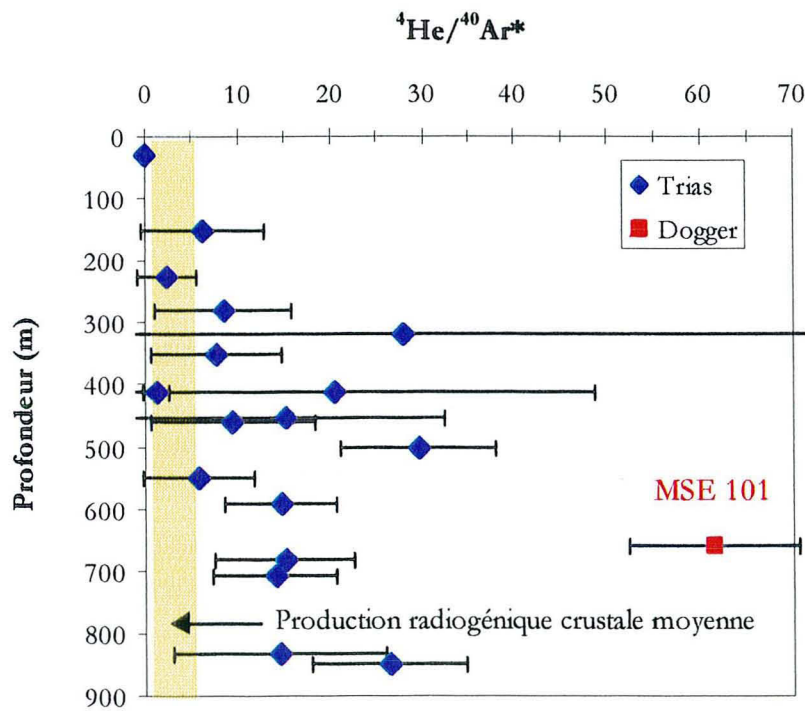


Figure 92 : Relation entre les rapports radiogéniques $^4\text{He}/^{40}\text{Ar}^*$ et la profondeur des forages.

En résumé, toutes ces hypothèses peuvent être invoquées pour justifier le découplage entre ^4He et $^{40}\text{Ar}^*$. Toutefois, celle d'un relargage préférentiel d'hélium des roches vers l'eau semble jouer un rôle plus important.

XXIII. ORIGINE DE L'HELIUM-3 DANS LE TRIAS

L'excès d'hélium-3 mis en évidence par les rapports isotopiques de l'hélium peut résulter :

- i) d'un apport tritiogénique ;
- ii) d'une incorporation de poussières extra-terrestres (Ozima et al., 1984 ; Hiyagon and Kennedy, 1992) dans les sédiments pélagiques lors de la diagenèse ;
- iii) d'une composante cosmogénique préservée dans les sédiments ;
- iv) d'une production "anormale" d'hélium nucléogénique du fait d'un environnement particulièrement riche en Li ;
- v) d'une contribution d'hélium juvénile provenant du manteau.

La durée de demi-vie du tritium étant de 12.3 années et les eaux ayant un temps de résidence supérieur à 10 000 ans, la première hypothèse ne peut être retenue.

La seconde semble peu probable également, car, bien que les roches à bas taux de sédimentation puissent contenir 2×10^{-15} mole ^3He cosmique par gramme (Anderson, 1993), leur taux de rétention très élevé, même à haute température, ne permet pas un transfert conséquent de ^3He vers les fluides (Amari and Ozima, 1985).

La production nucléogénique étant supérieure à la production cosmogénique à la profondeur du Trias (Figure 1), la troisième supposition est à écarter définitivement.

La quatrième proposition s'avère aussi peu réaliste, car elle supposerait des teneurs en Li exceptionnelles, de l'ordre de 850 ppm alors que celles habituellement observées dans ces grès est de 20 à 30 ppm. De plus, les eaux, elles-mêmes, ne sont pas enrichies en Li (< 0.5 ppm) et ne peuvent expliquer cet enrichissement.

La possibilité d'une contribution d'hélium magmatique en provenance de la croûte sous-jacente constitue l'hypothèse la plus vraisemblable. Cette idée est renforcée par les rapports mesurés dans le socle (0.12 - 0.14 Ra) par Meynier et Marty (1991) et par la Figure 94, qui montre une évolution des rapports isotopiques d'hélium, à partir de celui de l'air, intermédiaire entre ceux de la croûte continentale et ceux du manteau.

La composante mantellique détectée dans ces eaux triasiques peut s'expliquer par :

- i) la présence d'intrusions magmatiques dans la croûte ;
- ii) une activité volcanique locale ;
- iii) des remontées de fluide extrait de magmas situé à la base de la croûte.

Ces 3 hypothèses sont cohérentes avec les caractéristiques géologiques de la marge orientale du bassin.

La carte au toit du socle (Figure 93) révèle la présence de roches volcaniques, dont l'importance en tant que génératrice de ^3He sera discutée dans la partie modélisation.

Par ailleurs, le socle lorrain renferme de petites zones connues pour leur activité volcanique telle que celle d'Essey-la-Côte.

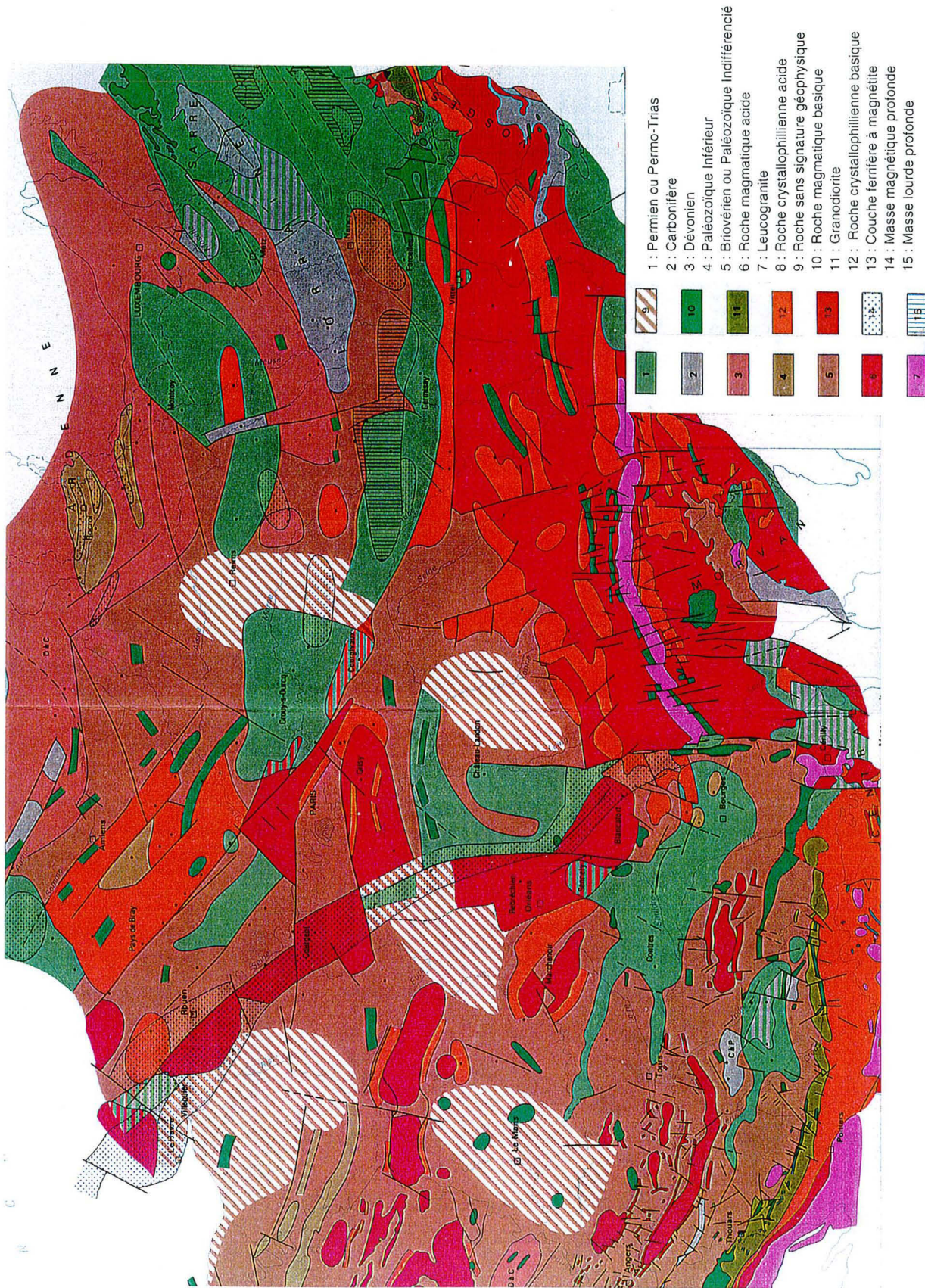


Figure 93 : Carte du toit du socle (extraite Mégnien, 1980).

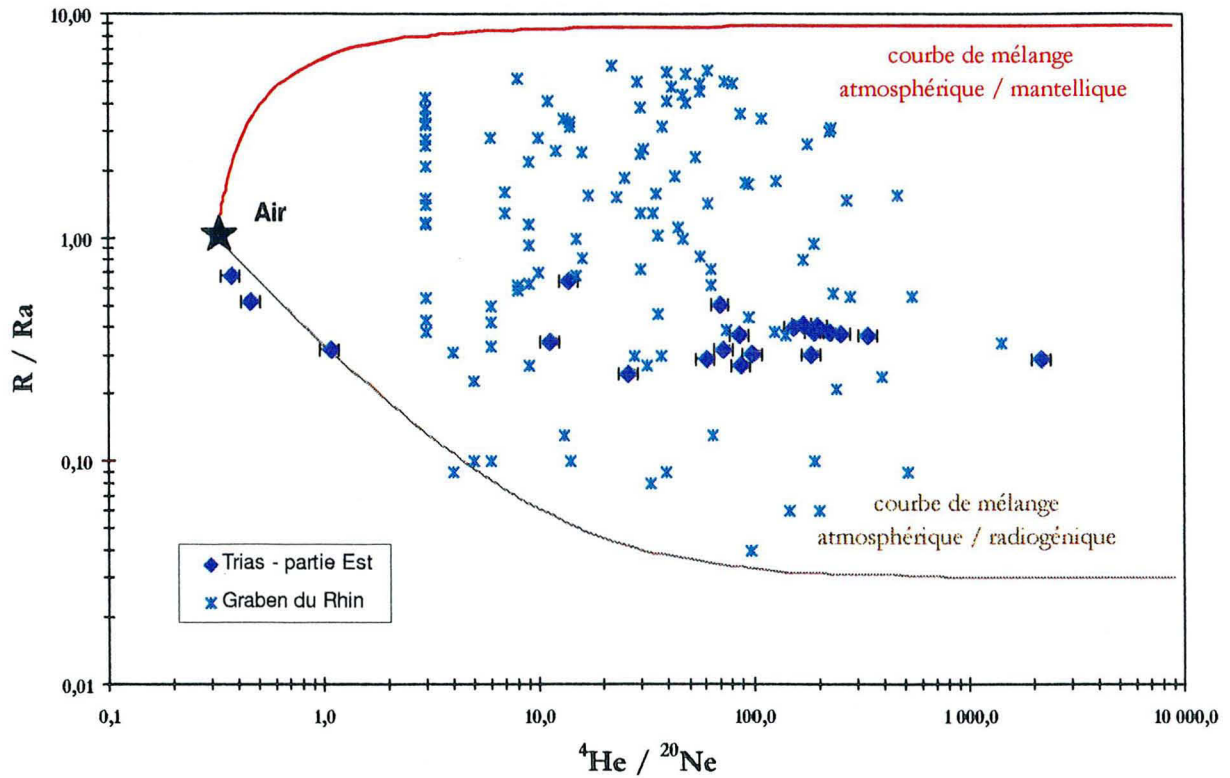


Figure 94 : Evolution des rapports isotopiques de l'hélium et des rapports $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ du Trias et du Graben du Rhin comparée à une courbe de mélange bipolaire « air / production radiogénique » et « air/ manteau ».

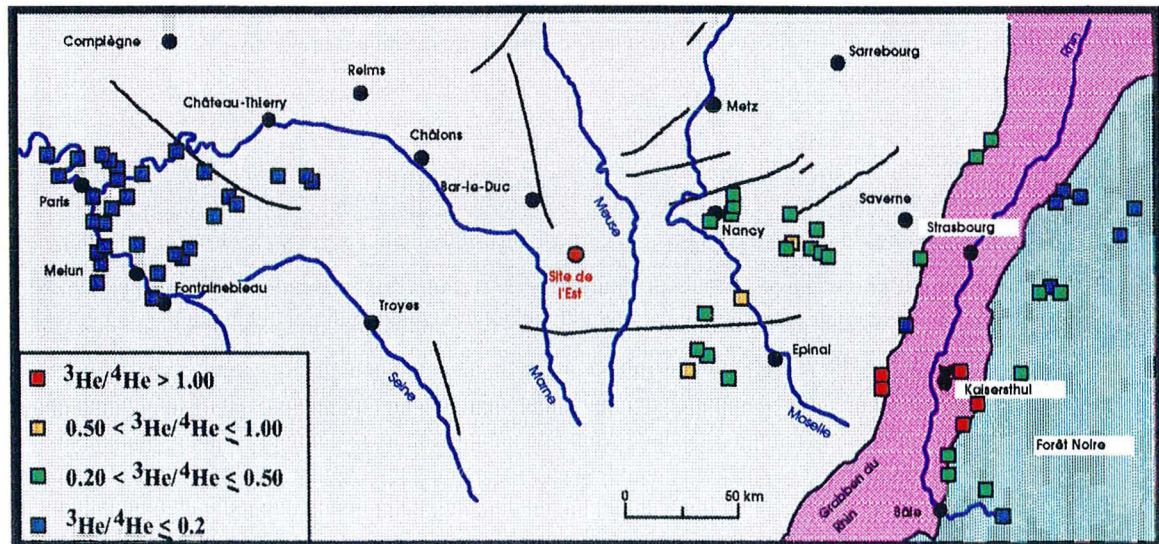


Figure 95 : Carte des rapports isotopiques $^3\text{He} / ^4\text{He}$ du Bassin Parisien au Graben du Rhin (Centre du Bassin Parisien : Marty et al., 1993; Pinti et Marty, 1995 - Graben du Rhin : Griesshaber, 1992 - Lorraine : cette étude).

On peut noter également la remarquable adéquation entre les compositions isotopiques de l'hélium dans les Grès Vosgiens et celles détectées dans le graben du Rhin, aire d'extension continentale (0.2 - 5.9 Ra; Griesshaber et al., 1991; Marty et al., 1992, Figure 94 ; Figure 95). Or, il existe des évidences de magmatisme en profondeur dans cette région : i) présence de volcanisme III (Kaiserstuhl) et IV (Eifel). ii) le flux de chaleur y est particulièrement élevé. Il est alors vraisemblable de supposer que des éléments volatils juvéniles, tels que ^3He , ont pu être extraits du manteau par des magmas stockés à présent dans la croûte profonde, et redistribués vers des niveaux plus superficiels par des circulations de fluides. L'étendue de ce processus dépasserait largement l'expression de surface de la tectonique régionale constituée par le graben du Rhin.

Comme les rapports R/Ra sont peu variables quelle que soit l'augmentation des rapports $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ (Figure 94), les fluides triasiques reçoivent une contribution d'hélium exogène ayant un rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ peu variable.

Tous ces éléments concourent à confirmer l'origine extérieure à l'aquifère de ^3He . Il n'est donc pas possible d'utiliser quantitativement l'hélium pour dater les eaux des Grès Vosgiens. Cependant, l'hélium isotopique apporte une information qualitative capitale : il existe à l'échelle régionale des transferts de fluides importants entre la croûte et l'aquifère des Grès Vosgiens, permettant l'injection, dans cet aquifère, d'éléments volatils originaires transportés par les magmas issus du manteau sous-continental. Compte tenu des faibles vitesses de diffusion de l'hélium à l'échelle de la croûte ou du bassin (de l'ordre de $7 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ soient 2 km en 245 Ma), il est clair que ce transport est essentiellement convectif, probablement favorisé par la tectonique sub-verticale du graben du Rhin. Les flux de ^3He mantellique injectés dans le Trias lorrain sont estimés à $1.3 - 8.3 \times 10^{-12} \text{ mol}/\text{m}^2 \cdot \text{an}$.

Les eaux triasiques du centre du Bassin Parisien contiendraient $\approx 1\%$ d'hélium d'origine mantellique (Pinti and Marty, 1998), soit une concentration de l'ordre de $10^{-17} \text{ mol}/\text{g}$. Or, les eaux triasiques de l'Est du Bassin Parisien renferment plus de 90% de ^3He magmatique, soit $10^{-15} \text{ mol}/\text{g}$. Cela suggère que non seulement la source de ^3He mantellique injectée dans les fluides de l'Est ne s'étend pas à l'ensemble du bassin, mais aussi que les eaux du centre du bassin reçoivent peu d'eaux de la recharge de l'Est et/ou sont mélangées à des eaux provenant d'autres recharges provoquant une dilution du signal mantellique.

Afin de vérifier que l'incorporation d'un fluide issu du socle dans les eaux du Trias n'affecte pas les résultats obtenus avec les autres traceurs géochimiques, nous voulions faire un calcul de balance de masse, en considérant un mélange entre la signature isotopique $^3\text{He}/^4\text{He}$ d'un fluide de type Sancerre - Couy (seul forage atteignant le socle et étudié géochimiquement) et celle caractéristique de la production radiogénique. Malheureusement, les données δD et $\delta^{18}\text{O}$ ainsi que les activités ^{14}C ne sont pas disponibles et nous n'avons pu effectuer ce calcul. Cependant, l'injection de 6% de fluide profond ne devrait pas modifier les résultats de façon conséquente.

XXIV. ISOLATION TRIAS/DOGGER

La différence observée dans les rapports isotopiques $^3\text{He}/^4\text{He}$ entre le Dogger ($\approx 0.02 R_a$) et le Trias ($\approx 0.3 R_a$) montre que l'hélium-3 mantellique identifié dans le Trias n'est pas apparent dans l'aquifère du Dogger. Deux explications sont envisageables (Figure 96) :

- Les argiles du Lias peuvent jouer le rôle d'isolant entre ces deux formations aquifères. Les cinétiques de transfert au travers des semi-perméables sont si faibles (cf. partie II) que l'hélium-3 n'est pas encore arrivé dans le Dogger. Quant à la chute des rapports isotopiques dans le Trias de l'Est vers l'Ouest, elle pourrait provenir de l'incorporation d'eaux issues de différentes recharges et enrichies préférentiellement en hélium-4 radiogénique.

- Comme dans la marge orientale du bassin, les forages disponibles au Trias (flèches grises) sont situés à l'Est de Nancy et ceux au Dogger à l'Ouest de cette ville, il est impossible de comparer ces eaux selon un profil vertical. Il est alors envisageable que le signal en ^3He pourrait rester partiellement bloqué dans la partie Est du Trias Lorrain. Comme la salinité augmente drastiquement à partir de Nancy vers le centre du bassin, les vitesses de circulation semblent chuter et ces eaux peuvent rester confinées. Ce mécanisme expliquerait la diminution des rapports R/R_a d'Est en Ouest dans le Trias. La combinaison d'une progression ralentie de la signature mantellique vers l'Ouest dans le Trias et du pouvoir isolant des argiles liasiques contribueraient à freiner le passage de l'hélium-3 vers le Dogger.

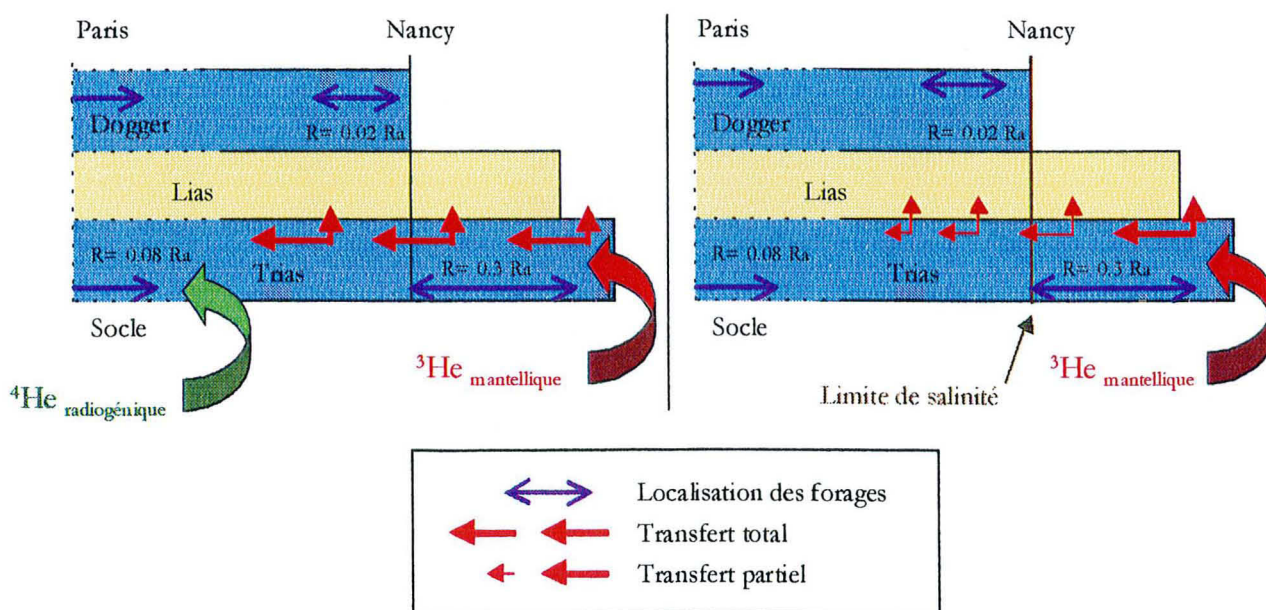


Figure 96 : Isolation Trias / Dogger vis à vis de l'hélium-3 mantellique.

XXV. LES PALEOTEMPERATURES DE RECHARGE DES EAUX

Les paléotempératures de recharge des eaux (Tableau 38) ont été déterminées à partir des concentrations en gaz rares atmosphériques (Ar, Kr, Xe). Ne disposant pas toujours des concentrations en Xe, faute de seuil de détection trop bas pour le spectromètre utilisé (VG603), la majorité des paléotempératures sont calculées sur la base de la concentration en krypton-84 atmosphérique, corrigée d'éventuelles additions de microbulles d'air hors équilibre à l'aide du programme « Paleotemp » (Pinti and Van Drom, 1998). Ces valeurs, bien qu'approximatives si l'on en juge par leur méthode de calcul, permettent néanmoins d'établir une corrélation correcte avec le climat enregistré au cours du Quaternaire récent.

En effet, en reportant pour les trois aquifères étudiés, les paléotempératures obtenues en fonction des activités ^{14}C , on obtient une courbe, qui peut être assimilée à une courbe paléoclimatique des 30 000 dernières années si l'on tient compte des âges « piston » déterminés pour le Trias (Figure 97). L'allure générale de cette courbe est en bon accord avec l'évolution climatique établie dans le bassin hongrois (Stute and Sonntag, 1989) d'une part, et avec celle dérivée de l'étude des sables verts de l'Albien (Pik et al, 1998) d'autre part. Précisons que ces 2 courbes ont été également élaborées suite à la détermination des paléotempératures de recharge.

De façon générale, les temps de résidence estimés pour ces eaux augmentent avec la distance à la recharge et la direction d'écoulement.

| Forage | Gaz | T (°C) | Forage | Gaz | T (°C) |
|------------------|-------|--------|---------------|-------|--------|
| TRIAS | | | | | |
| Agincourt* | Kr-Xe | 3.7 | Gélacourt | Ar | 1.7 |
| Baudricourt | Kr | 0.9 | Hériménil | Kr | 2.6 |
| Bénamont | Kr | 3.5 | Lunéville* | Xe | 1.2 |
| Chenevières* | Kr-Xe | 1.7 | Manonviller | Kr | 3.2 |
| Contrexéville | Ar-Kr | 9.6 | Nancy* | Kr-Xe | 5.0 |
| Courbessaux | Kr | 7.6 | Rozelieures | Ar | 2.0 |
| Escles | Kr | 10.8 | St Clément | Ar | 1.7 |
| Essey | Kr | 3.4 | Valfroicourt | Kr | 7.9 |
| Florémont | Kr | 1.4 | Varangéville | Kr | 4.3 |
| DOGGER | | | | | |
| Etain | Kr | 1.8 | Piennes | Ar | 2.9 |
| MSE 101 | Ar-Kr | 8.4 | Rouvres-en-W. | Ar-Kr | 5.1 |
| TITHONIEN | | | | | |
| Auzécourt | Ar | 3.3 | Guerpont | Kr | 7.6 |
| Bonnet | Kr | 9.8 | Laheycourt | Ar-Kr | 5.6 |
| Gondrecourt | Ar-Kr | 10.3 | Ribeaucourt | Kr | 11.0 |

Tableau 38 : Les paléotempératures de recharge des eaux souterraines de l'Est du Bassin Parisien d'après l'abondance atmosphérique du gaz mentionné. L'erreur (1σ) est d'un degré au maximum. (*) analysé à l'ETH - Zurich.

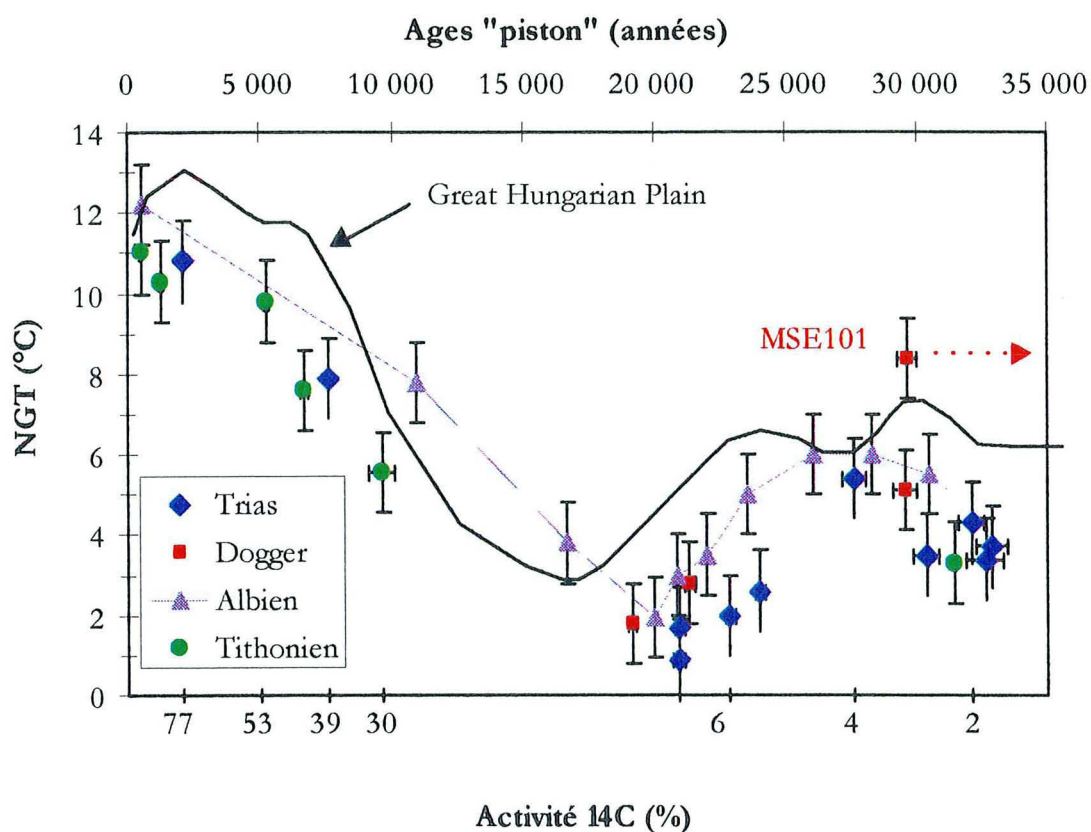


Figure 97 : Relation entre les paléotempératures de recharge des eaux et les activités ^{14}C . Comparaison de la courbe climatique obtenue avec celle établie pour l'aquifère de l'Albien (Pik et al., 1998) et le Bassin Hongrois (Stute and Sonntag, 1989).

Chapitre X : Conclusions sur l'hydrodynamique de l'Est du Bassin Parisien

L'étude géochimique sur les eaux de l'Est du Bassin Parisien mène aux conclusions suivantes :

√ Le Tithonien est caractérisé par des eaux, pour la plupart, jeunes et peu confinées (âges modernes, teneur en He proche de l'ASW ; $^3\text{He}/^4\text{He}$ atmosphérique). Un point, Auzécourt, reflète la partie plus captive de la nappe ($\approx 31\ 000$ ans, teneur en He élevée comparativement à l'ASW ; $^3\text{He}/^4\text{He}$ radiogénique). Les activités en ^{14}C et les teneurs en $\delta^{13}\text{C}$ sont typiques d'un aquifère karstique.

√ Les aquifères du Trias et du Dogger concentrent un excès de production radiogénique consécutif à l'incorporation de ^4He en provenance des horizons sous-jacents et du socle. Un flux de l'ordre de 10^{-5} mol/m². an a été estimé pour le Trias.

√ Des excès de ^3He , de l'ordre de 90% par rapport à la production nucléogénique, ont été détectés dans le Trias. Une seule source peut expliquer un tel enrichissement : le manteau. Les liens indéniables entre les rapports isotopiques $^3\text{He}/^4\text{He}$ du graben du Rhin et ceux des eaux triasiques le confirment. Ainsi, il y aurait des transferts de fluides, de grande ampleur, à l'échelle de la croûte dans la marge orientale du bassin. Le Dogger calcaire ne présente pas des enrichissements en ^3He aussi marqués. Par conséquent, les transferts massiques entre le Trias et l'aquifère jurassique doivent être restreints, ce qui implique des vitesses de circulation extrêmement lentes. Dès lors, il devient indiscutable que les argiles du Lias, formation semi-perméable adjacente à ces deux aquifères, jouent un rôle prépondérant dans ces cinétiques de transfert et peuvent être apparentées à une barrière isolante efficace. N'ayant aucun point de mesure dans l'Oxfordien calcaire, nous ne pouvons construire un raisonnement similaire pour les argilites du Callovo-Oxfordien. D'autre part, les eaux triasiques, au centre du bassin, n'ont pas enregistré un pourcentage aussi important en ^3He d'origine profonde. Il semblerait alors que le signal mantellique, présent dans l'Est, ne soit pas encore parvenu dans la partie centrale du bassin ou qu'il ait été dilué lors de la convergence d'eaux issues de différentes zones de recharge (Ouest, Sud).

√ Si les datations par ^{14}C permettent, pour les eaux triasiques, d'estimer un temps de résidence autour de 30 000 ans, confirmé par les isotopes stables de l'eau et les paléotempératures de recharge, les problèmes d'interactions entre les fluides et les carbonates ou de représentativité de l'eau de formation (MSE 101) ne permettent pas de dater les eaux tithoniennes et jurassiques. Toutefois, la conjugaison des signatures isotopiques en $\delta^{18}\text{O}$ et δD et en hélium des eaux du MSE 101 laisse supposer une période de recharge voisine de celle qui a prévalu pour les eaux du centre du bassin. Sur la base des teneurs en hélium, les eaux circulant au niveau du site de l'Est, pourraient avoir un temps de résidence de l'ordre d'1 Ma. Les vitesses de circulation associées sont de 0.05 m/an, valeur voisine de celles estimées par Marty et al. en 1993 (0.04 m/an).

√ Dans la partie Est du Trias, les vitesses de circulation seraient en moyenne de l'ordre de 2.5 m/an. Les forages à proximité de la faille de Vittel présentent des vitesses plus faibles (1.2 m/an) quand ils sont au Nord de cet accident comparativement à ceux situés au Sud (7.5 m/an). Ces observations sont corroborées par des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ de type atmosphérique au Sud et radiogénique au Nord. Ainsi, la présence de cette faille constitue un frein dans la progression des eaux.

QUATRIEME PARTIE :

MODELISATION DES TRANSFERTS DE GAZ RARES

DANS L'EST DU BASSIN PARISIEN

IMPLICATIONS HYDRODYNAMIQUES

Cette quatrième partie développe l'hydrodynamique des aquifères du Bassin Parisien.

Un modèle 3D d'écoulement des fluides (mis en oeuvre par ANTEA Orléans) est utilisé (Ch XI), afin de tester différentes hypothèses (Ch XII) prenant en compte les données de gaz rares (abondances, rapports isotopiques) obtenues au cours des parties II et III. Le chapitre XIII récapitule les conclusions importantes mises en évidence au cours de cette étude.



Chapitre XI : Caractéristiques du modèle hydrodynamique utilisé

Les données obtenues sur les eaux souterraines de l'Est de la France sont ponctuelles et correspondent géographiquement à la distribution des forages disponibles. Cette répartition s'avère particulièrement pauvre dans le cas des aquifères situés au-dessus du Callovo-Oxfordien. Par conséquent, il ne serait pas réaliste de proposer un scénario relatif aux transferts hydriques dans la marge orientale du Bassin Parisien à partir de ces données éparées. Toutefois, en intégrant dans un modèle de circulations hydrodynamique les résultats géochimiques acquis lors de cette étude et ceux extraits de la littérature, apparaît la possibilité de lier nos connaissances sur les principaux aquifères du bassin et de définir un cadre général de circulation et de répartition des isotopes de gaz rares.

Depuis une trentaine d'années, différents auteurs (Astié, 1969 ; Trescott et al., 1976 ; Hennart et al., 1981 ; Fogg, 1986 ; Bethke, 1988 ; Kreitler, 1989) ont utilisé la modélisation mathématique pour aborder le comportement des systèmes aquifères profonds. Une autre approche consiste à associer un traceur géochimique, en l'occurrence l'hélium, à la modélisation numérique (Wei, 1990 ; Castro ; 1995 ; Castro et al., 1998). L'étude de Wei est focalisée sur le seul aquifère du Dogger en région parisienne et celle de Castro repose sur un modèle 2D, le long d'un axe Lunéville - Versailles. L'originalité de cette étude est de coupler les gaz rares, l'hélium-4 et l'hélium-3, à un modèle d'écoulements des fluides, 3D, multi (14) - couches, englobant le Bassin Parisien dans sa totalité.

Initialement, ce modèle hydrodynamique a été réalisé à la demande de l'ANDRA, en vue de caractériser les circulations souterraines au niveau du site de l'Est. Il a été développé par Wendling (1996 et 1997) à ANTEA à partir du logiciel MARTHE (BRGM).

Ce chapitre décrit succinctement le cadre hydrodynamique qui a servi de base pour cette étude, puis les modifications apportées au modèle pour intégrer les données de gaz rares. Une fois rendues compatibles les données physiques de circulation (topographie, perméabilité, charges) et les contraintes chronologiques imposées par les gaz rares, nous discuterons (Chapitre XIII) de :

- i) l'ampleur des transferts hydriques à travers les semi-perméables. Par exemple, nous considérons les aquifères du Dogger et du Trias de l'Est, séparés par le semi-perméable du Lias.
- ii) les vitesses de circulation dans les principaux aquifères.

Et, nous confronterons nos résultats à ceux dérivés de modélisations existantes (Wei, 1990 ; Castro, 1995).

XXVI. PRESENTATION DU MODELE

XXVI.1. LE LOGICIEL MARTHE

Conçu et développé au BRGM, le logiciel MARTHE (Modélisation d'Aquifères par un maillage Rectangulaire en régime Transitoire pour le calcul Hydrodynamique des Ecoulements) est destiné à modéliser les problèmes d'écoulement rencontrés dans des contextes variés (gestion des ressources aquifères, génie civil, environnement, exploitation minière...).

Il est écrit en langage FORTRAN 90 et permet de simuler de nombreux types d'écoulement en offrant différents niveaux d'utilisation :

- Maillages 2D (en plan, en coupe verticale, en coordonnées cylindriques) ou 3D.
- Aquifères monocouches ou multicouches.
- Nappes libres, captives ou semi-captives en régime hydraulique permanent ou transitoire.
- Anisotropies horizontale et verticale des perméabilités.
- Traitement continu de la zone saturée et de la zone non saturée.
- Effets densitaires induits par des salinités et/ou des températures hétérogènes.
- Prise en compte des variations de viscosité avec la température.
- Transport avec interactions physico-chimiques entre eau, effluents et matrice poreuse.
- Ecoulements monophasiques ou diphasiques (eau et air, eau et "huile").
- Transport simulé sous composante advective, diffusive et dispersive.
- Relations « nappe-rivière ».

XXVI.2. PRINCIPE DU CODE DE CALCUL

Le modèle des écoulements souterrains dans le Bassin Parisien a été réalisé avec la version 5.6 du logiciel Marthe. Il est en 3 dimensions et comprend 15 couches.

Le domaine modélisé est discrétisé selon un maillage carré de type "écossais" : chaque ligne et chaque colonne de mailles ont une largeur constante de 10 km, excepté autour du site de recherches ANDRA où le pas de discrétisation est de 1 km. Les mailles sont ajustées sur le carroyage kilométrique du système de coordonnées géographiques Lambert, zone II étendue.

Les données d'entrée et les résultats de modélisation à répartition spatiale (perméabilités, charges hydrodynamiques, débits, concentrations,...) se présentent sous forme de fichiers texte ASCII. Ils sont écrits selon une norme dite « SEMIS » élaborée au BRGM (Annexe V, Figure A8), qui associe les coordonnées géographiques des mailles aux valeurs attribuées à chaque maille. Cette norme permet de consulter facilement les données sous éditeur de texte et de les superposer à des fonds cartographiques préalablement digitalisés selon le système de coordonnées géographiques Lambert, zone II étendue. Les données peuvent être définies par zones, par couches ou globalement pour tout le maillage.

Les calculs hydrodynamiques sont effectués selon une méthode aux différences finies. L'algorithme de résolution utilisé est une méthode matricielle par gradients conjugués, avec préconditionnement de Choleski (Hill, 1990 ; Press et al., 1989).

La convergence des calculs est contrôlée par plusieurs critères :

- l'écart maximum de charges entre deux itérations successives ;
- les débits résiduels d'erreur, qui doivent être négligeables sur l'ensemble du modèle et dans chacune des mailles ;
- le nombre de Peclet : rapport entre la taille de la maille et le coefficient de diffusion – dispersion ;
- le nombre de courant : rapport entre la distance parcourue par pas de temps et la dimension de la maille.

La topographie est interpolée à partir du Modèle Numérique de Terrain (MNT) de l'IGN. Les perméabilités et les porosités cinématiques sont les seuls paramètres hydrodynamiques introduits dans le modèle du fait que les simulations sont réalisées en régime permanent. Les vitesses d'écoulement sont estimées pour une porosité cinématique uniforme de 10% pour l'ensemble des couches.

XXVI.3. DESCRIPTION SPATIALE DU MODELE

Le modèle hydrogéologique « régional du site de l'Est » (Wendling, 1996 et 1997) couvre l'ensemble du Bassin Parisien : 600 km d'Est en Ouest et 500 km du Nord au Sud, soit 180 000 km². Il est délimité par des frontières naturelles : les Ardennes, les Vosges, le Morvan, le Massif Central et le Massif Armoricaïn. Sa limite inférieure correspond à la cuvette formée par le toit du socle Anté-Permien. Il est constitué de l'empilement de 15 couches, affleurant sous forme d'auréoles concentriques, et représentant les 15 principaux faciès lithologiques du Bassin Parisien (Annexe V Figure A9).

Ces 15 unités hydrogéologiques sont répertoriées ci-après par âge de formation croissant :

- le **Tertiaire**, aquifère présent seulement au centre du bassin sédimentaire.
- la **Craie aquifère** assimilée aux 150 premiers mètres de la formation du Crétacé supérieur ;
- le semi-perméable de la base du **Crétacé supérieur** ;
- l'**Albien** aquifère ;
- l'**Âptien** semi-perméable ;
- le **Néocomien** aquifère (regroupant les formations du Barrémien-Hauterivien au Berriasien) ;
- le **Tithonien**, semi-perméable dans son ensemble, mais karstifié et aquifère au voisinage du site ;
- le **Kimméridgien**, semi-perméable ;
- l'**Oxfordien calcaire**, aquifère constituant l'encaissant supérieur de la formation hôte ;
- le **Callovo-Oxfordien**, formation argilo-marneuse hôte ;
- le **Dogger calcaire**, aquifère constituant l'encaissant inférieur de la formation hôte ;
- le **Lias**, semi-perméable ;
- le **Rhétien**, aquifère ;
- le **Trias non détritique**, semi-perméable ;
- le **Trias détritique**, aquifère.

La zone ainsi discrétisée comprend 85 000 mailles de calcul réparties en :

- 107 colonnes entre les abscisses 370 et 1040 km ;
- 77 lignes entre les ordonnées 2120 et 2670 km ;
- 15 couches superposées jusqu'à 2 000 m de profondeur.

XXVI.4. SIMULATION HYDRODYNAMIQUE DE REFERENCE

La simulation hydrodynamique de référence, détaillée sous le nom de « simulation 6 » dans Wendling (1997), répond aux caractéristiques suivantes :

- i) Les perméabilités affectées aux aquifères (Tableau 39) sont spatialement variables. Elles résultent d'informations de terrain, de modélisations antérieures (BRGM, 1986, 1995) ou encore d'une moyenne de ces données lorsque la zone n'a pas été étudiée. Les perméabilités des semi-perméables sont supposées uniformes par couches par manque d'information ; elles ont été ajustées de façon à reproduire au mieux les connaissances acquises pour chaque aquifère. Les contrastes de perméabilité entre aquifères et semi-perméables sont suffisants pour conduire à des écoulements d'échelle régionale, s'organisant sur des dizaines, voire des centaines de kilomètres. Ceci n'excluant pas, toutefois, que des échanges aient lieu entre aquifères, au travers des formations semi-perméables les séparant. Cette configuration des écoulements est en concordance avec les hypothèses de circulation dans le Trias, le Dogger et l'Albien.

| Couches du modèle | Perméabilités moyennes (m/s) | |
|----------------------|------------------------------|--------------------|
| | semi-perméables | aquifères |
| Tertiaire | - | 10^{-5} |
| Craie aquifère | - | 7×10^{-7} |
| Crétacé supérieur | 10^{-11} | - |
| Albien | - | 5×10^{-5} |
| Aptien | 2×10^{-11} | - |
| Néocomien | - | 3×10^{-5} |
| Tithonien | 10^{-11} | - |
| Kimméridgien | 10^{-11} | - |
| Oxfordien calcaire | - | 2×10^{-7} |
| Callovo-Oxfordien | 10^{-12} | - |
| Dogger calcaire | - | 8×10^{-7} |
| Lias | 10^{-10} | - |
| Rhétien | - | 4×10^{-7} |
| Trias non détritique | 10^{-9} | - |
| Trias détritique | - | 10^{-5} |

Tableau 39 : Perméabilités des différentes couches du modèle.

- ii) les charges piézométriques des aquifères de surface sont assimilées à une topographie "lissée", reproduisant au mieux les différentiels de charge hydraulique régnant entre les zones de recharge (points hauts topographiques) et les zones d'exutoire (points bas associés au réseau hydrographiques).

iii) les conditions aux limites sont :

- un flux nul en périphérie et au fond du modèle (Permien imperméable) ;
- un potentiel gravitationnel imposé à 0 m pour la limite correspondant au littoral de la Manche. En surface du modèle, le potentiel imposé est égal à la topographie « lissée ».

XXVI.5. MODIFICATIONS SPATIALES DU MODELE REGIONAL

Afin de tenir compte de l'hélium radiogénique produit dans le socle anté-permien et injecté dans les aquifères par des circulations ascendantes de fluides, de nouvelles couches ont été ajoutées à la base du modèle hydrogéologique existant (Figure 98). La surface de ce dernier s'en est trouvée élargie, car le socle doit affleurer pour recevoir des infiltrations d'eau météorique (Annexe V Figure A10). Le socle est modélisé par 5 niveaux d'épaisseur et de perméabilité variables (Tableau 40 et Figure 98), car, le potentiel étant imposé en surface, un seul niveau de mailles ne suffit pas à générer des écoulements au niveau des affleurements. L'unique but de ces couches est de permettre la simulation d'apport de gaz rares d'origine profonde. Leur nombre et leur épaisseur ne sont en aucun cas reliés à l'hydrogéologie du Bassin Parisien. Leur impact est négligeable sur les écoulements des formations sédimentaires sus-jacentes car la perméabilité qui leur est affectée est très faible.

| N° de la couche dans le modèle | Epaisseur (m) | Perméabilité (m/s) | Porosité (%) |
|-----------------------------------|------------------|-----------------------|-----------------|
| 16 | 100 | 10^{-11} | 0.5 |
| 17 | 200 | 10^{-12} | 0.5 |
| 18 | 500 | 10^{-12} | 0.5 |
| 19 | 1000 | 10^{-12} | 0.5 |
| 20 | 2000 | 10^{-12} | 0.5 |

Tableau 40 : Caractéristique des 5 niveaux modélisant le socle

Pour considérer les flux de ^3He provenant du manteau, nous avons répertorié, dans le socle, les zones constituées de roches volcaniques (Figure 99) à partir d'une carte géologique au toit du Permien (Figure 93). Les roches basaltiques et granodioritiques anciennes (200 - 300 Ma) sont distinguées des roches volcaniques récentes (1 - 60 Ma) car les flux de ^3He dans les zones de magmatisme Stéphien peuvent être inférieurs à ceux des zones d'âges Tertiaire et Quaternaire. Le Massif Central étant un épisode magmatique récent, les couches du socle ont été étendues jusqu'à inclure la partie du massif drainée vers le Bassin Parisien (Figure 98). En surface, cela correspond à la partie supérieure du bassin versant de la Loire. Une autre zone de volcanisme peut influencer les concentrations en ^3He dans les eaux circulant à proximité du site de l'Est, il s'agit du Kaiserstuhl, situé dans le graben du Rhin. La géochimie des gaz rares (cf. XX) montre que la composition isotopique d'hélium dans les eaux du Trias, circulant dans l'Est du Bassin Parisien, présente des similitudes avec celle détectée dans le graben du Rhin. Ceci signifierait qu'il existe, à l'échelle régionale, des transferts de fluides importants entre la croûte et l'aquifère des Grès Vosgiens. Ces transferts favoriseraient l'injection dans l'aquifère d'éléments volatils, transportés à l'origine par des magmas issus du manteau sous-continentale. Une zone magmatique profonde figure dans le modèle hydrogéologique au niveau du socle lorrain, pour représenter le volcanisme détecté à Essey la Côte.

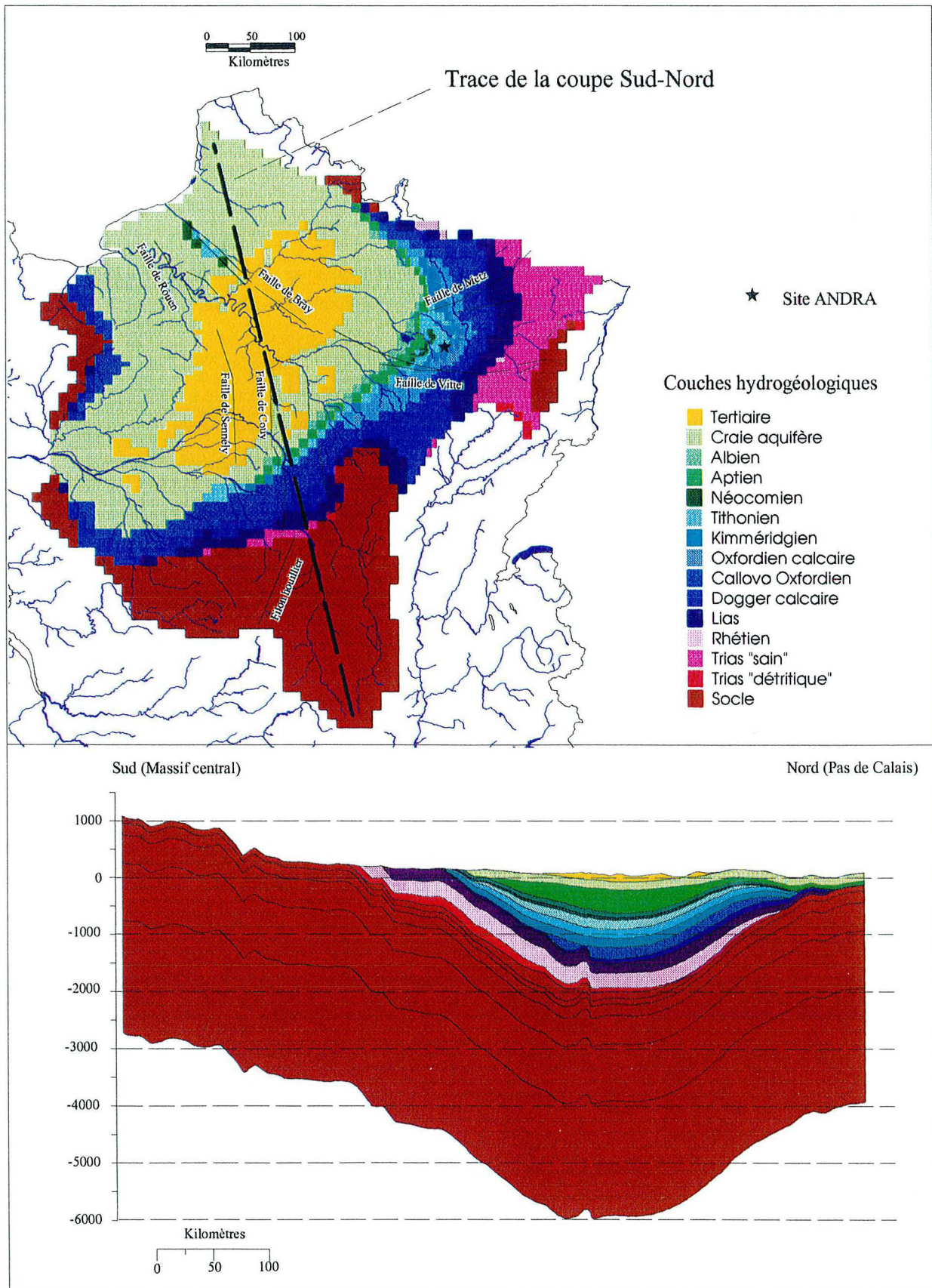


Figure 98 : Affleurement des différentes couches du modèle et coupe Sud-Nord du modèle.

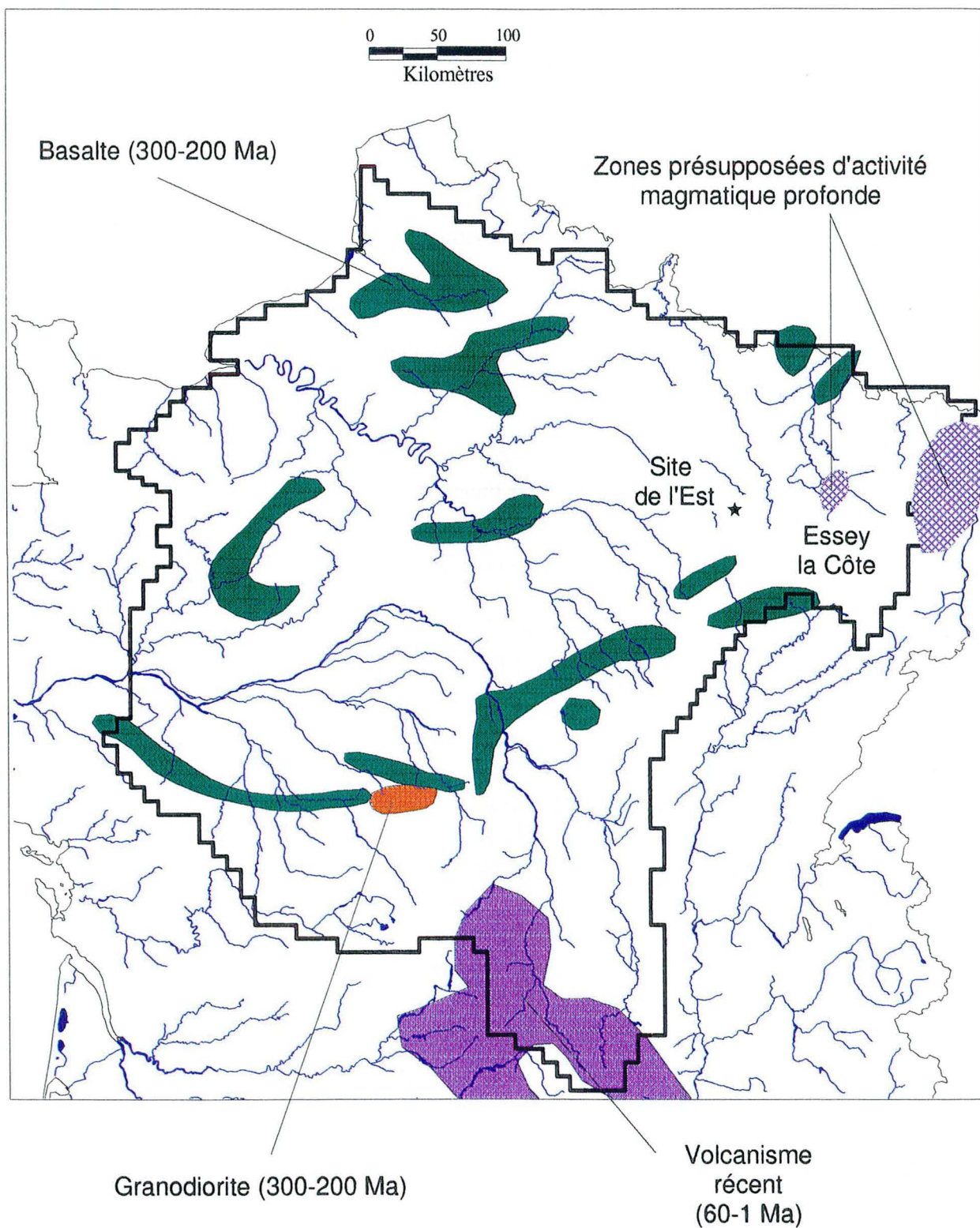


Figure 99 : Zones de volcanisme au toit du socle (Permien).

L'ensemble de ces modifications se traduit par un modèle comportant 130 000 mailles de calcul réparties en :

- 109 colonnes entre les abscisses 350 et 1040 ;
- 94 lignes entre les ordonnées 1950 et 2670 ;
- 20 couches superposées dont 5 représentant le socle.

XXVI.6. MODIFICATIONS HYDROGEOLOGIQUES

• Perméabilité (Annexe V Figures A11 à A18)

Afin de prendre en considération des données encore non intégrées au modèle régional, quelques modifications dans les perméabilités ont été effectuées. Ces rectifications sont basées sur des mesures de terrain et n'ont qu'une influence locale :

- Pour être en accord avec les mesures recueillies par l'ANDRA à l'aplomb du site de l'Est dans le Dogger ($< 10^{-9}$ m/s), les perméabilités ont été progressivement abaissées sur une zone concentrique de 20 km, centrée sur le site, telle que K soit divisée d'un facteur 1000 au centre de la cible.
- Le Tithonien est considéré comme un semi-perméable dans le modèle régional. Or, dans l'Est, il comprend une partie aquifère à proximité des affleurements. C'est la raison pour laquelle la perméabilité de cette couche a été augmentée progressivement sur une trentaine de kilomètres autour du site, telle que K soit multipliée d'un facteur 1000 au centre de la cible.

Les premières simulations effectuées avec le modèle étendu montrent des concentrations en ^4He dans l'Est du Trias détritique gouvernées en priorité par les apports atmosphériques dérivés des affleurements susjacents du Trias non détritique. Cette observation est en désaccord avec les données géochimiques. Ainsi, la perméabilité de la partie orientale du Trias non détritique semblerait surestimée. Ce postulat est fort vraisemblable puisque les perméabilités des semi-perméables sont uniformes par couche du fait de manque de données (cf. XXVI.4). Nous avons alors divisé par un facteur 100 la perméabilité sur une zone correspondant grossièrement aux affleurements. L'ordre de grandeur des perméabilités obtenues, 10^{-11} m/s, reste cohérent avec la notion de semi-perméable associée à cette couche hydrogéologique. Un des objectifs de la confrontation de ces 2 approches, géochimique et modélisation, était d'apporter des contraintes sur les conditions hydrodynamiques du modèle, en voici un exemple.

• Diffusion :

Le moyen de transport prédominant dans les semi-perméables étant la diffusion, des coefficients de diffusion moléculaire ont été intégrés dans le modèle (cf. partie I). La valeur attribuée aux couches sédimentaires semi-perméables est de 10^{-10} m²/s. Pour tenir compte de l'augmentation de température avec la profondeur, le coefficient affecté au socle est de 5×10^{-10} m²/s.

• Faïlles :

Les failles majeures (Bray, Rouen, Sennely, Couy, et filon houiller) sont supposées transmissives (10^{-5} m²/s). Comme leur rôle s'est atténué pendant le Malm, elles sont supposées inactives sur les couches supérieures au Callovo-Oxfordien. Les failles présentes à l'Est (Vittel, Metz et similaires) ne sont modélisées comme étant actives que dans leur partie pré-triasique.

XXVI.7. LES CONDITIONS AUX LIMITES ET CONDITIONS INITIALES

En surface, toute l'eau susceptible de pénétrer dans le modèle a une concentration en ^3He et ^4He constante, égale à la quantité de ^3He et ^4He dissoute à l'équilibre dans l'eau de recharge soit, pour une température de 9°C , $2,98 \times 10^{-12}$ mole de ^3He par mètre cube d'eau et $2,13 \times 10^{-6}$ mole de ^4He par mètre cube d'eau.

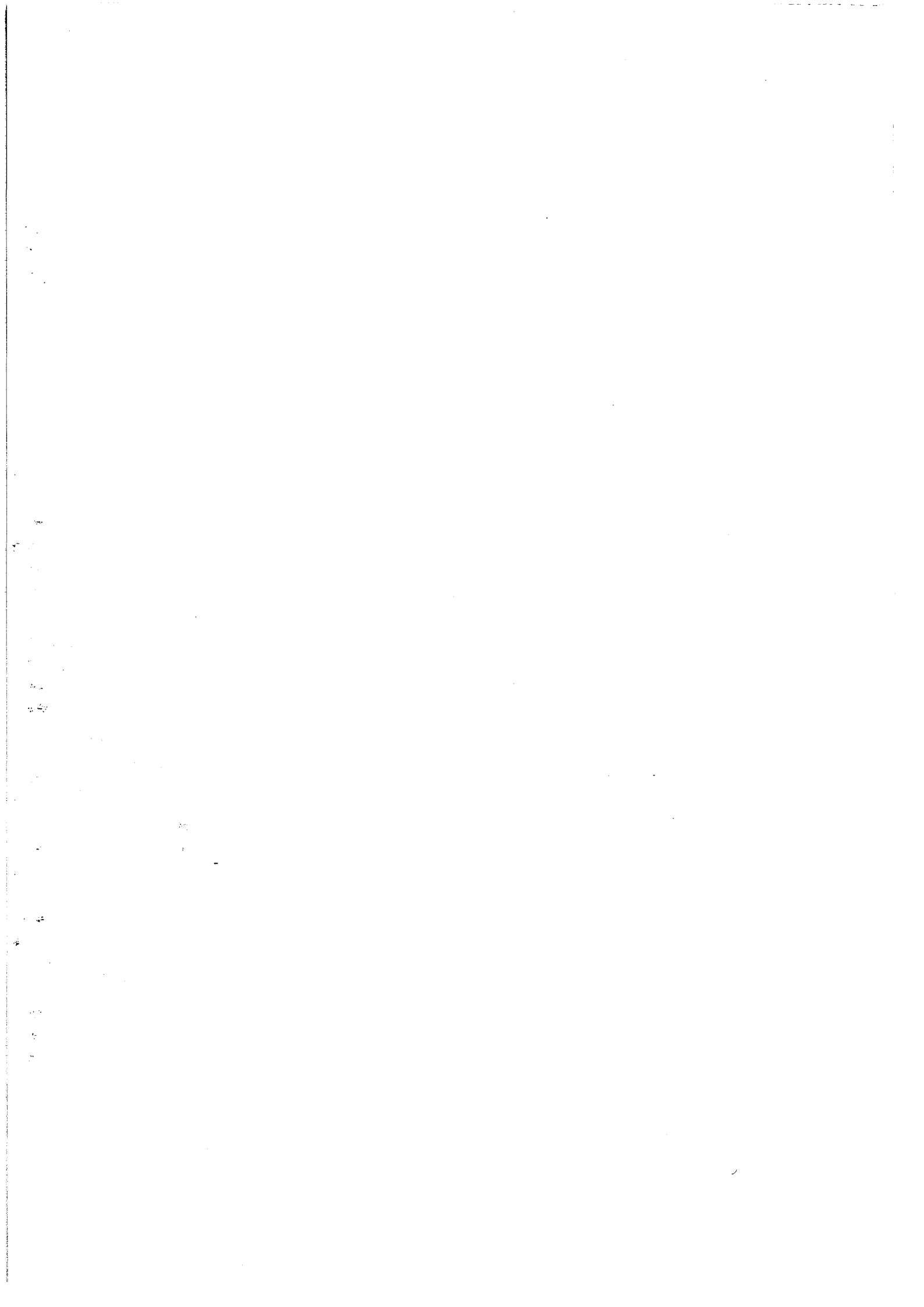
Pour chacune des 15 couches sédimentaires ainsi que les 5 niveaux du socle, un taux de production en hélium a été introduit sous forme de débit massique dans le modèle (Tableau 41). Les valeurs de taux de production en ^4He ont été calculées en fonction des teneurs moyennes en U et Th des différentes couches et celles en ^3He à partir des abondances moyennes en Li.

| Couches du modèle | N° de la couche | Taux de production en ^4He (mol/m ³ .a) | Taux de production en ^3He (mol/m ³ .a) |
|----------------------|-----------------|---|---|
| Tertiaire | 1 | 2.70×10^{-11} | 4.00×10^{-19} |
| Craie aquifère | 2 | 2.70×10^{-11} | 4.00×10^{-19} |
| Crétacé supérieur | 3 | 2.70×10^{-11} | 4.00×10^{-19} |
| Albien | 4 | 2.70×10^{-11} | 8.00×10^{-19} |
| Aptien | 5 | 2.70×10^{-11} | 4.00×10^{-19} |
| Néocomien | 6 | 1.00×10^{-10} | 8.00×10^{-19} |
| Tithonien | 7 | 2.70×10^{-11} | 4.00×10^{-19} |
| Kimméridgien | 8 | 2.70×10^{-11} | 8.00×10^{-19} |
| Oxfordien calcaire | 9 | 2.70×10^{-11} | 4.00×10^{-19} |
| Callovo-Oxfordien | 10 | 1.00×10^{-10} | 4.00×10^{-19} |
| Dogger calcaire | 11 | 2.70×10^{-11} | 8.00×10^{-19} |
| Lias | 12 | 1.00×10^{-10} | 4.00×10^{-19} |
| Rhétien | 13 | 2.70×10^{-11} | 4.00×10^{-19} |
| Trias non détritique | 14 | 2.70×10^{-11} | 4.00×10^{-19} |
| Trias détritique | 15 | 2.70×10^{-11} | 2.40×10^{-19} |
| Socle 1 à 5 | 16 à 20 | 1.08×10^{-10} | 4.56×10^{-18} |

Tableau 41 : Taux de production en hélium pour les différentes couches hydrogéologiques.

Le modèle travaille en régime hydraulique permanent et en régime transitoire sur une période de 100 Ma pour le transport. Bien entendu, il aurait été préférable que le modèle soit en régime transitoire également pour l'hydraulique et la géométrie (formations âgées de moins de 100 Ma), mais cela demandait des modifications trop importantes et dépassait le cadre de cette étude.

L'échelle de temps utilisée pour le transport ne correspond pas à une situation réelle. Il est clair que les écoulements il y a 100 Ma n'ont aucun point commun avec ceux qui prévalent actuellement. En fait, cette longue période est un artefact, qui permet de rendre compte de l'accumulation radiogénique dans les différentes couches du bassin. A la date $t = 0$, une teneur en hélium nulle pour l'ensemble des couches sédimentaires du modèle est imposée. Les mailles de surface ont une concentration initiale égale à l'ASW ($^3\text{He} = 2,98 \times 10^{-12}$ mol/m³ d'eau et $^4\text{He} = 2,13 \times 10^{-6}$ mol/m³ d'eau). Le socle, quant à lui, a une concentration initiale en ^4He de 2 mol/m³ correspondant à la différence entre l'accumulation radiogénique dans le socle et sa diffusion vers les niveaux supérieurs durant 150 Ma.



Chapitre XII : Modélisation de la répartition des isotopes de gaz rares avec le modèle hydrodynamique du Bassin Parisien

XXVII. LES RESULTATS DE MODELISATION

Les abondances en ^3He , ^4He et les rapports isotopiques $^3\text{He}/^4\text{He}$ disponibles étant principalement associés aux aquifères de l'Albien (Pik et al., 1998, Marty et al., 1993), du Dogger et du Trias (Marty et al., 1988 et 1993 ; Pinti and Marty, 1997 et 1998 ; Dewonck et Marty, 1997), les résultats des simulations ont été principalement analysés pour ces trois formations.

Pour l'ensemble de ces trois niveaux, les paramètres hydrodynamiques et géochimiques décrits précédemment permettent de reproduire de façon satisfaisante les distributions d'hélium-4 et d'hélium-3 mesurées, l'écart entre les mesures et le modèle n'excédant pas un facteur 2 dans la majorité des cas. Nous avons, par ailleurs, vérifié que les mesures disponibles dans d'autres aquifères (Tithonien, Néocomien, Keuper) étaient elles aussi en adéquation avec le modèle.

Pour certains forages, les écarts détectés entre les valeurs modélisées et les mesures de terrain peuvent atteindre un à deux ordres de grandeur. Ces différences s'expliquent probablement par la topographie locale, qui ne serait pas assez finement rendue dans certaines zones fortement « chahutées ». En effet, la taille des mailles étant de 10 x 10 km, des variations d'un ordre de grandeur dans les mesures peuvent être observées pour des forages situés dans la même maille.

Le parallélisme entre la répartition modélisée des isotopes de gaz et les mesures de terrain (chiffres en noir sur les figures) pour les différentes couches aquifères est valorisé sous forme de cartes, dont les plus représentatives sont reproduites dans la section suivante.

La robustesse du modèle vis-à-vis de différents paramètres aussi bien hydrogéologiques (perméabilité, porosité, failles, temps de modélisation) que géochimiques (concentration des mailles en surface, taux de production, coefficients de diffusion) a été éprouvée à l'aide de tests de sensibilité qui sont discutés paragraphe XXX.

XXVIII. CONFRONTATION ENTRE LE MODELE ET LA GEOCHIMIE DE L'HELIUM-4

XXVIII.1. ALBIEN

Dans l'aquifère de l'Albien, la distribution des concentrations mesurées en hélium-4 le long de la ligne d'écoulement au départ des affleurements du Sud-Est et jusqu'au centre de la région parisienne (Figure 111 haut), permet de distinguer trois zones :

- A la limite Sud-Est d'affleurement des sables (Dracy), les concentrations sont proches de la valeur fixée par l'eau de recharge ($2.13 \times 10^{-6} \text{ mol/m}^3$) et caractérisent des eaux jeunes n'ayant pas encore accumulé d'hélium radiogénique.
- Une deuxième zone, située entre Montargis et Fontainebleau, présente des valeurs qui augmentent progressivement ($3 - 25 \times 10^{-5} \text{ mol/m}^3$), traduisant l'enrichissement en ^4He de l'aquifère. Ceci s'explique par la production radiogénique in-situ. Plus les eaux s'éloignent de la zone de recharge, plus leur temps de résidence est élevé et plus elles se chargent en ^4He .
- Une troisième zone, au Nord-Ouest de Paris, est caractérisée par des concentrations en ^4He de l'ordre de $1 - 3 \times 10^{-4} \text{ mol/m}^3$. Ces valeurs ne peuvent pas s'expliquer par l'augmentation de la seule production radiogénique in-situ dans l'aquifère. Si l'on considère une production radiogénique dans l'Albien de $2.7 \times 10^{-11} \text{ mol/m}^3_{\text{roche}} \cdot \text{an}$ et un temps de résidence de 10^4 à 10^5 ans pour ces eaux (Raoult, 1998), les concentrations maximum mesurées devraient être de l'ordre de $2.7 - 27 \times 10^{-6} \text{ mol/m}^3$ eau. Ces eaux sont donc brusquement enrichies en ^4He d'un facteur 10 à 100. Un tel excès semble être causé par une injection d'eau provenant du Néocomien (Pik et al., 1998) et des aquifères sous-jacents. La Figure 100 reflétant les trajectoires inverses (détermination de la trajectoire à partir de son point d'arrivée dans l'Albien) met en évidence les transferts hydrodynamiques entre les couches. Comme nous n'avons pas considéré les pompages drastiques effectués dans l'Albien sous la région parisienne (rabattement de la nappe sur 200 km de diamètre environ avec 100 m de rabattement au centre du cône de dépression), il est logique de considérer que l'ampleur des transferts hydriques entre le Néocomien et l'Albien est plus importante que celle modélisée.

Les temps de résidence moyens des eaux albiennes ont été calculés en supposant un transport par convection pure avec une porosité cinématique de 10% (Figure 101). Les valeurs passent de 1 000 ans près des affleurements du S-E à plusieurs dizaines de milliers d'années au centre du bassin. Ces âges hydrodynamiques sont en accord avec les âges ^{14}C (0 – 30 000 ans : Raoult et al., 1998).

Les vitesses de circulation estimées pour une porosité cinématique uniforme de 10% (Figure 102) indiquent que le calage du modèle est satisfaisant puisque ces valeurs coïncident avec celles calculées à partir de la loi de Darcy, et des mesures (3 m/a) par Raoult et al. (1998).

La modélisation montre que la partie Est de l'Albien concentrerait des eaux riches en ^4He ($10 - 50 \times 10^{-4} \text{ mol/m}^3$), ce qui laisse supposer des circulations d'eau très lentes. Cette observation n'a pas pu être vérifiée par des mesures par manque de forages dans cette zone. Toutefois, en plus des valeurs le long de la ligne d'écoulement, des points épars, au sud de Chartres ($98 \times 10^{-6} \text{ mol/m}^3$) et à l'Est de Tours ($357 \times 10^{-6} \text{ mol/m}^3$), montrent une bonne cohérence avec le modèle. Cette adéquation tenderait à confirmer les vitesses réduites estimées dans la partie orientale de l'aquifère.

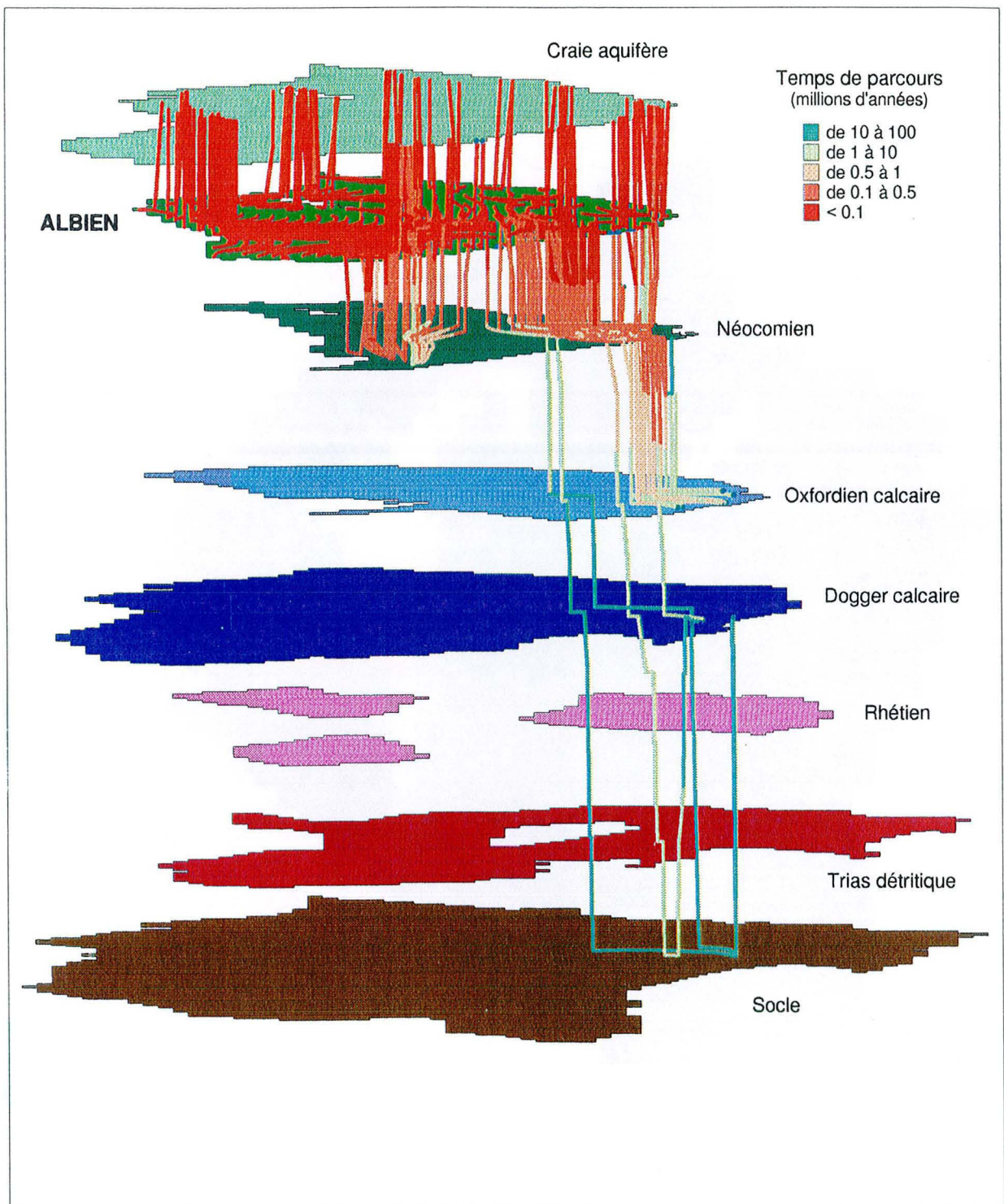


Figure 100 : Trajectoires inverses à partir de l'Albien.

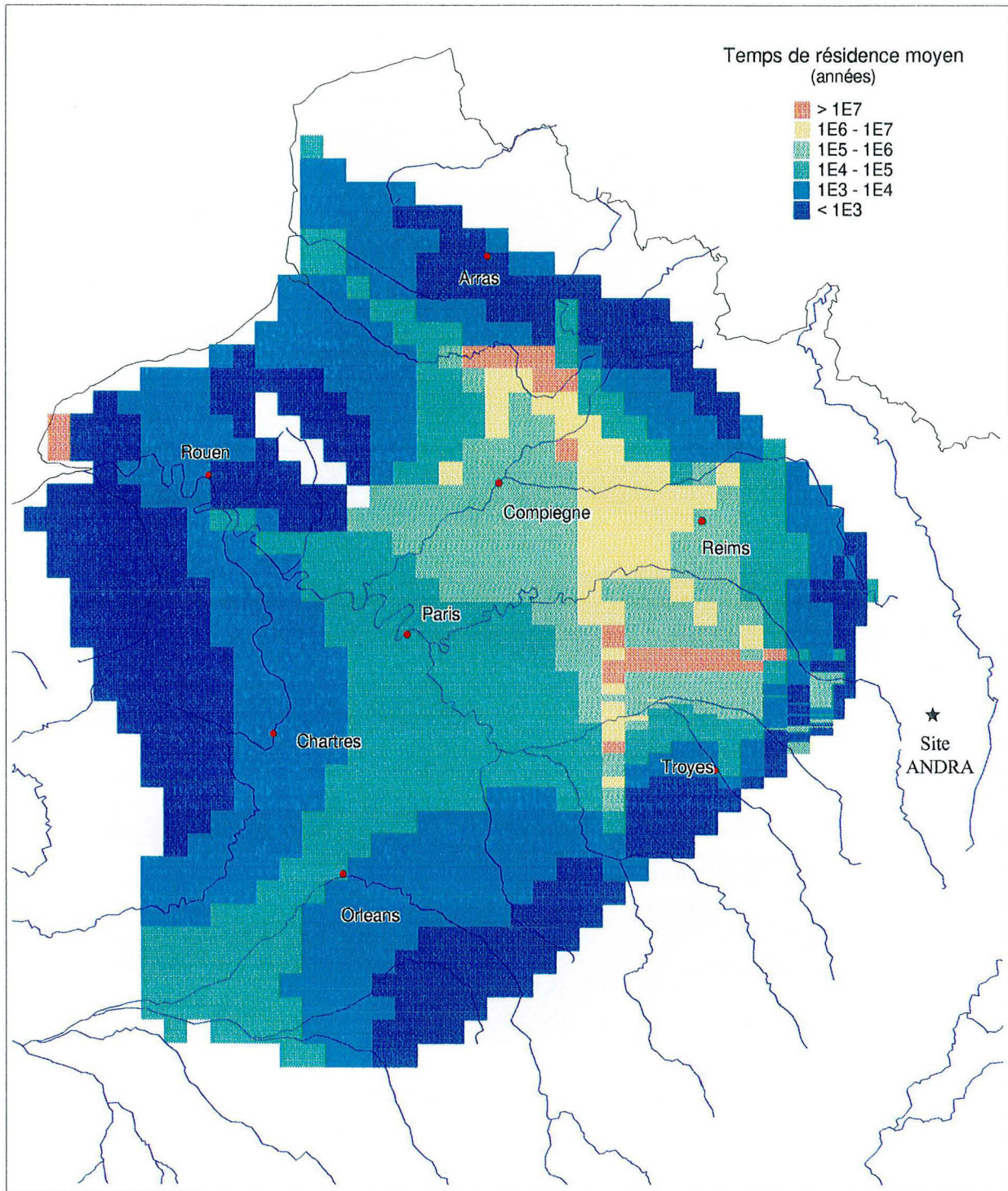


Figure 101 : Temps de résidence moyens des eaux albiennes calculés en supposant un transport par convection pure et une porosité cinématique de 10%.

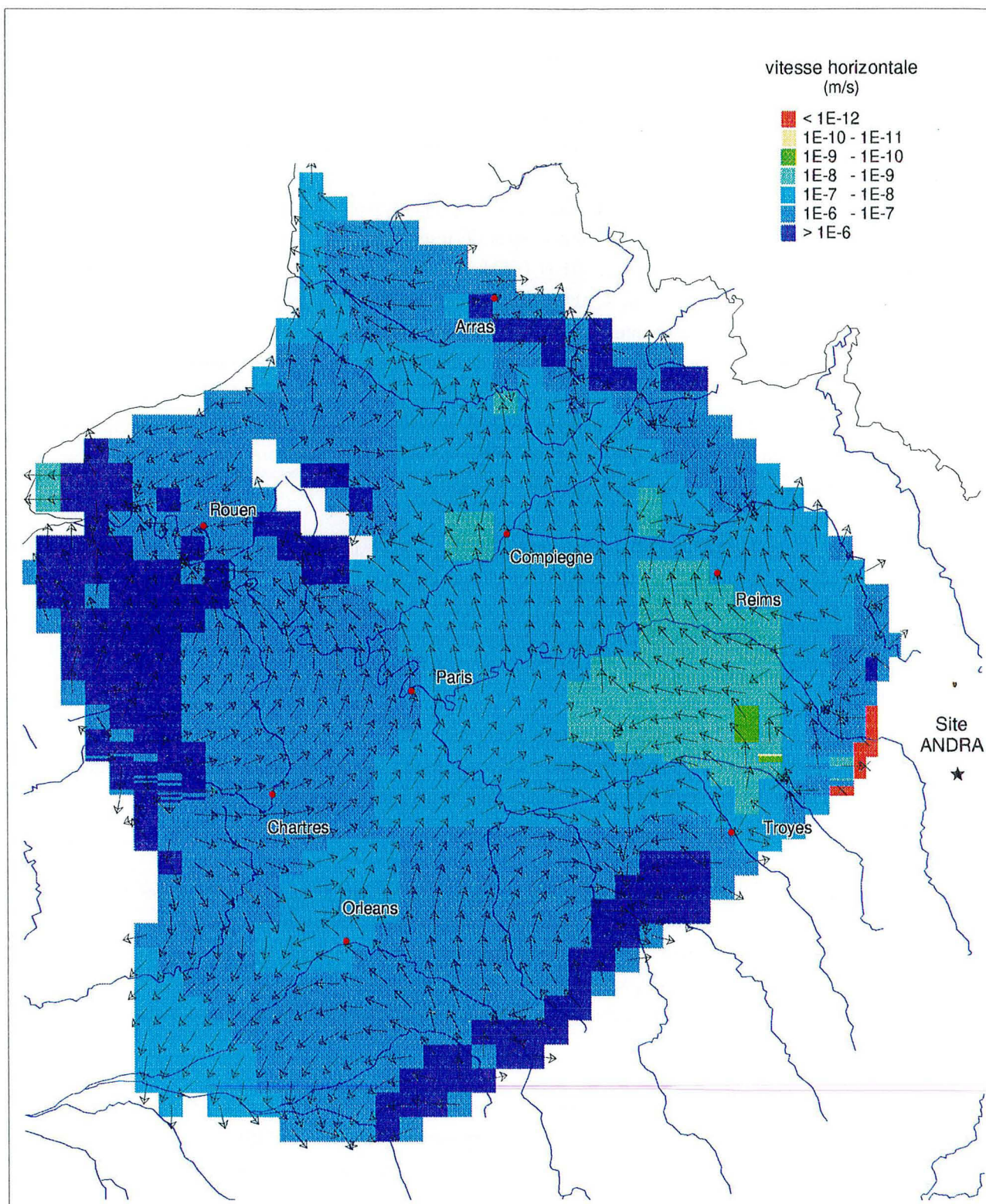


Figure 102 : Vitesses de circulation dans l'Albien calculées pour une porosité cinématique de 10%.

XXVIII.2. DOGGER

Les temps de résidence moyens calculés dans le Dogger calcaire pour des conditions identiques à celles considérées dans l'aquifère de l'Albien (Figure 103) sont globalement en accord avec les valeurs modèles obtenues dans le centre du Bassin (4 ± 2 Ma, Marty et al., 1993). A noter qu'aux alentours du site, les âges des eaux seraient du même ordre de grandeur qu'au centre du bassin, voire supérieurs.

Les temps de résidence élevés obtenus dans l'Est s'expliquent par les faibles perméabilités mesurées au droit du site (Annexe V Figure A16). Différents types de tests (pompage, simple et double obturateur) réalisés sur 2 forages distants de 15 km (MSE 101 et HTM 102), indiquent des perméabilités comparables à celles d'une argile de surface (10^{-13} m/s $< K < 10^{-9}$ m/s). Ces valeurs sont de 4 ordres de grandeur inférieures à celles mesurées lors d'essais géothermiques à l'Ouest de Reims. L'origine de cette brusque diminution des perméabilités n'est pas clairement identifiée, d'autant qu'à notre connaissance, aucune théorie ne permet de généraliser ce phénomène à l'ensemble de l'Est du Bassin Parisien. Une hypothèse avancée est la recristallisation régionale des calcaires à cet endroit (ANDRA, 1996). Ce processus devrait entraîner une modification de la composition isotopique en oxygène ($\delta^{18}\text{O}$ moins négatif) des eaux du MSE 101. Or, les analyses ne signalent aucun échange significatif avec les carbonates.

Si les mesures de perméabilité reflètent bien la réalité (10^{-9} – 10^{-10} m/s étant des valeurs proches de la limite physique de ce type de méthodes), les vitesses de circulation sont très lentes (Figure 104 : $\leq 3 \times 10^{-4}$ m/a) et les temps de résidence très longs (≥ 1 Ma ; Figure 103) à l'aplomb du site. Ces valeurs sont très inférieures à celles estimées dans le centre du bassin (0.33 m/a - Wei et al., 1990 ; 0.04 m/a - Marty et al., 1993 ; 0.05 – 0.2 m/a - Pinti and Marty, 1993 ; 0.05 m/a - Menjoz et al., 1993).

Les isotopes stables, δD et $\delta^{18}\text{O}$, témoignent d'une recharge antérieure aux dernières glaciations du Quaternaire. De plus, les teneurs en hélium permettent de calculer un âge de l'ordre de 1 Ma en considérant un flux exogène de ^4He de 2×10^{-7} mol/m². an. Ainsi, les arguments géochimiques vont dans le sens des âges déterminés par le modèle.

Le flux exogène de He est supposé provenir d'un mélange entre des eaux anciennes et des eaux plus récentes issues de la recharge. Deux mécanismes sont alors envisageables : Les eaux anciennes proviennent i) d'une partie plus confinée de l'aquifère qui renfermerait des eaux stagnantes, ii) de remontées d'eaux profondes. Les trajectoires inverses au départ du Dogger (Figure 105) corroborent la seconde hypothèse car elles montrent que des eaux en provenance du socle, donc nettement plus âgées, peuvent être injectées dans le Dogger.

Enfin, un ordre de grandeur de différence est observé entre le centre et l'Est du bassin sur les abondances en ^4He et le rapport $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$, ce qui laisse supposer que les eaux du MSE 101 sont anciennes, mais pas autant que celles de la région parisienne. Par conséquent, les mesures de perméabilité pourraient être quelque peu sous-estimées, ou encore que la zone circulaire de 20 km centrée sur le site surestimée, bien que globalement l'âge proposé par le modèle est dans une gamme englobant celui issu des abondances en hélium.

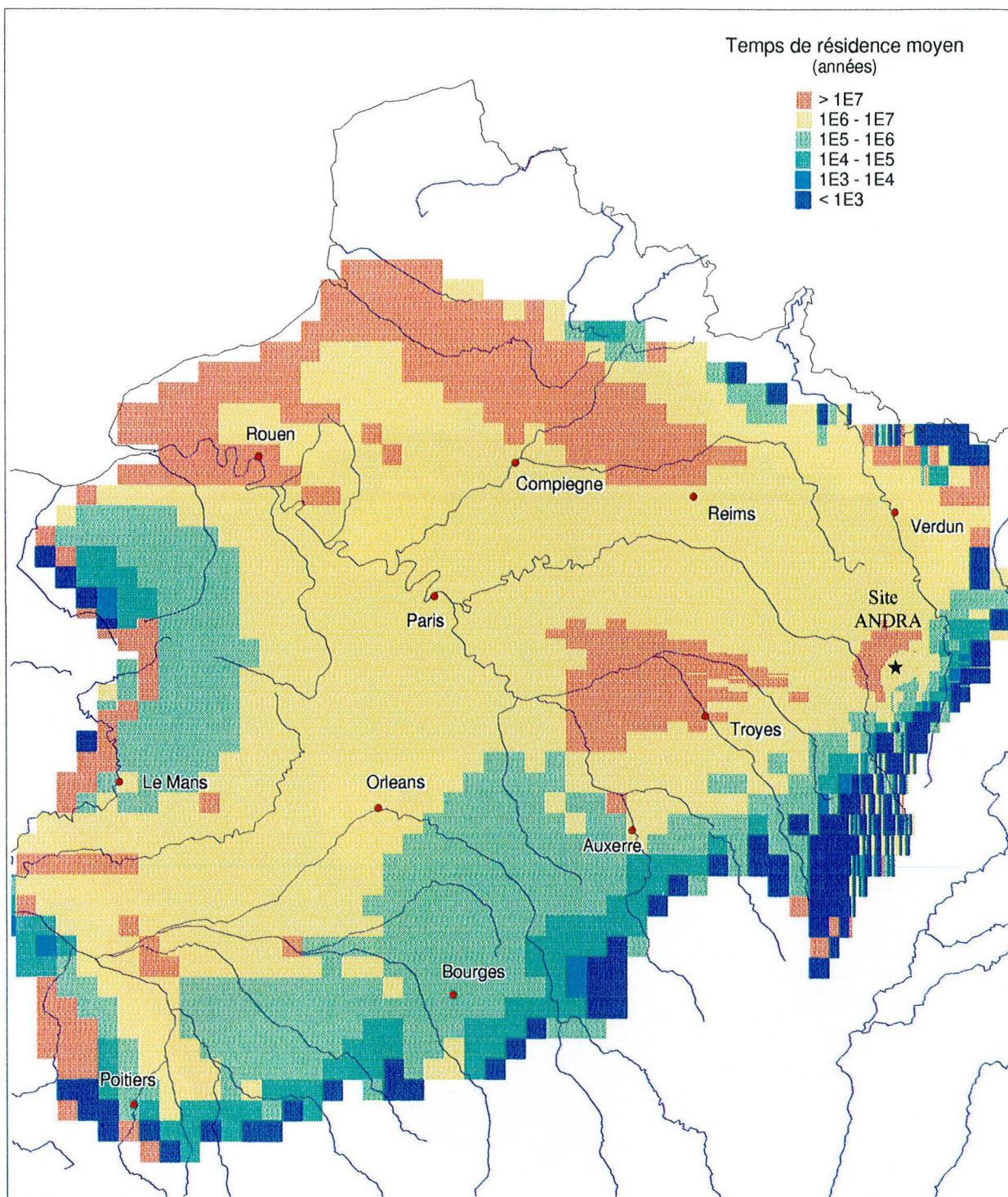


Figure 103 : Temps de résidence moyens dans le Dogger calculés en supposant un transport par convection pure et une porosité cinématique de 10%.

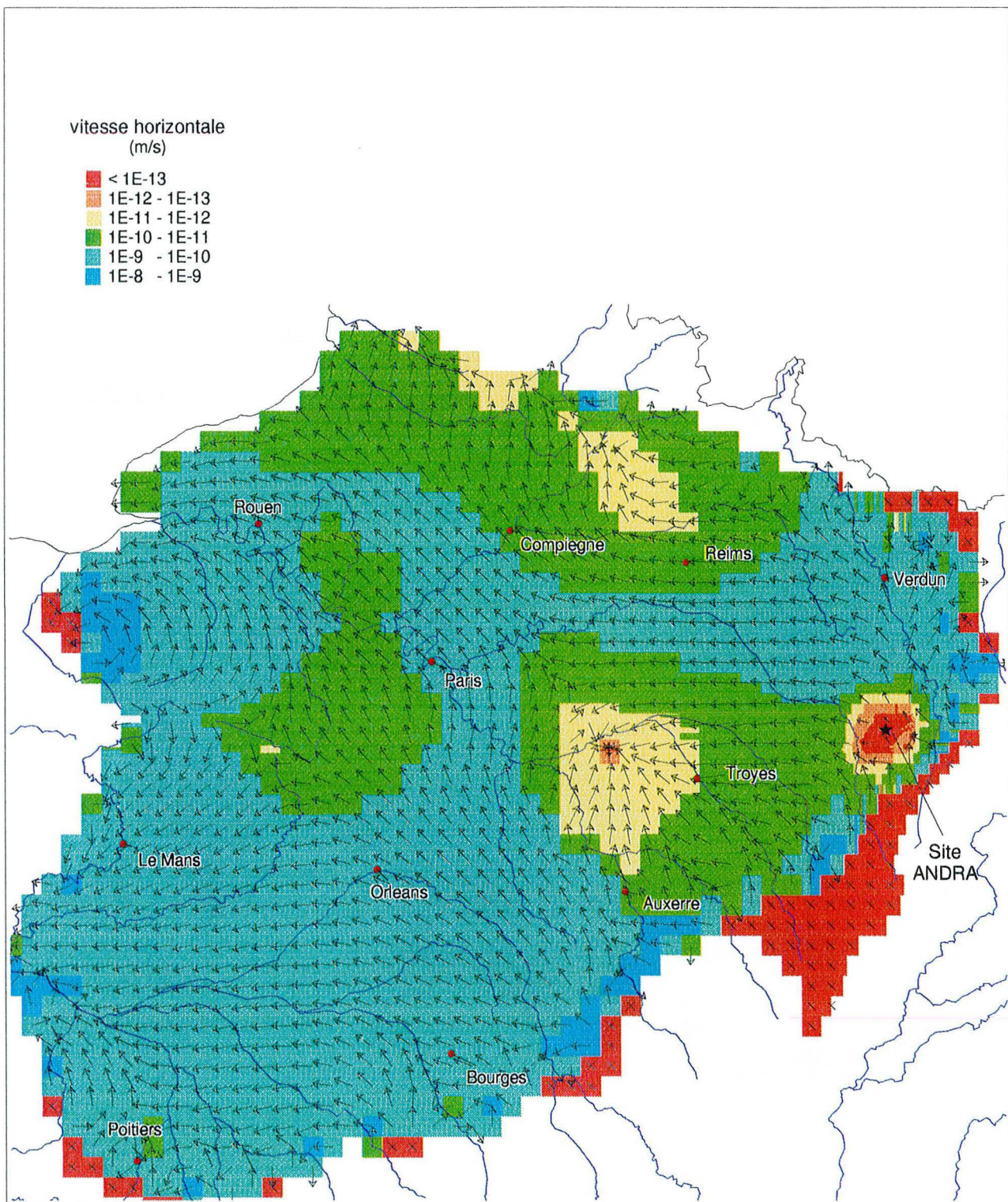


Figure 104 : Champs de vitesse de circulation dans l'aquifère du Dogger.

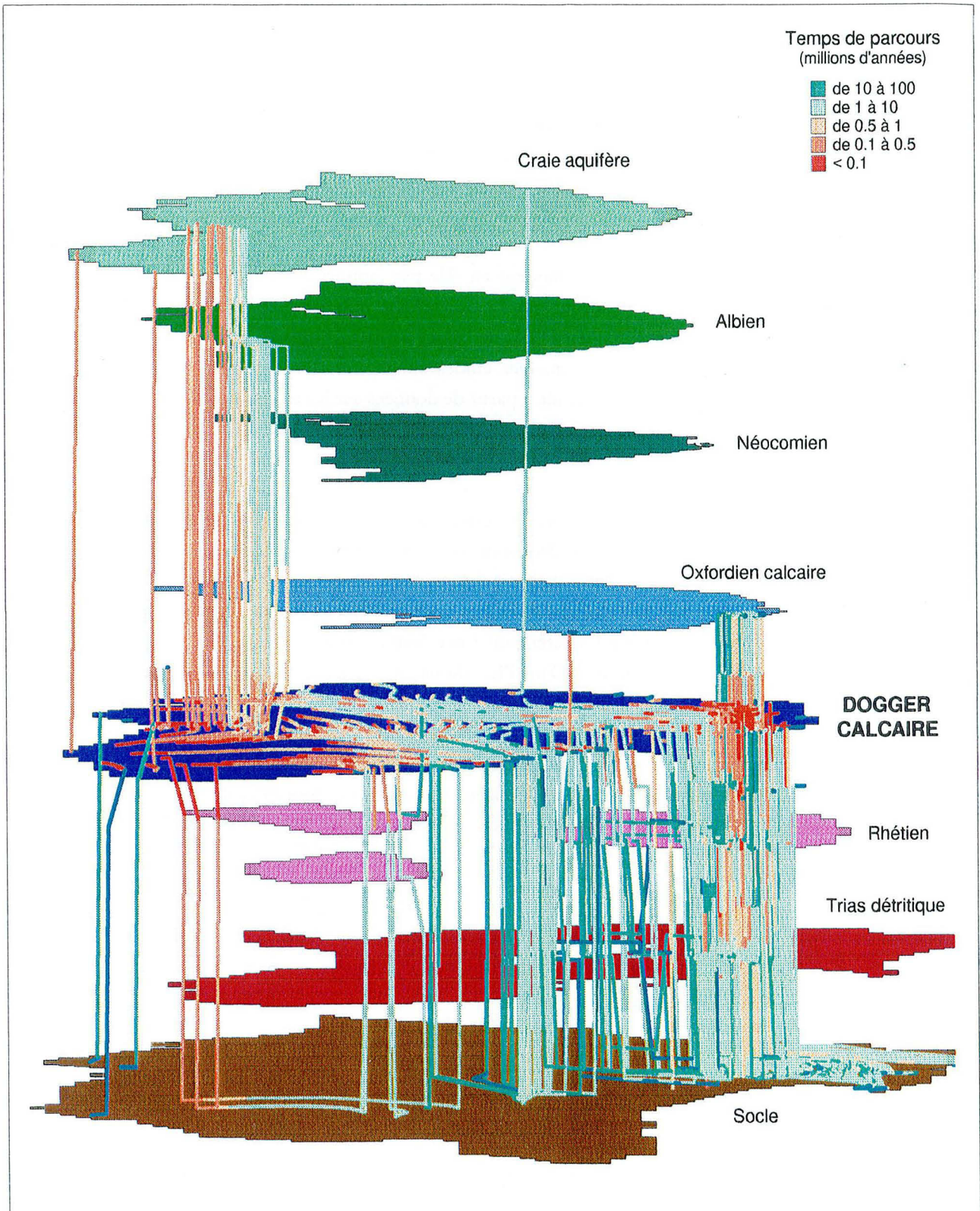


Figure 105 : Trajectoires inverses au départ du Dogger calcaire.

XXVIII.3. TRIAS

Les temps de résidence dans le Trias détritique (Figure 106) sont très élevés dans sa partie N-E et N-O (supérieurs à 10^7 années). Ils atteignent 10 à 100 000 ans dans sa partie E / S-E et sont en accord avec les âges ^{14}C (20-30 000 ans). Toutefois, cette zone devrait être un peu plus étendue vers l'Ouest pour correspondre complètement aux données géochimiques. Dans le centre du bassin, les eaux du Trias non détritique (Keuper) pourraient avoir plusieurs dizaines de millions d'années (Pinti et Marty, 1997). Ces résultats géochimiques (déduits des paléotempératures de recharge) sont cohérents avec les temps de résidence proposés par le modèle.

L'enrichissement de 2 à 3 ordres de grandeur en ^4He par rapport à la production in situ des eaux triasiques prouve qu'une majorité de l'hélium est "exotique" (= non produit dans l'aquifère). L'étude géochimique (abondance en ^4He et âge ^{14}C) dans l'Est du bassin permet de calculer des flux de ^4He entrant à la base du Trias de l'ordre de 10^{-5} mol/m². an. Des études antérieures (Pinti, 1993 ; Marty et al. 1993), proposent un flux de $1-2 \times 10^{-7}$ mol/m². an calculé à partir de données sur les eaux du centre du bassin. Cette différence s'explique si le bassin reçoit des apports de fluides profonds plus importants dans sa partie Est que dans sa partie centrale.

Le flux moyen entrant à la base du Trias détritique sur la totalité du bassin est estimé à 1.6×10^{-7} mol/m². an avec le modèle. Cette valeur est en adéquation avec celui proposé par Marty et al. (1993).

Les temps de résidence dans le Trias non détritique sont plus élevés que dans le Trias détritique bien que cette strate géologique soit de formation postérieure. Ceci s'explique par le fait que les perméabilités sont plus faibles ce qui allonge les temps de transit. Dans l'Est du bassin, les temps de résidence calculés s'étalent de 10^5 à 10^6 ans.

Dans le Trias détritique, le modèle propose des vitesses de circulation comprises entre 3.1 (près des affleurements) à 0.03 m/a (au niveau de St Dizier) pour les eaux circulant dans l'Est du bassin (Figure 107). Les vitesses calculées à partir des âges ^{14}C sont du même ordre de grandeur.

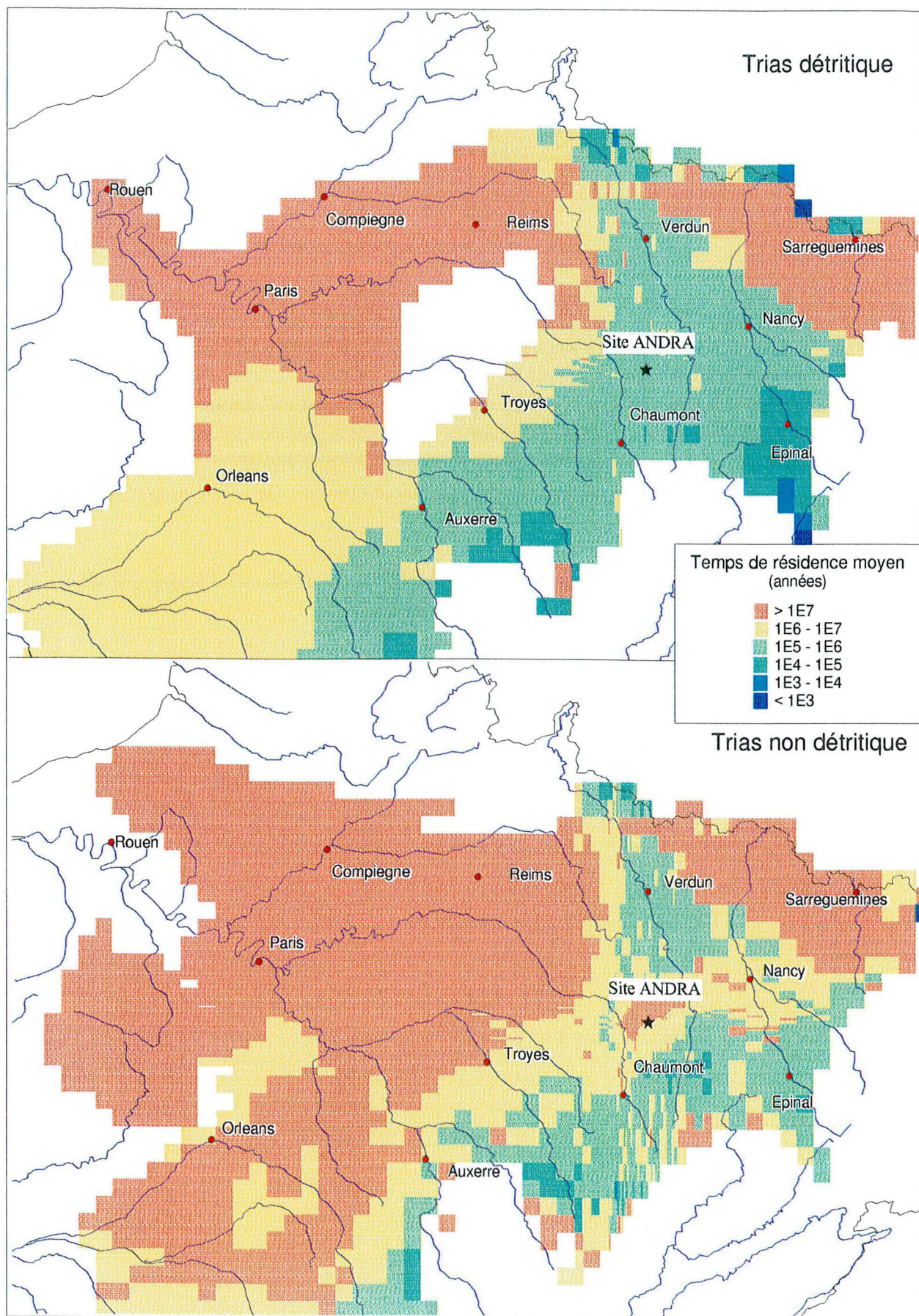


Figure 106 : Temps de résidence des eaux dans le Trias détritique et non détritique.

XXIX. CONFRONTATION ENTRE LE MODELE ET LA GEOCHIMIE POUR L'HELIUM-3**XXIX.1. DANS LE TRIAS**

L'enrichissement en ^3He par rapport à la production radiogénique in situ, révélé par l'étude géochimique dans les eaux circulant dans la partie orientale du Trias (XX.3), peut s'expliquer de 2 manières :

- diffusion préférentielle de ^3He nucléogénique extrait des horizons sous-jacents (Castro, 1995 ; Castro et al., 1998) ;
- contribution de ^3He mantellique.

Pour tester ces hypothèses, une première simulation numérique a été réalisée en affectant un débit massique en ^3He nul dans les zones correspondant aux roches à caractère magmatique repérées au toit du socle (Figure 99). Les teneurs en ^3He modélisées sont alors de 10 à 20 fois inférieures à celles mesurées dans l'Est du bassin (Figure 108a). Il faudrait affecter à ^3He un coefficient de diffusion moléculaire supérieur de 10 à 20 fois à celui de ^4He pour parvenir à une bonne cohérence entre modèle mathématique et mesures de terrain. Cet écart ne semble pas rationnel et exclut l'hypothèse d'une diffusion préférentielle de ^3He nucléogénique. A fortiori, la différence de 13% entre coefficient de diffusion moléculaire de ^4He et ^3He proposée par Castro (1995), ne suffirait pas dans ce modèle.

Ce constat conduit à prendre en considération une contribution d'hélium-3 d'origine mantellique, en accord avec les conclusions géochimiques présentées au chapitre X.

Le modèle nous a permis de quantifier les flux extraits de ces zones magmatiques : Ils seraient de l'ordre de 2×10^{-15} mol $^3\text{He}/\text{m}^3$. an dans les zones magmatiques récentes et de 8×10^{-17} mol/ m^3 . an dans les zones magmatiques anciennes. Ce calage aboutit à un bon accord entre valeurs simulées et mesurées (Figure 108b). De plus, la valeur estimée pour les zones de volcanisme récent (1.4×10^{-12} mol/ m^2 . an) concorde avec les quantités de ^3He dégazées au niveau des rides médio-océaniques (1.9×10^{-12} mol/ m^2 . an : cf. Figure 2) .

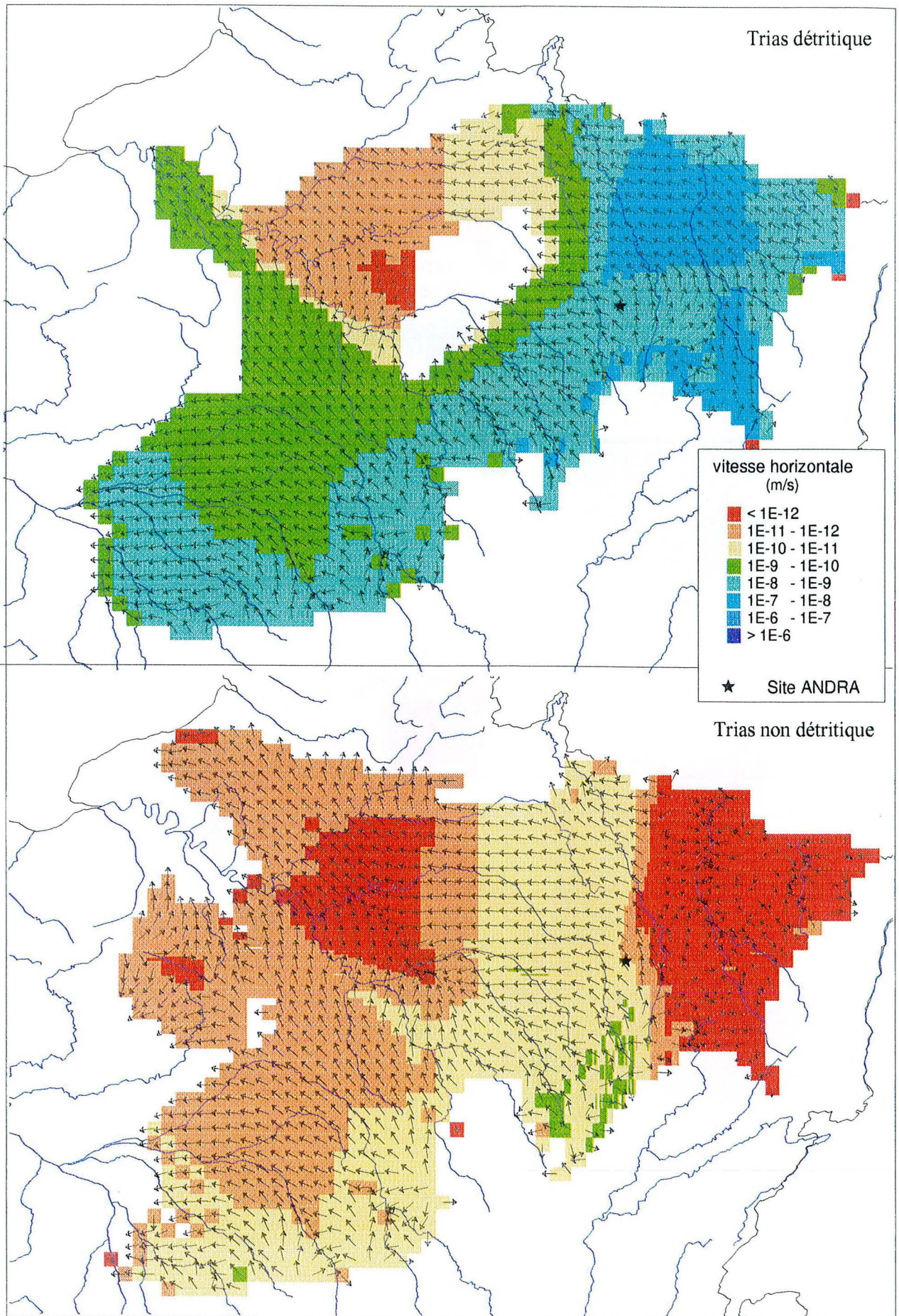


Figure 107 : Champs de vitesse de circulation dans le Trias détritique et non détritique.

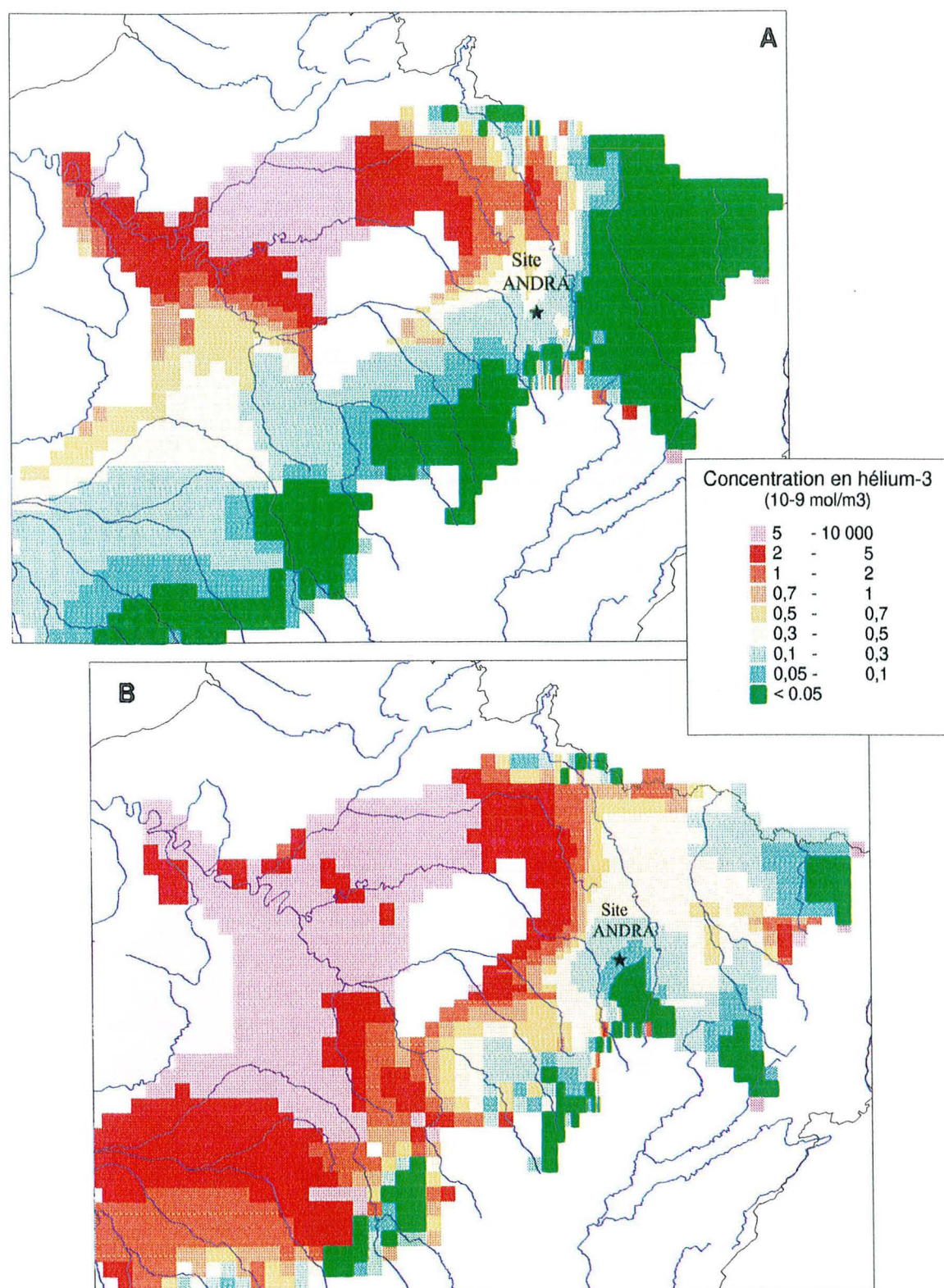


Figure 108 : Comparaison entre une simulation ignorant une contribution de ^3He mantellique (a) et une injectant des flux de ^3He mantellique à partir de zones répertoriées comme magmatiques dans le socle (b).

XXIX.2. DANS LE DOGGER

Dans la marge orientale du bassin, les valeurs $^3\text{He}/^4\text{He}$ dans l'aquifère du Dogger sont dans leur globalité inférieures à 0.05 Ra (Figure 109a), c'est-à-dire légèrement supérieures à celles attribuées à une production purement radiogénique ($R/R_a < 0.02$). En revanche, toujours dans l'Est du bassin, les rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ dans l'aquifère du Trias sont de l'ordre de 0.3 Ra (Figure 109b). Cette différence entérine l'hypothèse, déjà formulée lors de l'étude des données géochimiques (cf. XXIII), que l'hélium-3 d'origine mantellique détecté dans le Trias n'a pas encore atteint le Dogger. Par conséquent, les cinétiques de transfert entre les 2 aquifères doivent être très lentes, ce qui conforte les argiles du Lias, formation intermédiaire, dans leur rôle d'isolant.

XXIX.3. DANS L'ALBIEN

Les rapports isotopiques modélisés dans l'Albien sont de 2 types (Figure 110) :

- i) purement radiogéniques (valeur de l'ordre de 0.02 ou inférieur) au centre du bassin ;
- ii) composés d'un mélange entre un pôle atmosphérique et un second radiogénique entre les affleurements et la région parisienne.

Aucun apport d'hélium d'origine mantellique n'est mis en évidence dans cet aquifère. Ces observations sont en accord avec les interprétations géochimiques.

XXX. VALIDITE DU MODELE

Pour apprécier la robustesse du modèle vis-à-vis de paramètres géochimiques et hydrologiques, une série de tests de sensibilité a été réalisée sur la base de la simulation détaillée précédemment :

a) Concentration en surface :

Toute maille affleurante se voit imposer une concentration en hélium-4 fixe, correspondant à la quantité de ^4He dissoute à l'équilibre (Air Saturated Water) au niveau de la zone de recharge. Cette valeur dépend de la température au sol. Le Tableau 42 montre que la variation de concentration en ^4He avec la température est un processus qui affecte peu l'hélium, par comparaison à l'argon. Entre des eaux à 25°C (compatible avec des eaux d'âge pré-Quaternaire) et à 9°C (température de recharge actuelle), il apparaît 4% de variations. L'influence de ce paramètre peut être considérée comme mineure pour le modèle.

| Température (°C) | Nombre de mole de gaz rares dissous par m ³ d'eau | | | |
|------------------|--|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| | ^3He | ^4He | ^{20}Ne | ^{40}Ar |
| 2 | 3.08×10^{-12} | 2.20×10^{-6} | 9.06×10^{-6} | 2.10×10^{-2} |
| 9 | 2.98×10^{-12} | 2.13×10^{-6} | 8.43×10^{-6} | 1.77×10^{-2} |
| 25 | 2.87×10^{-12} | 2.05×10^{-6} | 7.49×10^{-6} | 1.30×10^{-2} |

Tableau 42 : Quantités de gaz rares dissous dans les eaux météoriques en fonction de la température au niveau du sol.

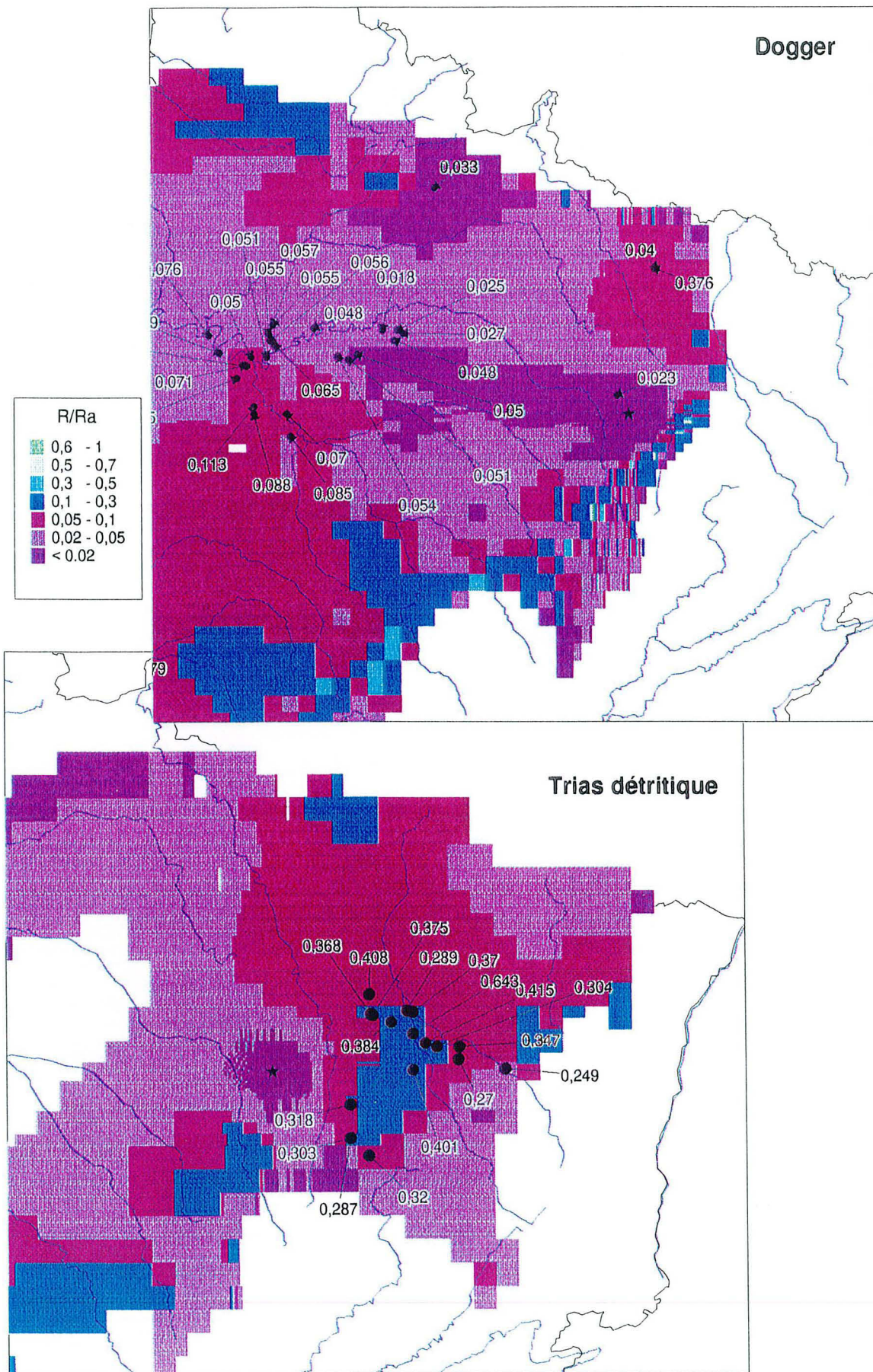


Figure 109 : Comparaison entre la répartition des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ dans le Dogger et dans le Trias de la marge orientale du bassin.

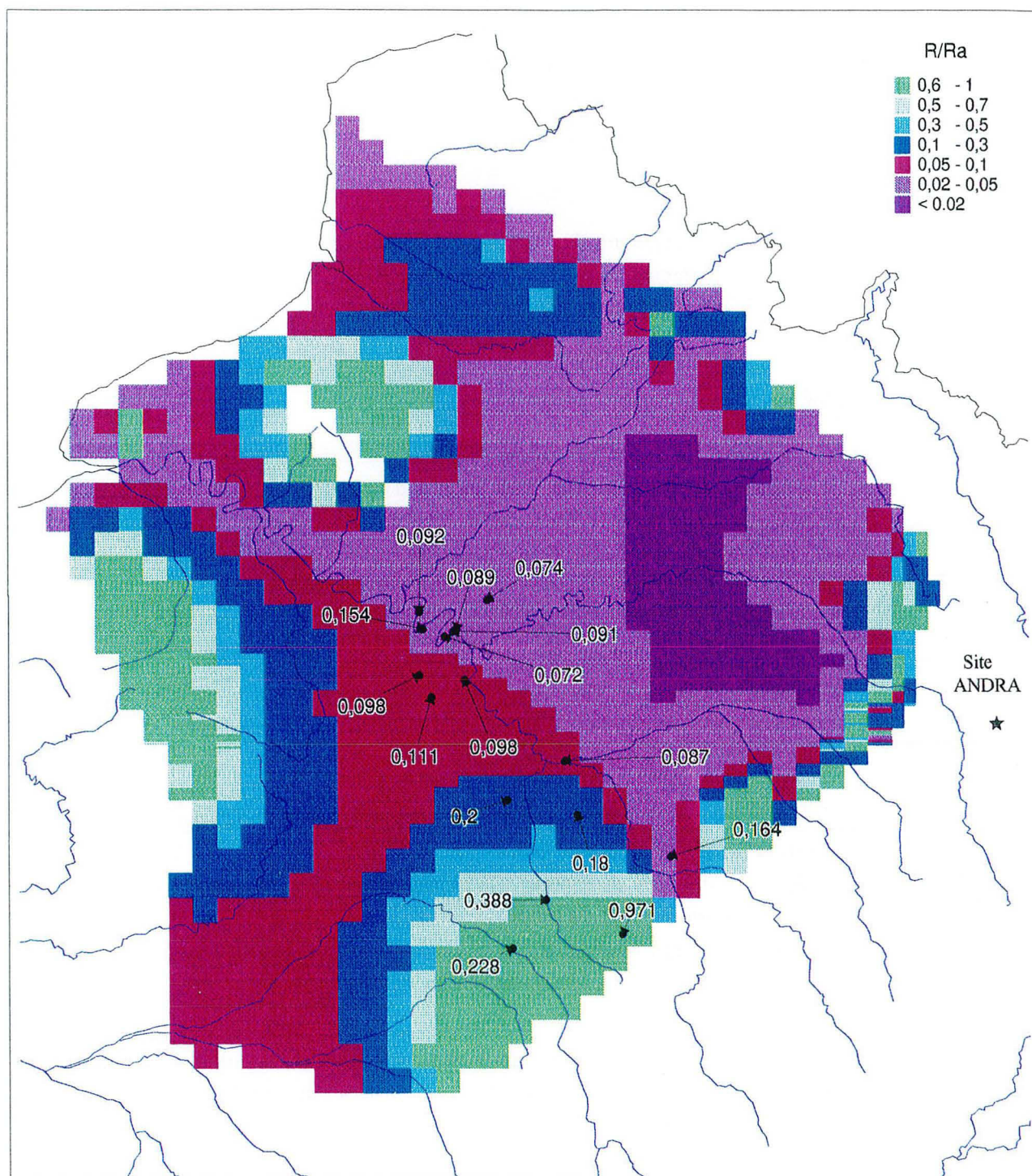


Figure 110 : Répartition des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ dans l'Albien.

b) Concentration initiale :

A l'exception des mailles affleurantes, à $t=0$, l'ensemble du modèle a une concentration initiale en hélium-4 égale à zéro. Une autre possibilité aurait été d'imposer la concentration ASW (concentration en surface) à tout le modèle. Ce changement ne serait pas significatif vu l'ordre de grandeur des concentrations observées pour l'ensemble des couches du modèle.

c) Production radiogénique :

Les concentrations en éléments parents (U, Th et Li) qui fixent les taux de production en hélium-4 et en hélium-3 sont relativement constantes en environnement sédimentaire. Par conséquent, ce paramètre n'engendre pas de variations importantes dans les résultats.

d) Diffusion, dispersivité :

L'advection est un moyen de transport négligeable dans les semi-perméables. En revanche, la diffusion moléculaire va permettre le passage progressif de l'hélium d'un semi-perméable à un aquifère. Dans le modèle, des coefficients de diffusion moléculaire de 10^{-10} m²/s ont été attribués aux couches semi-perméables et de 5×10^{-10} m²/s pour le socle. Mais, deux autres configurations ont été envisagées :

- i) La première tendait à diminuer les coefficients de diffusion (5×10^{-11} m²/s). Cette valeur a été testée car elle résulte d'une expérience réalisée sur des argilites du Callovo-Oxfordien (Rebour, 1995).
- ii) La seconde accentuait ce processus diffusif (3×10^{-9} m²/s). Ce coefficient a été déterminé à partir du coefficient de diffusion de He dans l'eau (Wise and Houghton, 1966 ; Ohsumi and Horibe, 1984) et d'un coefficient de tortuosité (Castro et al., 1998).

Avec un coefficient de 3×10^{-9} m²/s, les concentrations observées dans l'Albien sont environ 10 fois supérieures à celles mesurées (Figure 111).

La seule valeur de coefficient de diffusion déterminée expérimentalement (5×10^{-11} m²/s : Rebour, 1995) semble trop faible vu le peu de contrastes entre ces résultats et ceux obtenus sans coefficient de diffusion. De plus, cette valeur implique pour le Dogger calcaire des concentrations trop faibles au Sud-Est de Paris et trop fortes en Champagne. Dans le Trias détritique, les concentrations calculées avec cette valeur sont bien trop faibles comparées aux mesures (Figure 112).

Nous avons également considéré un troisième processus de transport : la dispersivité. Le modèle n'ayant pas convergé lors des différents essais pour des raisons de mailles trop grandes (nombre de Peclet $\gg 1$), aucune information n'a pu être tirée de ces expériences.

e) Perméabilité :

Ce paramètre influe énormément sur la distribution de gaz rares. Cependant, nous n'avons pas jugé pertinent de modifier drastiquement les perméabilités affectées au modèle existant car elles sont en partie basées sur des mesures et des études antérieures (BRGM, 1986, 1995). En outre, les variations de perméabilité peuvent être très importantes localement, mais le modèle n'est pas suffisamment sensible (mailles de 10×10 km) pour les intégrer. Par conséquent, nous avons préféré conserver des valeurs de perméabilité moyennes sur l'ensemble du modèle et effectuer de légères modifications notamment au niveau du site, pour intégrer les connaissances acquises lors des reconnaissances ANDRA.

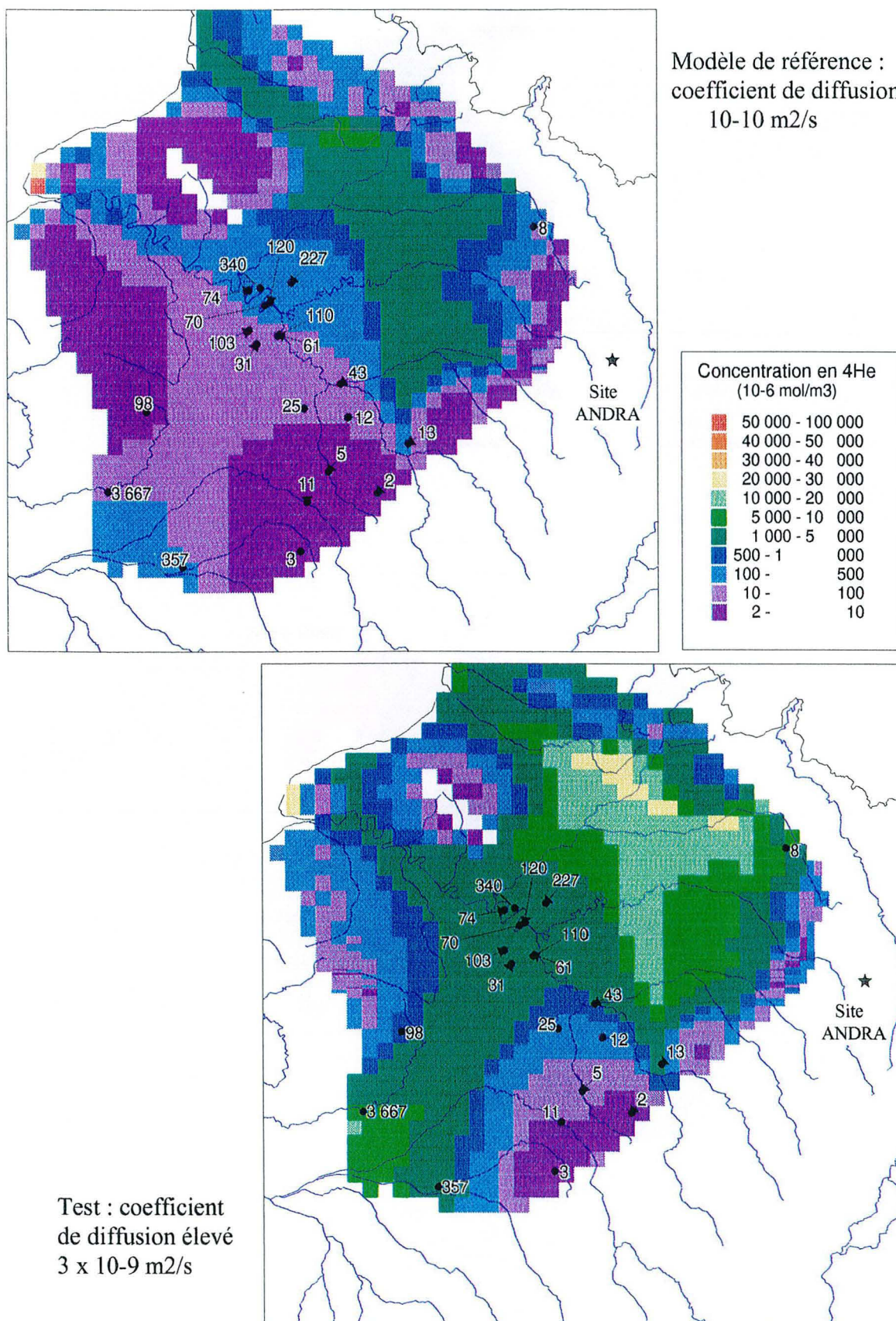


Figure 111 : Variation des concentrations en bélium-4 en fonction du coefficient de diffusion dans l'aquifère de l'Albien et comparaison avec les mesures de terrains (chiffres noirs).

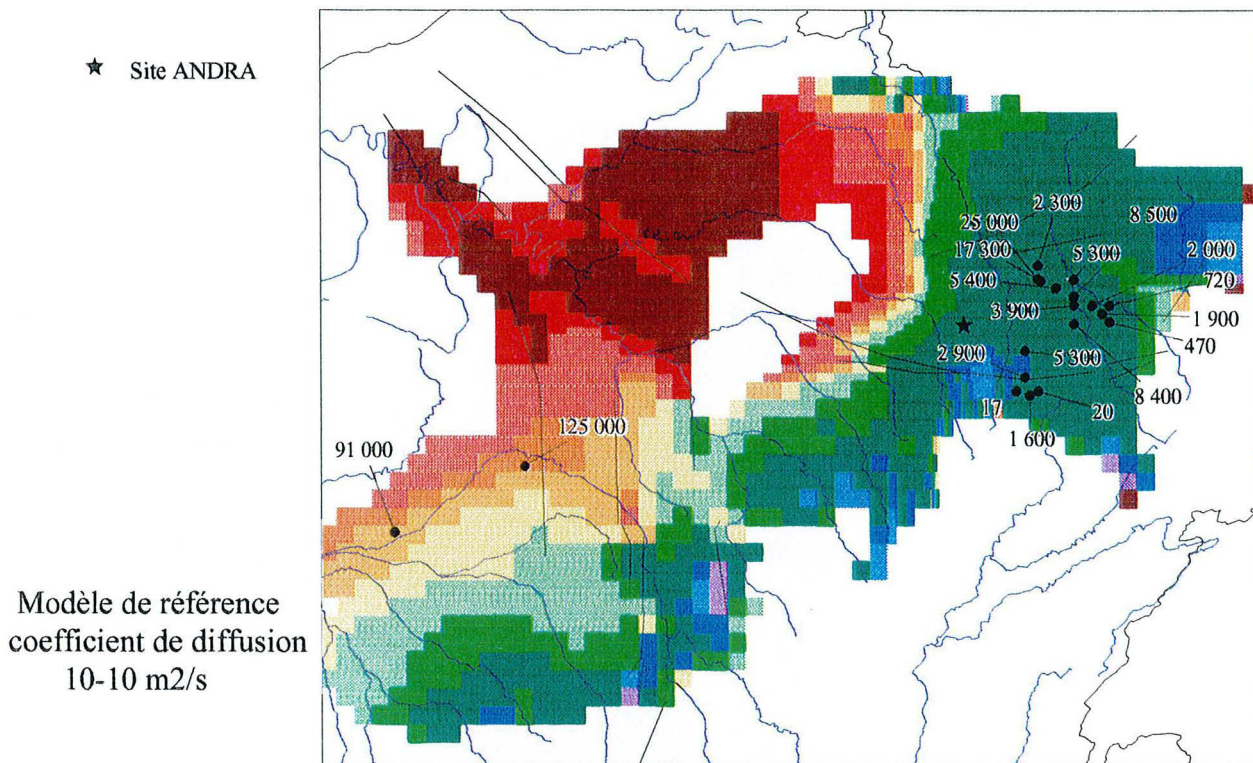
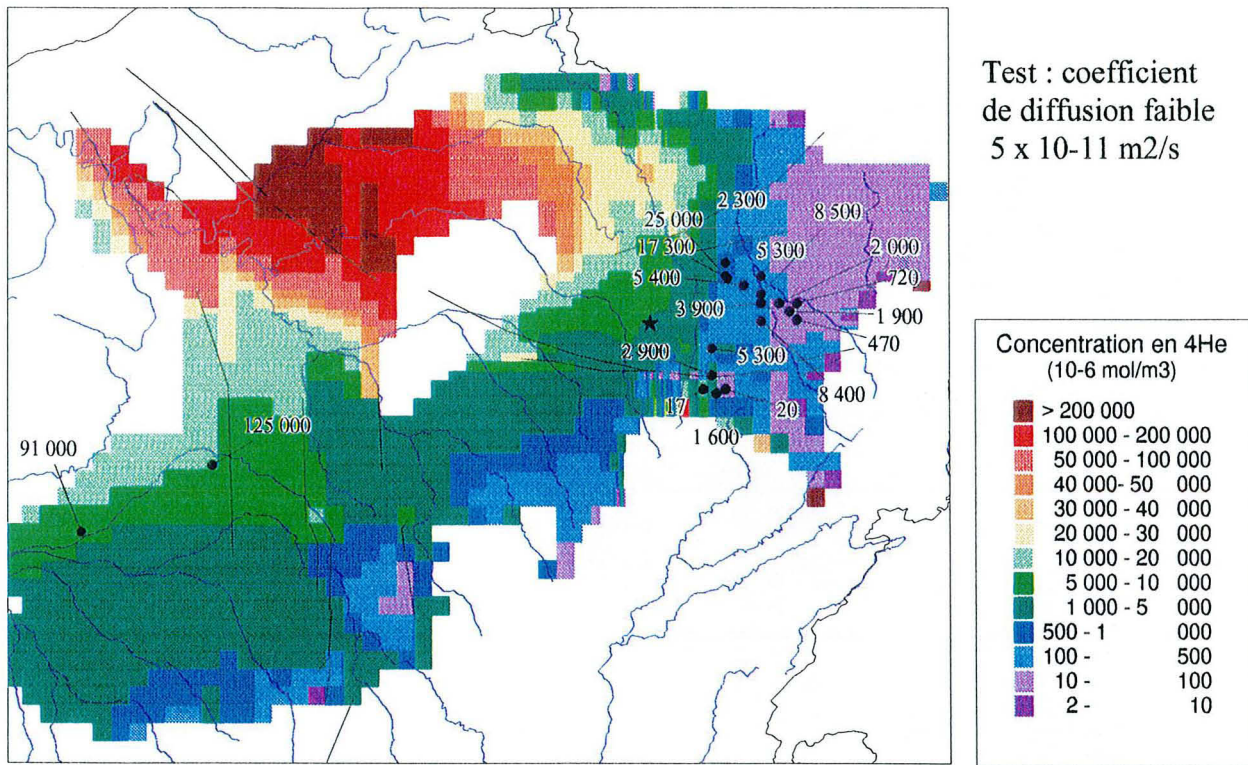


Figure 112 : Variation des concentrations en hélium-4 en fonction du coefficient de diffusion dans l'aquifère du Trias détritique et comparaison avec les mesures de terrains (chiffres noirs).

f) Porosité :

De manière analogue à la perméabilité, la porosité cinématique peut entraîner de fortes modifications sur les résultats en concentration, car elle détermine la vitesse réelle de l'eau dans le modèle. Ce paramètre peut être éminemment variable dans l'espace, même dans une même couche hydrogéologique. Nous avons affecté à l'ensemble des couches sédimentaires une valeur unique de 10%. Le socle granitique est moins poreux, nous lui avons affecté une valeur de 0.5 %.

g) Failles :

Dans la littérature, plusieurs auteurs (par exemple, Pinti et al. 1997) suggèrent que des quantités non négligeables d'hélium pourraient être transmises à partir du socle vers des niveaux supérieurs par l'intermédiaire des failles. Mais, jouent-elles toutes un rôle majeur ?

La comparaison d'un modèle caractérisé par une absence totale de faille avec le nôtre montre que les failles permettent de doubler les concentrations en ^4He le long de la faille Rouen-Couy dans le Dogger (Figure 113). En revanche, les failles n'apportent pas de variations significatives sur les concentrations en ^4He dans la partie Est du Trias (Figure 113). Ceci est contradictoire avec les données géochimiques, qui montrent une augmentation de la concentration en He et des rapports $^3\text{He}/^4\text{He}$ radiogéniques dès que les forages se situent au-delà de la faille de Vittel (Figure 88). Une explication possible serait : la topographie locale étant chahutée dans cette partie du bassin, elle est plus difficile à intégrer finement dans des mailles de 10 x 10 km.

En faisant varier la transmissivité des failles de 10^{-5} (modèle de référence) à 10^{-6} m²/s (modèle test), aucun changement significatif n'a été observé entre ces 2 simulations.

h) Echelle de temps de modélisation :

Les couches sédimentaires étudiées lors de cette étude (Albien, Dogger et Trias) ont un âge de formation équivalent ou supérieur à 100 Ma. Par conséquent, le modèle doit évoluer sur une période de temps similaire afin d'enregistrer l'accumulation de la production radiogénique. Nous n'avons pas encore atteint un état d'équilibre pour l'ensemble des couches hydrogéologiques modélisées (Figure 114). D'après le modèle, pour les couches superficielles (Tertiaire, Craie), il faut environ 10^5 années pour atteindre un état d'équilibre, de l'ordre de 10^7 années pour l'Albien et le Néocomien, près de 10^8 années pour l'Oxfordien calcaire et un temps encore plus long pour les aquifères profonds (Dogger, Trias). Bien que les écoulements aient considérablement été modifiés en 100 Ma, l'eau circulant à cette époque là ne fait plus partie du modèle, donc elle ne peut pas jouer à l'encontre des circulations actuelles.

i) Magmatismes ancien et récent :

Faut-il minorer les flux d'hélium-3 en provenance des zones magmatiques anciennes (par exemple, volcanisme Stéphalien) par rapport à ceux dérivés de magmas plus récents (d'âge Tertiaire ou Quaternaire) ?

Une simulation caractérisée par un même flux de ^3He (4×10^{-17} mol/m³. an) dans les zones magmatiques anciennes et récentes, laisse supposer que cette distinction est importante. Les fortes valeurs enregistrées dans l'Est du Trias détritique ne se retrouvent pas (Figure 115) avec cette configuration. A l'inverse, un flux trop important surestimerait les valeurs observées dans le Centre du Trias non détritique.

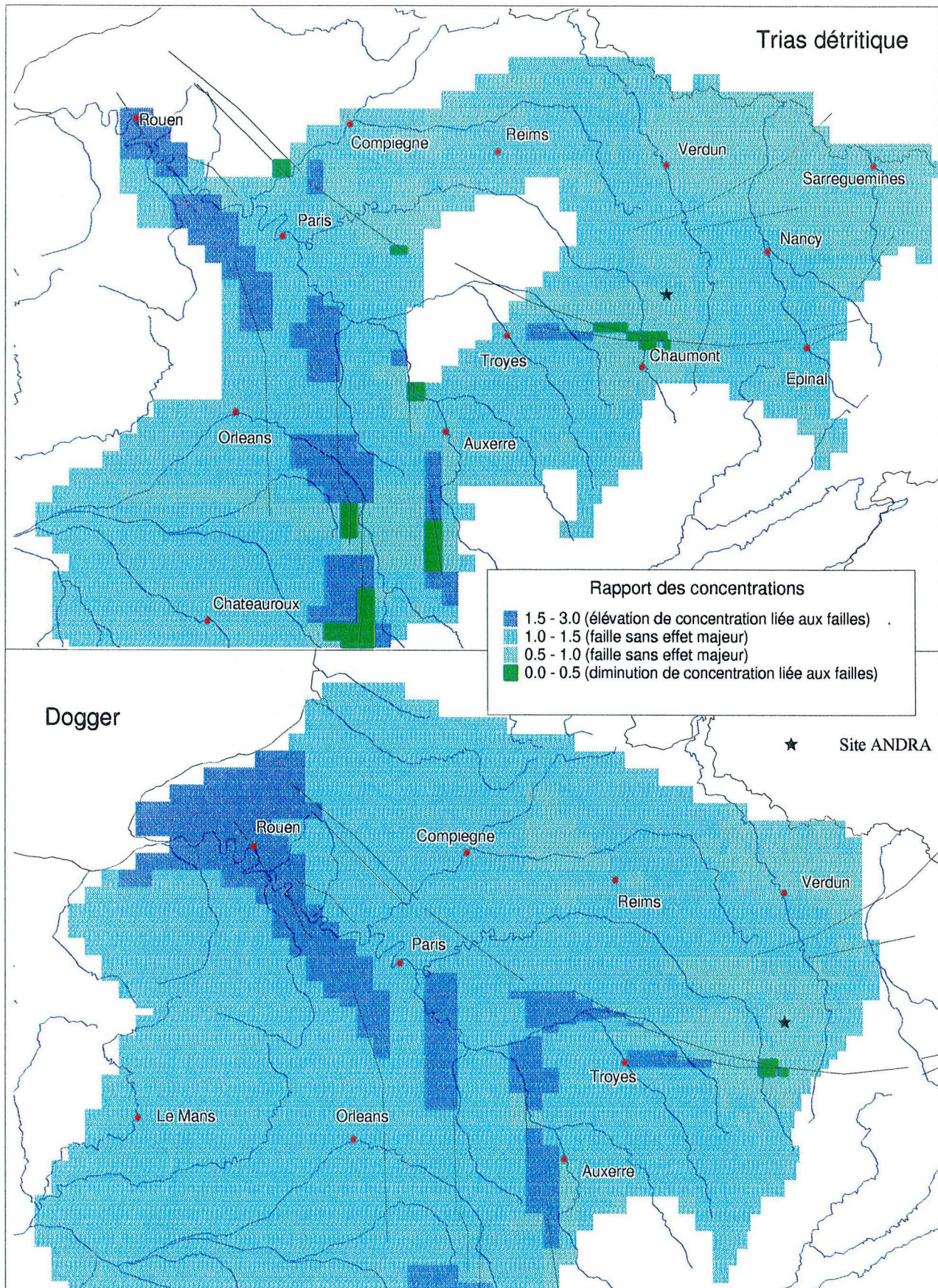


Figure 113 : Rapport entre les concentrations en hélium-4 calculées avec un modèle considérant les failles et un second sans faille dans le Dogger et le Trias détritique.

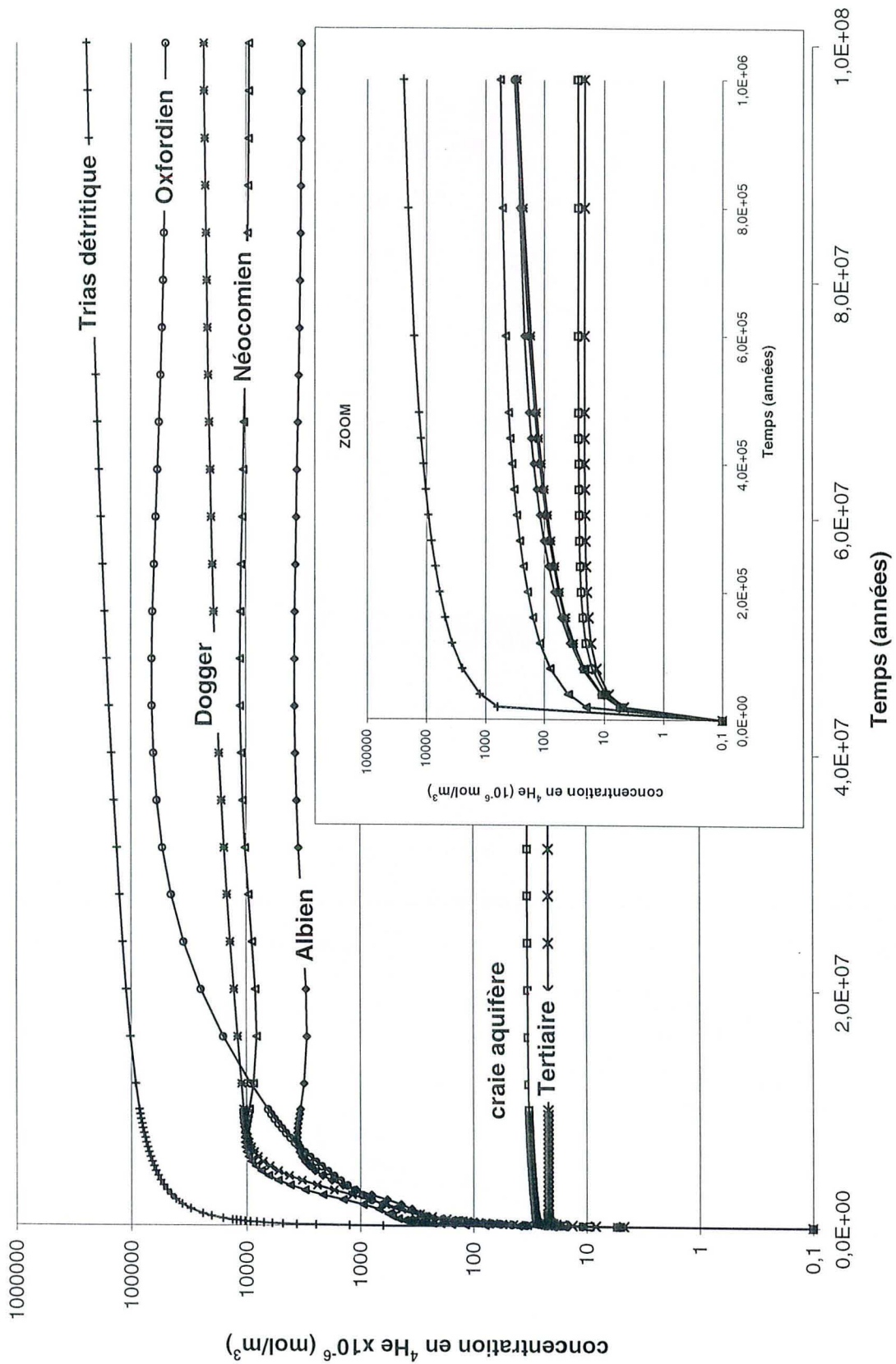


Figure 114 : Evolution des concentrations en hélium-4 en un point du modèle pour les différentes couches aquifères en fonction du temps.

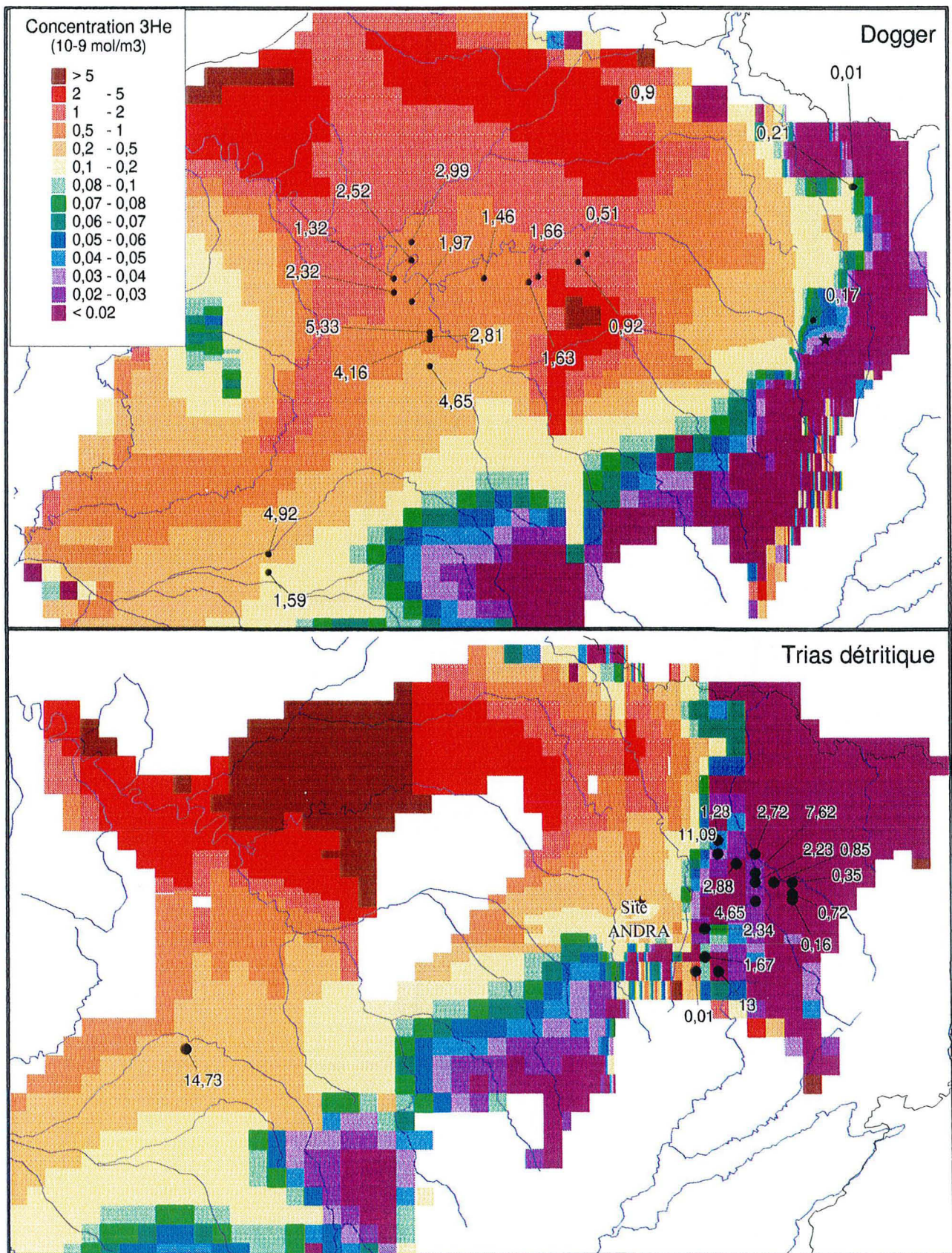


Figure 115 : Distribution des concentrations en hélium-3 pour un flux uniforme de 4×10^{-17} mol/m³. a dans toutes les zones magmatiques qu'elles soient anciennes ou récentes dans le Trias.

Chapitre XIII : Conclusions sur la modélisation des transferts massiques dans les formations aquifères et semi-perméables de l'Est du Bassin Parisien

La modélisation de la répartition des concentrations en hélium-4, hélium-3, et consécutivement des rapports isotopiques de l'hélium, à partir des paramètres hydrodynamiques du modèle de base et des conditions dictées par la géochimie isotopique des gaz rares, aboutit à un résultat très satisfaisant : les écarts entre simulation mathématique et mesures de terrain sont inférieurs à un facteur 2 si l'on considère l'ensemble du bassin. Les quelques différences importantes observées sont attribuées à la topographie locale, qui ne serait pas assez finement rendue dans certaines zones fortement chahutées.

Les résultats obtenus pour les gaz rares, même s'ils ne sont pas les seuls possibles, permettent de discuter des caractéristiques hydrodynamiques des écoulements souterrains en milieu poreux dans l'ensemble du Bassin Parisien (temps de résidence, vitesses de circulations, origines des fluides, trajectoires).

Les principaux enseignements extraits des études géochimiques sont confirmés par la modélisation :

- i) incorporation d'eau du Néocomien dans l'aquifère de l'Albien en région parisienne ;
- ii) injection de ^4He radiogénique issu du socle vers les formations sus-jacentes. Cet apport exogène est plus conséquent dans le Trias que dans le Dogger et a fortiori dans l'Albien (2 à 3 ordres de grandeur de différence).
- iii) contribution de ^3He mantellique, en plus de ^3He atmosphérique et nucléogénique dans le Trias. Ainsi, l'hypothèse selon laquelle les magmas, ayant provoqué l'expression de surface de la tectonique régionale du Graben du Rhin, auraient une étendue allant jusqu'au socle Lorrain semble possible au travers de cette modélisation. Une estimation des flux d'hélium-3 dérivant de ces zones profondes a été réalisée. Les roches magmatiques anciennes libéreraient $8 \times 10^{-17} \text{ mol/m}^3_{\text{roche}} \cdot \text{an}$ contre $2 \times 10^{-15} \text{ mol } ^3\text{He} / \text{m}^3_{\text{roche}} \cdot \text{an}$ pour les zones magmatiques récentes. Cette dernière valeur correspond à un flux de $1.4 \times 10^{-12} \text{ mol/m}^2 \cdot \text{an}$, en adéquation avec les quantités de ^3He dégazées au niveau des rides médio-océaniques ($1.9 \times 10^{-12} \text{ mol/m}^2 \cdot \text{an}$).

Des simulations, non présentées dans ce mémoire, ont été réalisées pour l'argon et les isotopes stables de l'eau.

√ En ce qui concerne l'argon, les résultats sont moins satisfaisants que ceux obtenus pour l'hélium, certainement en raison d'un bruit de fond atmosphérique prédominant qui masque les faibles apports radiogéniques. Ce processus est accru lorsque les mailles sont affleurantes. Ce problème est inhérent à la construction du modèle, qui représente chaque couche par une seule épaisseur de mailles. L'aquifère est alors associé à un continuum d'eau où le transport par advection est ininterrompu. Or, un aquifère est loin d'être un milieu homogène où l'eau circule par advection sans tenir compte des hétérogénéités de perméabilité existantes. La réalité s'apparente plus à un ensemble composé de niveaux perméables et imperméables, plus ou moins continus et imbriqués.

√ Les tests réalisés pour modéliser la répartition en $\delta^{18}\text{O}$ dans les aquifères du Bassin Parisien n'ont pas abouti. La cause principale de cet insuccès résulte d'un « effet piston » trop marqué. L'eau injectée dans le modèle est caractérisée par un $\delta^{18}\text{O}$ fixé en fonction de la période de recharge et de sa localisation géographique (latitude). Puis, au fur et à mesure de son cheminement dans l'aquifère, cette valeur va pénétrer dans le modèle, tout en poussant l'eau rechargée au pas de temps précédent un peu plus vers son exutoire. Il n'y a pas de véritable mélange qui s'opère entre des eaux de $\delta^{18}\text{O}$ différents. L'intégration d'un facteur de dispersion pourrait résoudre ce problème. Des essais ont alors été réalisés. Mais, en vérifiant la convergence du modèle, il est apparu que le nombre de Peclet obtenu (flux massique de convection/flux massique de dispersion) était trop important ($\gg 1$). Dans ce cas de figure, il est impossible de distinguer la dispersion « physique » de la dispersion « numérique » et les résultats peuvent porter à caution. Ces conclusions requièrent la construction d'un modèle comprenant des mailles plus petites afin que les critères de convergence du modèle soient respectés (nombre de Peclet < 1). En outre, comme cela a déjà été dénoncé pour les modélisations d'argon, la représentation des différentes formations par une seule couche de mailles renforce cet effet piston.

CONCLUSION GENERALE

La connaissance de la capacité de migration des radionucléides, à l'échelle des temps géologiques, dans les couches semi-perméables et les formations aquifères est fondamentale dans le cadre d'un projet de stockage de déchets radioactifs en profondeur.

Cette étude s'intéresse en particulier aux cinétiques de transfert roche – eau des gaz rares, éléments présentant l'avantage d'être inertes chimiquement et ainsi utilisés en tant que traceurs naturels conservatifs, dans la série sédimentaire de l'Est du Bassin de Paris.

Dans un premier temps, nous avons étudié le comportement des gaz rares dans les roches sédimentaires, afin de documenter les transferts massiques en milieu poreux peu perméable. Si les isotopes de gaz rares lourds tel l'argon sont bien retenus dans les roches de formation, il en est tout autrement pour les gaz rares légers. Les argilites étudiées libèrent la moitié de leur hélium à température ambiante. L'autre moitié est libérée pour des cinétiques de transferts plus lentes et des températures plus élevées.

Des profils de diffusion de He dérivés d'expériences de chauffage par paliers d'échantillons de roche permettent de définir différents types de mobilité, donc différents sites de rétention de He.

Afin de déterminer l'origine de ces sites, nous avons mené deux types d'expériences :

- La première tend à examiner la variation des rapports isotopiques δD , obtenus en déshydratant les roches, car l'hélium étant considéré comme un élément léger, au même titre que l'hydrogène de l'eau, leur comportement pourrait présenter des similitudes. Ainsi, il est possible de discuter de l'origine des différents types d'eau extraits en fonction de la température, et de proposer des sites potentiels de rétention de He.
- La seconde expérience porte sur l'étude des traces de fission émises lors de l'irradiation de minéraux riches en uranium. Ces défauts permettent d'identifier les phases contenant l'élément parent de He. Elles correspondent à i) des minéraux accessoires de petites tailles, ii) des dépôts au niveau des joints de grains, dans des phases altérées ou encore en surface des phases poreuses.

L'étude des roches montre que l'hélium s'avère être un traceur plus performant que l'argon, c'est pourquoi nous avons considéré plus en détail le comportement de ce premier élément dans les eaux souterraines de l'Est du Bassin Parisien. Comme le rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ permet d'identifier l'origine des fluides et que les isotopes radiogéniques apportent des informations d'ordre chronologique, l'hélium peut restituer la mémoire de l'histoire de ces fluides.

Dans un deuxième temps, la géochimie isotopique des gaz rares, couplée à l'étude des isotopes stables de la molécule d'eau et des activités ^{14}C , a permis de préciser les caractéristiques hydrodynamiques des eaux souterraines de l'Est du bassin et de contraindre l'époque de recharge, les vitesses de circulation, les temps de résidence, l'origine des fluides, les mélanges éventuels ou encore les flux sous-jacents injectés dans les différentes formations sédimentaires.

- Le signal isotopique des eaux triasiques permet de déconvoluer la signature de trois composantes : atmosphérique, radiogénique et mantellique. La production radiogénique *in situ* dans le Trias ne permettant pas d'expliquer les concentrations en hélium élevées mesurées, un flux exogène issu du socle, de l'ordre de 10^{-5} mol/m², est supposé entrer à la base de cet aquifère. Les rapports isotopiques de l'hélium montrent clairement la contribution de ^3He mantellique. Ainsi, des fluides d'origine magmatique sont injectés dans le Trias par l'intermédiaire de transferts convectifs de grande ampleur à l'échelle de la croûte. Ces eaux se sont rechargées durant une période climatique froide, il y a environ 30 000 ans. Les paléotempératures de recharge et les âges ^{14}C sont en accord, puisqu'ils définissent une courbe climatique similaire à celles de la littérature. Les vitesses de circulation sont en moyenne de 2.5 m/an, mais elles peuvent chuter à 1.2 m/an au niveau de la faille de Vittel, qui semble jouer un rôle de frein dans ces écoulements.

- L'aquifère du Dogger est constitué d'un mélange d'eau météorique et d'eaux issues des formations argileuses encaissantes et du socle. Aucune composante mantellique marquée n'a pu être mise en évidence dans ces eaux. En faisant l'hypothèse d'un flux entrant de ^4He de 10^{-7} mol/m², comparable à celui injecté dans le Dogger au centre du bassin, les eaux du forage MSE 101 pourraient avoir un temps de résidence d'1 Ma, ce qui implique des cinétiques de l'ordre de 0.05 m/an.

Les transferts d'éléments traces entre le Dogger et le Trias sont quantitativement limités, du fait que les rapports isotopiques de l'hélium élevés, détectés dans les eaux triasiques, ne se retrouvent pas dans les eaux jurassiques. Par conséquent, les argiles du Lias constitueraient une barrière isolante efficace entre ces deux formations.

Enfin, la robustesse de l'ensemble de nos conclusions géochimiques a été testée par l'intermédiaire d'un modèle numérique 3D, multi-couches, élaboré par ANTEA. La cohésion entre les deux approches s'est avérée très satisfaisante, même si quelques conditions initiales et aux limites peuvent être jugées approximatives (coefficients de diffusion moléculaire et perméabilités uniformes pour les couches semi-perméables, transport en mode transitoire sur 100 Ma pour un régime hydraulique permanent,...). Les simulations de transport des gaz rares réalisées montrent que le flux de ^3He extrait des zones magmatiques récentes serait de l'ordre de 1.4×10^{-12} mol/m². an. Cette valeur est en adéquation avec les quantités de ^3He dégazées au niveau des rides médio-océaniques.

Le côté pluridisciplinaire de cette étude (outils géochimiques et numériques, traces de fission,...) a été un atout indiscutable pour les implications hydrodynamiques et la compréhension des transferts massiques des radionucléides dans la marge orientale du Bassin Parisien. Par ailleurs, les problématiques abordées, telles celles liées aux capacités de migration de l'hélium, surtout en phase solide, ont été souvent invoquées dans le contexte géologique mais peu quantifiées jusqu'alors.

BIBLIOGRAPHIE

- Alexander S. C. and Alexander Jr. E. C. (1997) Carbon-14 Age Dating Calculations for Minnesota Ground Waters. *65th Annual Meeting, April 1997.*
- Allègre C. J. and Moreira M. (1996) Neon-helium isotopic systematics and the structure of the upper mantle. *The History of Degassing of the Earth, Colston Research Symposium.*
- Allègre C. J., Staudacher T., and Sarda P. (1986) Rare gas systematics : formation of the atmosphere, evolution and structure of the Earth's mantle. *Earth and Planetary Science Letters*, 81, 127-150.
- Allègre C. J., Staudacher T., Sarda P., and Kurz M. (1983) Constraints on evolution of Earth's mantle from rare gas systematics. *Nature*, 303, 762-766.
- Amari S. and Ozima M. (1985) Search for the origin of exotic helium in deep-sea sediments. *Nature*, 317, 520-522.
- Anderson D. L. (1993) Helium-3 from the mantle : Primordial Signal or Cosmic Dust? *Science*, 261, 170-176.
- ANDRA. (1996) Recherches préliminaires à l'implantation des laboratoires de recherche souterrains - *Bilan des travaux : janvier 1994 / mars 1996.* pp 150.
- Andrews J. N. (1977) Radiogenic and inert gases in groundwater. *Proc. 2th Int. Symp. Water-rock Inter.*, 334-342.
- Andrews J. N. (1985a) The $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios of radiogenic helium in crustal rocks and its application in groundwater circulation studies. *Chemical Geology*, 49, 339-351.
- Andrews J. N. (1985b) The isotopic composition of radiogenic helium and its use to study groundwater movement in confined aquifers. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 46, 1533-1543.
- Andrews J. N., Balderer W., Bath A. H., Clausen H. B., Evans G. V., Florkowski T., Goldbrunner J. E., Ivanovich M., Loosli H., and Zojer H. (1984) Environmental isotope studies in two aquifer systems : a comparison of groundwater dating methods. In *Isotope Hydrology, 1983*, pp. 535-576. IAEA.
- Andrews J. N., Fontes J. C., Michelot J. L., and Elmore D. (1986) In-situ neutron flux, ^{36}Cl production and groundwater evolution in crystalline rocks at Stripa, Sweden. *Earth and Planetary Science Letters*, 77, 49-58.
- Andrews J. N., Giles I. S., Kay R. L. F., Lee D. J., Osmond J. K., Cowart J. B., Fritz P., Barker J. F., and Gale J. (1982) Radioelements, radiogenic helium and age relationships for groundwaters from the granites at Stripa, Sweden. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 46, 1533-1543.
- Andrews J. N., Goldbrunner J. E., Darling W. G., Hooker P. J., Wilson G. B., Youngman M. J., Eichinger L., Rauert W., and Stichler W. (1985) A radiochemical, hydrochemical and dissolved gas study of groundwaters in the Molasse basin of Upper Austria. *Earth and Planetary Science Letters*, 73, 317-332.
- Andrews J. N. and Kay R. L. F. (1982) Natural production of tritium in permeable rocks. *Nature*, 298, 361-363.
- Andrews J. N. and Lee D. J. (1979) Inert gases in groundwater from the Bunter Sandstone of England as indicators of age and paleoclimatic. *Journal of Hydrology*, 41, 233-252.
- Arnold M., Bard E., Maurice P., and Duplessy J. C. (1987) C-14 dating with the Gif-sur-Yvette tandemron accelerator : status report (AMS '87). , 120.
- Astié A., Bellegrade, Bourgeois, Cazal, Emsellem, Lavigne, Marrionnaud, Moussié, Pouchan, Prudhomme, Roudelot, Schoeller, Trupin. (1969) Synthèse des études sur le système multicouche des nappes Tertiaires du Nord de l'Aquitaine. *La Houille Blanche*, 8, 907-918.
- Aubertin G. and Ballin F. (1984) Analyse des écoulements naturels dans l'aquifère géothermique du Dogger du centre du Bassin de Paris. *Rapport BRGM 84 SGN 79 GTH-IRG*, pp25.

- Aubertin G. E. (1987) Détermination expérimentale de la vitesse d'écoulement de la nappe géothermique du Dogger en région Parisienne. *Bulletin de la Société géologique de France*, 5, 991-1000.
- Ballentine C. J. (1991) He, Ne and Ar as tracers in crustal fluids. PhD thesis, Cambridge University.
- Ballentine C. J. and O'Nions R. K. (1994) The use of natural He, Ne and Ar isotopes to study hydrocarbon-related fluid provenance, migration and mass balance in sedimentary basins. In *Geofluids : Origin, Migration and Evolution of Fluids in Sedimentary Basins*, Vol. 78 (ed. J. Parnell), pp. 347-361. Geological Society Special Publication.
- Ballentine C. J., O'Nions R. K., and Coleman M. (1996) A Magnus opus : He, Ne and Ar isotopes in a North Sea oil field. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60, 831-849.
- Ballentine C. J., O'Nions R. K., Oxburgh E. R., Horvath F., and Deak J. (1991) Rare gas constraints on hydrocarbon accumulation, crustal degassing and groundwater flow in the Pannonian basin. *Earth and Planetary Science Letters*, 105, 229-246.
- Banks P. M. and Holtzer T. E. (1968) The polar wind. *Journal of Geophysical Research*, 73, 6846-6854.
- Bard E. (1987) Analyse isotopique du carbone en spectrométrie de masse par accélérateur. Applications à la géochimie marine et à la géochronologie, Université de Paris XI.
- Bard E., Hamelin, B., Fairbanks R. G., and Zindler A. (1990) Calibration of the ^{14}C time scale over the past 30,000 years using mass spectrometric U-Th ages from Barbados corals. *Nature*, 345, 405.
- Barer R. (1957) *Diffusion in Solids*.
- Barthelemy Y. (1997) Site de l'Est : synthèse des reconnaissances hydrogéologiques, pp. 119.
- Basford J. R., Dragon J. C., Pepin R. O., Coscio J., M.R., and Murthy V. R. (1973) Krypton and xenon in lunar fines. *Proceedings of the Fourth Lunar Science Conference*, 1915-1955.
- Batard F., Baubron J. C., Bosch B., Marce A., and Risler J. J. (1982) Isotopic identification of gases of a deep origin in French thermomineral waters. *Journal of Hydrology*, 56, 1-21.
- Bath A. H., Edmunds W. M., and Andrews J. N. (1979) Paleoclimatic trends deduced from the hydrochemistry of a triassic sandstone aquifer, United Kingdom. In *Isotope Hydrology 1978*, Vol. II, pp. 545-568.
- Ben-Naim A. and Egel-Thal M. (1965) Thermodynamics of aqueous solutions of noble gases. III. Effect of electrolytes. *J. Phys. Chem.*, 69, 3250-3253.
- Benson B. B. and Krause D. J. (1976) Empirical laws for dilute aqueous solutions of nonpolar gases. *Journal of Chemical Physics*, 64, 689-709.
- Bentley H. W., Phillips F. M., Davis S. N., Habermehl M. A., Airey P. L., Calf G. E., Elmore D., Gove H. E., and Torgersen T. (1986) Chlorine-36 dating of very old groundwater, I : The Great Artesian Basin, Australia. *Water Resources Research*, 22, 1991-2001.
- Bethke C. M. (1988) Modeling subsurface flow in sedimentary basins. *Geologische Rundschau*.
- Blaga L. (1968) Isotopic exchange of hydrogen between the fluids of the hydrocarbon fields. *Isotopenpraxis*, 4, 178.
- Blavoux B. and Olive P. (1981) Radiocarbon dating of groundwater of the aquifer confined in the lower Triassic Sandstones of the Lorraine region, France. *Journal of Hydrology*, 54, 167-183.
- Borina A. F. and Samoilov O. Y. (1974) Relation of the temperature dependence of neon solubility in aqueous solutions with the structural state solvent. *ZH. Strukt. Khim.*, 15, 395-402.
- Bottomley D. J., Gascoyne M., and Kamineni D. C. (1990) The geochemistry, age, and origin of groundwater in a mafic pluton, East Bull Lake, Ontario, Canada. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 54, 933-1008.
- Bottomley D. J., Ross J. D., and Clarke W. B. (1984) Helium and neon isotope geochemistry of some groundwaters from the Canadian Precambrian Shield. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 48, 1973-1985.
- Boulègue J., Fouillac A. M., Marty B., and Benedetti M. (1992) Fluids in the basement of Paris Basin. *Vth Int. Symp. Continental Scientific Drillings Programs*. Paris, April 1992.
- Boulos M. S. and Manuel O. K. (1971) The xenon record of extinct radioactivities in the Earth. *Science*, 174, 1334-1336.

- BRGM.** (1971) La tectonique du Bassin de Paris. *Bulletin du B.R.G.M., Géologie de la France*, n°2 et 3.
- Brown H.** (1952) Rare gases and the formation of the Earth's atmosphere. In *The Atmospheres of the Earth and Planets*, 2nd ed., pp. 258-266. University of Chicago Press, Chicago.
- Brunet M. F. and Le Pichon X.** (1982) Subsidence of the Paris Basin. *Journal of Geophysical Research*, 87, 8547-8560.
- Burgeap.** (1975) Modèle mathématique pour l'étude de la nappe de l'Albien dans la région parisienne. *Compagnie Générale des Eaux*, R.151-E.325.
- Carslaw H. S. and Jaeger J. C.** (1959) *Conduction of heat in solids*. Oxford University Press, 2nd ed.
- Carter M. W. and Mogishi A. A.** (1977) Three decades of nuclear testing. *Health Physics*, 33, 55-71.
- Castro M. C.** (1991) Les isotopes de l'argon et de l'hélium dans les eaux profondes du Bassin Parisien : implications hydrodynamiques. DEA Nationale Hydrol., Université Paris VI.
- Castro M. C.** (1995) Transfert des gaz rares dans les eaux des bassins sédimentaires : exemple du Bassin de Paris. Thèse, Université Paris VI. pp 239.
- Castro M. C., Jambon A., de Marsily G., and Schlosser P.** (1998) Noble gases as natural tracers of water circulation in the Paris Basin. 1. Measurements and discussion of their origin and mechanisms of vertical transport in the basin. *Water Resources Research*, 34, 2443-2466.
- Chiarelli A.** (1973) Etude des nappes aquifères profondes. Contribution de l'hydrogéologie à la connaissance d'un bassin sédimentaire et à l'exploration pétrolière. Thèse d'Etat, Université de Bordeaux I.
- Clarke W. B., Beg M. A., Craig, and Harmon.** (1969) Excess ^3He in the sea : Evidence for terrestrial primordial helium. *Earth and Planetary Science Letters*, 6, 213-220.
- Clarke W. B., Jenkins W. J., and Top Z.** (1976) Determination of tritium by mass spectrometric measurement of ^3He . *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 27, 515-522.
- Clayton R. N., Friedman I., Graf D. L., Mayeda T. K., Meents W. F., and Shimp N. F.** (1966) The origin of saline formation waters, 1. Isotopic composition. *Journal of Geophysical Research*, 71, 3869-3882.
- Clever H. L.** (1979a) Helium and neon. In *Solubility Data Series*, Vol. 1 (ed. A. S. Kertes). Pergamon Press.
- Clever H. L.** (1979b) Krypton, xenon and Radon. In *Solubility Data Series*, Vol. 2 (ed. A. S. Kertes). Pergamon Press.
- Clever H. L.** (1980) Argon. In *Solubility Data Series*, Vol. 4 (ed. A. S. Kertes). Pergamon Press.
- Clever H. L. and Holland C. J.** (1968) Solubility of argon gas in aqueous alkali halide solutions. Temperature coefficient of the salting out parameter. *J. Chem. Eng. Data*, 13, 411-414.
- Coleno B.** (1987) Diagraphies thermiques et distribution du champ de température dans le Bassin Parisien. Thèse de doctorat, Université de Bretagne Occidentale. pp 220.
- Cordier E.** (1986) Etude de la vitesse d'écoulement naturel de la nappe géothermique du Dogger en région parisienne. *Rapport de l'Ecole des Mines LHM/RD/86/40*.
- Courbouleix S. et al.** (1998) Simulation de la profondeur du pergélisol au cours du dernier cycle climatique, pp. 64. Rapport ANTEA - ANDRA.
- Craig H.** (1961) Isotope variations in meteoric waters. *Science*, 133, 1702-1703.
- Craig H. and Lupton J. E.** (1976) Primordial neon, helium, and hydrogen in oceanic basalts. *Earth and Planetary Science Letters*, 31, 369-385.
- Craig H., Lupton J. E., and Horribe Y.** (1978) A mantle helium component in Circum-Pacific Volcanic Gases : Hakone, the Marianas, and Mt Lassen. In *Terrestrial Rare Gases* (ed. Alexander and Ozima), pp. 3-16. Japan Sci. Soc. Press.
- Crank J.** (1975) *The mathematics of diffusion. second edition*. Clarendon Press, Oxford. pp 414.
- Crovetto R., Fernandez-Prini R., and Japas M. L.** (1982) Solubilities of inert gases and methane in H_2O and in D_2O in the temperature range of 300 to 600K. *J. Chem. Phys.*, 76, 1077-1086.

- Deak J. (1979a) Environmental isotopes and water chemical studies for groundwater research in Hungary. In *Isotope Hydrology 1978*, pp. 221-251. IAEA.
- Deak J. (1979b) Investigation of the supplying and draining process of a regional groundwater system using environmental isotopes. *Int. Assoc. Hydrol. Sci. Publ.*, 128, 287-2969.
- Deak J., Stute M., Rudolph J., and Sonntag C. (1987) Determination of the flow of Quaternary and Pliocene layers in the Great Hungarian Plain (Hungary) by D, ^{18}O , ^{14}C and noble gas measurements. In *Isotope techniques in Water Resources Development*, pp. 335-350.
- Dever L., Marlin C., and Vachier P. (1990) Teneurs en ^2H , ^{18}O , ^3H et en chlorures des pluies dans le Nord Est de la France (Châlons-sur-Marne). *Geodinamica Acta*, 4, 133-140.
- Douglas E. (1964) Solubilities of oxygen, argon, and nitrogen in distilled water. *J. Phys. Chem.*, 68, 169-174.
- Dunai T. J. and Roselieb K. (1996) Sorption and diffusion of helium in garnet : implications for volatile tracing and dating. *Earth and Planetary Science Letters*, 139, 411-421.
- Eberhardt P., Eugster O., and Marti K. (1965) A redetermination of the isotopic composition of atmospheric neon. *Zeitschrift für Naturforschung*, 20a, 623-624.
- Elliot T., Ballentine C. J., O'Nions R. K., and Ricchiuto T. (1993) Carbon, helium, neon and argon isotopes in a Po Basin natural gas field. *Chemical Geology*, 106, 429-440.
- Eucken A. and Hertzberg G. (1950) Aussalzeffekt und Ionenhydratation. *Z. physik. Chem.*, 195, 1-23.
- Fabryka-Martin J. T., Bentley H. W., Elmore D., and Airey P. L. (1985) I-129 as an environmental tracer. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49, 337-347.
- Farley K. A. and Craig H. (1994) Atmospheric argon contamination of ocean island basalt olivine phenocrysts. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58, 2509-2517.
- Farley K. A., Natland J. H., and Craig H. (1992) Binary mixing of enriched and undegassed (primitive?) mantle components (He, Sr, Nd, Pb) in Samoan lavas. *Earth and Planetary Science Letters*, 111, 183-199.
- Fick A. (1855) *Annln Phys.*, 170, 59.
- Flehoc C., Rotach-Toulhoat N., and Villemant B. (1987) Répartition de l'uranium dans les roches volcaniques. *Bulletin de Minéralogie*, 110, 335-344.
- Fogg G. E. (1986) Groundwater flow and sand body interconnectedness in a thick multiple aquifer system. *Water Resources Research*, 22, 679-694.
- Fontes C. and Matray J. M. (1993) Geochemistry and origin of formation brines from the Paris Basin, France. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 109, 177-200.
- Fontes J. C. (1978) Hydrogéologie, un champ privilégié de l'application des isotopes du milieu : l'âge des eaux souterraines. *I.H.E.S Symposium. mémoire hors série CERGH - USTL Montpellier*.
- Fontes J. C., Andrews J. N., and Walgenwitz F. (1991) Evaluation de la production naturelle in situ d'argon-36 via le chlore-36: implications géochimiques et géochronologiques. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences (Paris), série II*, 313, 649-654.
- Fontes J. C. and Garnier J. M. (1979) Determination of the initial ^{14}C activity of total dissolved carbon : a review of existing models and a new approach. *Water Resources Research*, 15, 399-413.
- Fouillac C., Fouillac A. M., and Criaud A. (1990) Sulphur and oxygen isotopes of dissolved sulphur species in formation waters from the Dogger geothermal aquifer, Paris Basin, France. *Applied Geochemistry*, 5, 415-427.
- Fourier J. B. (1822) *Théorie analytique de la chaleur*. Dover Publ. New York 1955.
- France-Lanord C. (1997) Bilan isotopique de l'oxygène et de l'hydrogène de l'eau dans des formations argileuses du forage EST 104 de l'ANDRA. Rapport ANDRA BRP O CRP 97-001. pp. 23.
- France-Lanord C. (1999) Les eaux interstitielles des argiles du Callovo-Oxfordien : caractéristiques isotopiques. In *Etude de l'Est du Bassin Parisien* (ed. EDP Sciences), Journées scientifiques ANDRA - Bar le Duc Octobre 1997. pp. 77-88.

- Friedman I. and O'Neil J. R. (1977) Compilation of stable isotope fractionation factors of geochemical interest. In *Data of geochemistry. Sixth edition* (ed. Fleisher), pp. 440. Geological Survey Professional Paper.
- Friedman I., Redfield A. C., Schoen B., and Harris J. (1964) The variation of the deuterium content of natural waters in the hydrologic cycle. *Rev. Geophys.*, 2, 177-224.
- Gable R. (1982) Mesures, analyses et interprétation de profils thermiques. Application à la détermination indirecte des températures in situ. *Rapport BRGM 82 SGN 413*.
- Gable R. (1984) Acquisition et interprétation des données géothermiques. Thèse de doctorat d'Etat ès Sciences Physiques, Université de Paris. pp 172.
- Gardiner G. E. and Smith N. O. (1972) Solubility and partial molar properties of helium in water and aqueous sodium chloride from 25 to 100° and 100 to 600 atmospheres. *J. Chem. Phys.*, 70, 263-276.
- Giggenbach W. F., Sano Y., and Wakita H. (1993) Isotopic composition of helium and CO₂ and CH₄ contents in gases produced along the New Zealand part of a convergent plate boundary. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 57, 3427-3455.
- Gille. (1985) Contribution à l'étude hydrologique des Bassins de la Meuse et de la Moselle : Problématique de l'utilisation d'un modèle couplé à discrétisation spatiale. Thèse de doctorat, Université de Paris VI. pp 199.
- Graf D. L., Friedman I., and Meents W. F. (1965) The origin of saline formation waters. II. Isotopic fractionation by stable micropore systems. *Geol. Surv. Circ.*, 393, 1.
- Griesshaber E., O'Nions R. K., and Oxburgh E. R. (1992) Helium and carbon isotope systematics in crustal fluids from the Eifel, the Rhine Graben and Black Forest, F.R.G. *Chemical Geology*, 99, 213-235.
- Hamano Y. and Ozima M. (1978) Earth-atmosphere evolution models based on Ar isotopic data. In : Terrestrial Rare Gases, E.C. Alexander Jr. and M. Ozima, eds., Japan Scientific Societies Press, pp. 155-172.
- Hamilton E. I. (1966) Distribution of uranium in some natural minerals. *Science*, 151, 570-571.
- Hanan B. B. and Graham D. W. (1996) Lead and helium isotope evidence from oceanic basalts for a common deep source of mantle plumes. *Science*, 272, 991-995.
- Heaton T. H. E. (1981) Dissolved gases : some applications to groundwater research. *Transactions of the Geological Society of South Africa*, 84, 91-97.
- Heaton T. H. E. and Vogel J. C. (1981) Excess air in groundwater. *Journal of Hydrology*, 50, 201-216.
- Hennart J. P., Yates R., and Herrera. (1981) Extension of the intergradient approach to inhomogeneous multiaquifer systems. *Water Resources Research*, 17, 1044.
- Héritier F. and Villemin J. (1971) Mise en évidence de la tectonique profonde du Bassin de Paris par l'exploration pétrolière. *Bulletin du B.R.G.M.*, 2, 12-31.
- Herzberg O. and Mazor E. (1979) Hydrological applications of noble gases and temperature measurements in underground water systems : examples from Israël. *Journal of Hydrology*, 41, 217-231.
- Hill M. (1990) Preconditioned Conjugate Gradient 2 PCG2. A computer program for solving groundwater flow equation. *US Geological Survey - Denver*.
- Hitchon B. and Friedman I. (1969) Geochemistry and origin of formation waters in the western Canada sedimentary basin. I Stable isotopes of hydrogen and oxygen. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 33, 1321-1349.
- Hiyagon H. (1994) Retention of Solar Helium and Neon in IDPs in Deep Sea Sediment. *Science*, 263, 1257-1259.
- Hiyagon H. and Kennedy B. M. (1992) Noble gases in CH₄-rich gas fields, Alberta, Canada. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 56, 1569-1589.
- Hiyagon H., Ozima M., Marty B., Zashu S., and Sakai H. (1992) Noble gases in submarine glasses from mid-oceanic ridges and Loihi seamount : constraints on the early history of the Earth. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 56, 1301-1316.
- Honda M., Kurita K., Hamano Y., and Ozima M. (1982) Experimental studies of He and Ar degassing during rock fracturing. *Earth and Planetary Science Letters*, 51, 206-214.

- Honda M., Reynolds J., Roedder E., and Epstein S. (1987) Noble gases in diamonds : occurrence of solar-like helium and neon. *Journal of Geophysical Research*, 92, 12507-12521.
- Hooker P. J., Bertrami R., Lombardi S., O'Nions R. K., and Oxburgh E. R. (1985a) Helium-3 anomalies and crust-mantle interaction in Italy. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49, 2505-2513.
- Hooker P. J., O'Nions R. K., and Oxburgh E. R. (1985b) Helium isotopes in North Sea gas fields and the Rhine rift. *Nature*, 318, 273-275.
- Housse B. and Maget P. (1976) Potentiel géothermique du Bassin Parisien. Rapport Comité A.C.C. Géothermie, contrat n° 74-7-0990. BRGM et ELF Aquitaine, 125pp.
- Humbert F. (1998) Solubilité de l'azote dans les silicates liquides : influence de la fugacité d'oxygène et de la composition, Université Henri Poincaré, Nancy I. pp 234.
- Hunemohr H. (1989) Edelgase in U-Th-reichen mineralen und die bestimmung der ^{21}Ne -dicktarget-ausbeute der $^{18}\text{O}(\text{a,n})^{21}\text{Ne}$ -kernreaktion im bereich 4.0 - 4.8 MeV. PhD Thesis, Johannes Gutenberg University.
- IMRG. (1984) Etude détaillée des réservoirs géothermiques en milieu sédimentaire. Réservoir du Dogger, Rapport IMRG/BRGM, pp. 68.
- IMRG. (1988) Rapport annuel d'activité IMRG/BRGM, pp. 56.
- Jacobsen S. B. and Wasserburg G. J. (1979) The mean age of mantle and crustal reservoirs. *Journal of Geophysical Research*, 84, 7411-7427.
- Jambon A. and Shelby J. E. (1980) Helium diffusion and solubility in obsidians and basaltic glass in the range 200 - 300°C. *Earth and Planetary Science Letters*, 51, 206-214.
- Jambon A., Weber H. W., and Begemann F. (1985) Helium and argon from an Atlantic MORB Glass : concentration, distribution and isotopic composition. *Earth and Planetary Science Letters*, 73, 255-267.
- Jenden P. D., Kaplan I. R., Poreda R. J., and Craig H. (1988) Origin of nitrogen-rich natural gases in the California Great Valley : evidence from helium, carbon and nitrogen isotope ratios. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 52, 851-861.
- Kaneoka I. and Takaoka N. (1985) Noble gas state in the Earth's interior. Some constraints on the present state. *Chemical Geology*, 52, 75-95.
- Kaneoka I., Takaoka N., and Aoki K. (1978) Rare gases in mantle-derived rocks and minerals. In *Terrestrial Rare Gases* (ed. Alexander and Ozima), pp. 71-83. Japan Scientific Society Press.
- Kennedy B. M., Hiyagon H., and Reynolds J. H. (1990) Crustal neon : a striking uniformity. *Earth and Planetary Science Letters*, 98, 277-286.
- Kharaka Y. K. and Carothers W. W. (1986) Oxygen and hydrogen isotope geochemistry of deep basin brines. In *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*, Vol. 2 (ed. Fontes), pp. 305-360. Elsevier.
- Kleeman J. D. and Lovering J. F. (1967) Uranium distribution in rocks by fission-track registration in Lexan plastic. *Science*, 156, 512-513.
- Kockarts G. (1973) Helium in the terrestrial atmosphere. *Space Science Reviews*, 14, 723-757.
- Konig Von H. (1963) Uber die Loslichkeit der Edelgase in Meerwasser. *Z. Naturforsch*, 18a, 363-367.
- Kreitler C. W. (1989) Hydrogeology of sedimentary basins. *Journal of Hydrology*, 106, 29-53.
- Kurz M. D. (1986) In situ production of terrestrial cosmogenic helium and some application to geochronology. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 50, 2855-2862.
- Kurz M. D., Garcia M. O., Frey F. A., and O'Brien P. A. (1987) Temporal helium isotopic variations within Hawaiian volcanoes : basalts from Mauna Loa and Heleakala. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 51, 2905-2914.
- Kurz M. D. and Jenkins W. J. (1981) The distribution of helium in oceanic basalt glasses. *Earth and Planetary Science Letters*, 53, 41-54.

- Kurz M. D., Jenkins W. J., and Hart S. R. (1982) Helium isotopic systematics of oceanic islands and mantle heterogeneity. *Nature*, 43-46.
- Kurz M. D., Jenkins W. J., Hart S. R., and Clague D. (1983) Helium isotopic variations in volcanic rocks from Loihi seamount and the Island of Hawaii. *Earth and Planetary Science Letters*, 66, 388-406.
- Kyser T. K. and Ryson W. (1982) Systematics of rare gas isotopes in basic lavas and ultramafic xenoliths. *Journal of Geophysical Research*, 87, 5611-5630.
- Lal D. (1987) Production of ^3He in terrestrial rocks. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 66, 89-98.
- Lal D. (1988) In situ-produced cosmogenic isotopes in terrestrial rocks. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 16, 355-388.
- Lal D. and Peters B. (1967) Cosmic ray produced radioactivity on the Earth. In *Handbook of Physics*, Berlin, Springer et Verlag, 46/2, 551-612.
- Lauverjat J. (1967) Contribution à l'étude géologique et hydrogéologique de l'Albien dans le centre de Paris. Thèse de 3eme cycle, Fac. Sci. Paris. pp 211.
- Lauverjat J. (1989) Evolution de la nappe de l'Albien dans le centre du Bassin de Paris. *114e Cong. Soc. Sav., Géol. Bassin Parisien*, 157-168.
- Levassor A., Delhomme J. P., and Talbot A. (1977) Modèle de simulation et de gestion des ressources en eau des bassins de l'Orne, la Dives et la Seulles. *Rapport du CIG, LHM/RC/77/46, Ecole des Mines de Paris*.
- Libby W. F. (1946) Atmospheric helium-three and radiocarbon from cosmic radiation. *Phys. Rev.*, 69, 671-672.
- Licciardi J. M., Kurz M. D., Clark P. U., and Brook E. J. (1999) Calibration of cosmogenic ^3He production rates from Holocene lava flows in Oregon, USA, and effects of the Earth's magnetic field. *Earth and Planetary Science Letters*, 172, 261-271.
- Lupton J. E. (1983) Terrestrial inert gases : isotope tracer studies and clues to primordial components in the mantle. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 11, 371-414.
- Maget P. (1983) Potentiel géothermique à base température en France. *Rapport BRGM 83 SGN 375 SPG*.
- Mamyrin B. A., Anufriyev G. S., Kamenskii I. L., and Tolstikhin I. N. (1970) Determination of the isotopic composition of atmospheric helium. *Geochemistry International*, 7, 498-505.
- Mamyrin B. A. and Tolstikhin I. N. (1984) *Helium isotopes in nature*. Developments in Geochemistry, ed Fyfe. Elsevier, pp 273.
- Mamyrin B. A., Tolstikhin I. N., Anufriyev G. S., and Kamensky I. L. (1969) Anomalous isotopic composition of helium in volcanic gases. *Dokl. Akad. Nauka SSSR*, 184, 1197-1199.
- Marine I. W. (1979) The use of naturally occurring helium to estimate groundwater velocities for studies of geologic storage of radioactive waste. *Water resources Research*, 15, 1130-1136.
- Martel D. J., Deak J., Dövényi P., Horvath F., O'Nions R. K., Oxburgh E. R., Stegena L., and Stute M. (1989) Leakage of helium from the Pannonian basin. *Nature*, 342, 908-912.
- Martel D. J., O'Nions R. K., Hilton D. R., and Oxburgh E. R. (1990) The role of element distribution in production and release of radiogenic helium : the Carnmenellis Granite, southwest England. *Chemical Geology*, 88, 207-221.
- Marti K. and Craig H. (1987) Cosmic ray produced neon and helium in the summit lavas of Maui. *Nature*, 325, 335-337.
- Marty B. (1989) Neon and xenon isotopes in MORB : implications for the earth-atmosphere evolution. *Earth and Planetary Science Letters*, 94, 45-56.
- Marty B., Criaud A., and Fouillac C. (1988) Low enthalpy geothermal fluids from the Paris sedimentary basin. 1. Characteristics and origin of gases. *Geothermics*, 17, 619-633.
- Marty B., O'Nions R K, Oxburgh E R, Martel D, and S L. (1992) Helium isotopes in Alpine regions. *Tectonophysics*, 206, 71-78.

- Marty B. and Ozima M. (1986) Noble gas distribution in oceanic basalt glasses. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 50, 1093-1097.
- Marty B., Torgersen T., and Meynier V. (1993) Helium Isotope Fluxes and Groundwater Ages in the Dogger Aquifer, Paris Basin. *Water Resources Research*, 29, 1025-1035.
- Matray J. M., Eggenkamp H., Worden R. H., Howarth R. J., and Coleman M. L. (in press) Mixing history of multi-sourced formation waters from Upper Triassic (Keuper) sandstone, Paris Basin, France. *Chemical Geology*.
- Matray J. M. and Fontes J. C. (1993) Multi-sourced formation waters from the Dogger aquifer of the Paris Basin. In *GEOFLUIDS'93. Contributions to an International Conference on Fluid Evolution, Migration and Interaction in Rocks* (ed. Parnell et al.), pp. 319-322. Abstract. Proc.
- Matray J. M., Lambert M., and Fontes J. C. (1994) Stable isotope conservation and origin of saline waters from the Middle Jurassic aquifer of the Paris Basin, France. *Applied Geochemistry*, 9, 297-309.
- Matray J. M., Meunier A., Thomas M., and Fontes J. C. (1989) Les eaux de formation du Trias et du Dogger du Bassin Parisien : effets diagénétiques sur les réservoirs. *Bull. Soc. Nat. Elf-Aquitaine Prod.*, 13, 484-504.
- Matthews A., Fouillac C., Hill R., O'Nions R. K., and Oxburgh E. R. (1987) Mantle derived volatiles in continental crust : the Massif Central of France. *Earth and Planetary Science Letters*, 85, 117-128.
- Mazor E. (1972) Paleotemperatures and other hydrological parameters deduced from noble gases dissolved in groundwaters ; Jordan Rift Valley, Israël. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 36, 1321-1336.
- Mazor E. and Bosch A. (1987) Noble gases in formation fluids from deep sedimentary basins : a review. *Applied Geochemistry*, 2, 621-627.
- Mazor E., van Everdingen R. O., and Krouse H. R. (1983) Noble gas evidence for geothermal activity in a karstic terrain : Rock Mountains, Canada. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 47, 1111-1115.
- Mégnién C. (1979) Hydrogéologie du centre du bassin de Paris. *Mémoire BRGM 98*, pp 532.
- Mégnién C. (1980) Synthèse géologique du Bassin de Paris - Vol.I. *Mémoire BRGM 101*, pp 466.
- Melloul A. (1979) Connaissance hydrogéologique des grands aquifères profonds en milieu poreux et à données peu nombreuses. Méthodologie d'étude basée sur les paramètres géochimiques et isotopiques. Thèse de 3eme cycle, Université de Neufchâtel. pp 266.
- Menjot A. and Lambert M. (1991) Hydrodynamique des aquifères profonds et incidence des effets de densité. *Hydrogeology*, 4, 311-320.
- Menjot A., Lambert M., and Matray J. M. (1993) Flow of formation water in the Jurassic of the Paris Basin and its effects. *Transactions of the Royal Society, London*, 344, 159-169.
- Meynier V. and Marty B. (1991) Helium isotopes in fluids from the GPF3 scientific borehole at Couy, Cher County, France : implication for deep circulations in the Paris sedimentary basin. *Proc. 4th AGU Chapman Conference*.
- Michard G. and Bastide J. P. (1988) Etude géochimique de la nappe du Dogger du Bassin Parisien. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 35, 151-163.
- Minoux G. (1967) Observations complémentaires sur la couverture triasique et son substratum dans la région occidentale des Vosges. Nouveaux forages dans les bassins de Vittel, Contrexéville et Martigny-les-Bains. *Bull. Soc. géol. France* (7), IX, 679-690.
- Mook W. G., Bommerson J. C., and Staverman W. H. (1974) Carbon isotope fractionation between dissolved bicarbonate and gaseous carbon dioxide. *Earth and Planetary Science Letters*, 22, 169-176.
- Morrisson P. and Pine J. (1955) Radiogenic origin of the helium isotopes in rocks. *Ann. N.Y. Acad. Sci.*, 62, 69-92.
- Morrisson T. J. and Johnstone N. B. B. (1954) Solubilities of the inert gases in water. *Journal of Chemical Society*, 3441-3446.
- Morrisson T. J. and Johnstone N. B. B. (1955) The salting-out of non-electrolytes. Part III. The inert gases and sulphur hexafluoride. *J. Chem. Soc.*, 3655-3659.

- Murray C. N. and Riley J. P. (1970) The solubility of gases in distilled water and seawater - III argon. *Deep Sea Res.*, 17, 203-209.
- Murty S. V. S. (1992) Noble gases and nitrogen in natural gases from Gujarat, India. *Chemical Geology*, 94, 229-240.
- 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.
- Oana S. (1957) Bestimmung des Argons im besonderen Hinblick auf gelöste Gase in natürlichen Wässern. *J. Earth Sci., Nagoya University*, 5, 103-124.
- Ohsumi T. and Horibe Y. (1984) Diffusivity of He and Ar in deep sediments. *Earth and Planetary Science Letters*, 70, 61-68.
- O'Nions R. K., Evensen N. M., and Hamilton P. J. (1979) Geochemical modeling of mantle differentiation and crustal growth. *Journal of Geophysical Research*, 84, 6091-6101.
- O'Nions R. K. and Oxburgh E. R. (1983) Heat and helium in the Earth. *Nature*, 306, 429-436.
- O'Nions R. K. and Oxburgh E. R. (1988) Helium, volatile fluxes and the development of continental crust. *Earth and Planetary Science Letters*, 90, 331-347.
- O'Nions R. K. and Tolstikhin I. N. (1994) Behaviour and residence times of lithophile and rare gas tracers in the upper mantle. *Earth and Planetary Science Letters*, 124, 131-138.
- O'Nions R. K. and Tolstikhin I. N. (1996) Limits on mass flux between lower and upper mantle and stability of layering. *Earth and Planetary Science Letters*, 139, 213-222.
- Oxburgh and O'Nions. (1987) Helium loss, tectonics and terrestrial heat budget. *Science*, 237, 1583-1588.
- Oxburgh E. R., O'Nions R. K., and Hill R. I. (1986) Helium isotopes in sedimentary basins. *Nature*, 324, 632-635.
- Ozima M. and Kudo K. (1972) Excess argon in submarine basalts and an earth atmosphere evolution model. *Nature Physical Science*, 239, 23-24.
- Ozima M. and Podosek F. A. (1983) Noble gas geochemistry. *Cambridge University Press*. pp 369.
- Ozima M., Takayanagi M., Zashu S., and Amari S. (1984) High $3\text{He}/4\text{He}$ in ocean sediments. *Nature*, 311, 448-450.
- Ozima M. and Zanhle K. (1993) Mantle degassing and atmospheric evolution : noble gas view. *Geochemical Journal*, 27, 185-200.
- Ozima M. and Zashu S. (1988) Solar-type Ne in Zaïre cubic diamonds. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 52, 19-25.
- Ozima M. and Zashu S. (1991) Noble gas state of the ancient mantle as deduced from noble gases in coated diamonds. *Earth and Planetary Science Letters*, 105, 13-27.
- Payne B. R. and Yurtsever Y. (1974) Environmental isotopes as a hydrological tool in the Nicaragua. *Isotope Techniques in Groundwater Hydrology LAEA*, 193.
- Pearson F. J. (1965) Use of $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratios to correct radiocarbon ages of material initially diluted by limestone. *6th international conference on radiocarbon and tritium dating*, 357.
- Pearson F. J. (1991) Applied Isotope Hydrogeology - A case study in Northern Switzerland. Nagra Technical Report NTB 88-01.
- Pearson Jr F. J. and White D. E. (1967) Carbon 14 Ages and Flow Rates of Water in Carrizo Sand, Atoscosa County, Texas. *Water Resources Research*, 3, 251-261.
- Philipps F. M. (1981) $3\text{He}-4\text{He}$ dating of groundwater. *Workshop on isotope hydrology applied to the evaluation of deeply buried repositories for radioactive wastes*.
- Pik R. and Marty B. (1999) (U+Th)/He thermochronometry : extension of the method to more U-bearing minerals. *EOS transactions, AGU, 1999 Fall Meeting, Vol. 80, N° 46, p. 1169*.
- Pik R., Raoult Y., Kipfer R., and Marty B. (1998) Noble gases in groundwater from the Albian aquifer (Paris Basin) : fluid dynamics and paleoclimatic record. In: J. Schott (Editor), *V.M. Goldschmidt Conference. Mineralogical Magazine, Toulouse, pp. 1180-1181*.

- Pinti D. and Marty B. (1993) Hydrocarbon transfers in Paris Basin (France) : an helium isotope study. *Geofluids'93. A contribution to an international conference on fluid evolution, migration and interaction in rocks*, 286-289.
- Pinti D., Matray J. M., Marty B., and Matsuda J. (1995a) Coupling noble gases and stable isotopes in groundwaters of the Paris Basin. *Geochemical Society of Japan Annual Meeting*, 100.
- Pinti D. and Van Drom E. (1998) Paleotemp: a mathematica program for evaluating paleotemperatures from the concentration of atmosphere-derived noble gases in groundwater. *Computers & Geosciences*, 24, 33-41.
- Pinti D. L. (1993) Géochimie isotopique des gaz rares dans le pétrole du Bassin Parisien. Implications sur la migration des huiles et la circulation hydrodynamique, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI. pp 323.
- Pinti D. L. and Marty B. (1995) Noble gases in crude oils from the Paris Basin, France : Implications for the origin of fluids and constraints on oil-water-gas interactions. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59, 3389-3404.
- Pinti D. L. and Marty B. (1997) Atmosphere-derived noble gas evidence for the preservation of ancient waters in sedimentary basins. *Geology*, 25, 111-114.
- Pinti D. L. and Marty B. (1998) The origin of helium in deep sedimentary aquifers and the problem of dating very old groundwaters. In *Dating and duration of fluid flow and fluid-rock interaction*, Vol. 144 (ed. J. Parnell), pp. 53-68. Geological Society, Special Publications.
- Pinti D. L., Matray J. M., and Marty B. (1995b) Helium sources and mixing in a sedimentary basin. Trace the evolution of fluids in the Paris Basin, France, coupling helium, radiogenic and stable isotopes.
- Plummer L. N., Busby J. F., Lee R. W., and Hanshaw. (1990) Geochemical modeling of the Madison Aquifer in parts of Montana, Wyoming and South Dakota. *Water Resources Research*, 26, 1981-2014.
- Polyak B. G. and Tolstikhin I. N. (1985) Isotopic composition of the Earth's helium and the problem of the motive forces of tectonogenesis. *Chemical Geology*, 52, 9-33.
- Pomerol C. (1974) Le Bassin Parisien. In *Géologie de la France*, Vol. 1 (ed. Doin), pp. 230-258. J. Debelmas.
- Poreda R. J. and Farley K. A. (1992) Rare gases in Samoan xenoliths. *Earth and Planetary Science Letters*, 113, 129-144.
- Porcelli D. and Wasserburg G. J. (1995) Mass transfer of helium, neon, argon and xenon through a steady-state upper mantle. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59, 4921-4937.
- Potter R. W. and Clyne M. A. (1978) The solubility of noble gases He, Ne, Ar, Kr and Xe in water up to the critical point. *J. Solution Chem.*, 73, 498-505.
- Press W. H., Flannery B. P., Teukolsky S. A., and Vetterling W. T. (1989) *Numerical recipes : The art of scientific computing (FORTRAN Version)*.
- Price P. B. and Walker R. M. (1963) A simple method of measuring low uranium concentrations in natural crystals. *Applied Physical Letters*, 2, 23-25.
- Raoult Y., Boulègue J., Lauerjat J., and Olive P. (1997) Contribution de la géochimie à la compréhension de l'hydrodynamisme de l'aquifère de l'Albien dans le Bassin de Paris. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences (Paris), Sciences de la terre et des planètes*, 325, 419-425.
- Raoult Y., Lauerjat J., Boulègue J., Olive P., and Bariac T. (1998) Etude hydrogéologique d'une ligne d'écoulement de l'aquifère de l'Albien dans le bassin de Paris entre Gien-Auxerre et Paris. *Bulletin de la Société géologique de France*, 169, 453-457.
- Reardon E. J. and Fritz P. (1978) Computer modelling of groundwater ¹³C and ¹⁴C isotope compositions. *Journal of Hydrology*, 36, 201-224.
- Rebour V. (1995) Quantification de la diffusion moléculaire d'hélium dans les roches argileuses saturées en eau. Application à une marne du Callovo-Oxfordien du nord-est du Bassin Parisien, Thèse ENSM de Paris. pp 188.
- Ricour J. (1960) La genèse des niveaux salifères - Cas du Trias français. *Revue de Géographie physique et de Géologie dynamique*, 2, 139-148.
- Rojas J. (1989) Caractérisation et modélisation du réservoir géothermique du Dogger, Bassin Parisien, France. BRGM. pp 240.

- Rozanski K. (1985) deuterium and oxygen-18 in european groundwaters-links to atmospheric circulation in the past. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 52, 349-363.
- Rudolph J., Rath H. K., and Sonntag C. (1984) Noble gases and stable isotopes in ^{14}C -dated paleowaters from Central Europe and the Sahara. In *Isotope Hydrology 1983*, pp. 467-477. IAEA.
- Sarda P., Staudacher T., and Allegre C. J. (1985) $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ in MORB glasses : constraints on atmosphere and mantle evolution. *Earth and Planetary Science Letters*, 72, 357-375.
- Sarda P., Staudacher T., and Allègre C. J. (1988) Neon isotopes in submarine basalts. *Earth and Planetary Science Letters*, 91, 73-88.
- Schlosser P., Stute M., Sonntag C., and Otto Münnich K. (1989) Tritogenic ^3He in shallow groundwater. *Earth and Planetary Science Letters*, 94, 245-256.
- Seuss H. E. (1980) The radiocarbon record in tree rings of the last 8000 years. *10th International ^{14}C conference, Radiocarbon*, 200-209.
- Shieh Y. N. and Taylor H. P. (1969) Oxygen and carbon isotope studies of contact metamorphism of carbonate rocks. *Journal of Petrology*, 10, 307-331.
- Smith S. P. and Kennedy B. M. (1983) The solubility of noble gases in water and in NaCl brine. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 47, 503-515.
- Smith S. P. and Kennedy B. M. (1985) Noble gas evidence for two fluids in the Baca (Valles Caldera) geothermal reservoir. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49, 893-902.
- Solomon D. K., Hunt A., and Poreda R. J. (1996) Source of radiogenic helium 4 in shallow aquifers: implications for dating young groundwater. *Water Resources Research*, 32, 1805-1813.
- Soukatchoff V. (1988) Contribution à la connaissance de la géochimie de la nappe des Grès inférieurs du Trias. *Hydrogéologie*, 3, 209-226.
- Staudacher T. (1987) Upper mantle origin for Harding County well gases. *Nature*, 325, 605-607.
- Staudacher T. and Allègre C. J. (1982) Terrestrial xenology. *Earth and Planetary Science Letters*, 60, 389-406.
- Staudacher T., Sarda P., Richardson S. H., Allègre C. J., Sagna I., and Dmitriev L. V. (1989) Noble gases in basalt glasses from a Mid-Atlantic Ridge topographic high at 14°N : geodynamic consequences. *Earth and Planetary Science Letters*, 96, 119-133.
- Steiger R. H. and Jäger E. (1977) Subcommission of geochronology: convention on the use of decay constants in geo- and cosmo-chronology. *Earth and Planetary Science Letters*, 36, 359-362.
- Storzer D. and Selo M. (1974) Ages par la méthode des traces de fission de basaltes prélevés dans la vallée axiale de la dorsale médio-atlantique aux environs de 37°N . *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences (Paris), série D*, 279, 1649-1651.
- Stute M. and Schlosser P. (1993) Principles and applications of the noble gas paleothermometer. In *Climate change in continental isotopic records. American Union Geophysical Monograph*, Vol. 78 (ed. Lohmann P.K., Mc Kenzie J., and Savin S.), pp. 89-100.
- Stute M. and Sonntag C. (1989) Paleotemperatures derived from noble gases dissolved in groundwater and in relation to soil temperature. *Isotopes of noble gases as tracers in environmental studies, LAEA Vienna*. 111-121.
- Stute M., Sonntag C., Deak J., and Schlosser P. (1992) Helium in deep circulating groundwater in the Great Hungarian plain: Flow dynamics and crustal and mantle helium fluxes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 56, 2051-2067.
- Sugisaki R. (1961) Measurement of effective flow velocity of groundwater by means of dissolved gases. *American Journal of Science*, 259, 144-153.
- Tagaki J. (1970) *Nature*, 227, 362-363.
- Tamers M. A. (1975) The validity of radiocarbon dates on groundwater. *Geophysical Survey*, 2, 217-239.

- Tolstikhin I., Lehmann B. E., Loosli H. H., and Gautschi A. (1996) Helium and argon isotopes in rocks, minerals and groundwaters : A case study in northern Switzerland. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60, 1497-1514.
- Tolstikhin I. and Marty B. (1998) The evolution of terrestrial volatiles : a view from helium, neon, argon and nitrogen modelling. *Chemical Geology*, 147, 27-52.
- Tolstikhin I. N. and Kamenskiy I. L. (1969) Determination of groundwater ages by the T-3He method. *Geochem. Int.*, 6, 810-811.
- Torgersen T. (1980) Controls on pore fluid concentration of 4He and 222Rn and the calculation of 4He/222Rn ages. *Journal of Geochemical Exploration*, 13, 57-75.
- Torgersen T. and Clarke W. B. (1985) Helium accumulation in groundwater, I : An evaluation of sources and the continental flux of crustal 4He in the Great Artesian Basin, Australia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49, 1211-1218.
- Torgersen T. and Clarke W. B. (1987) Helium accumulation in groundwater III. Limits on helium transfer across the mantle crust boundary beneath Australia and the magnitude of mantle degassing. *Earth and Planetary Science Letters*, 84, 345-355.
- Torgersen T., Drenkard S., Farley K., Schlosser P., and Shapiro A. (1994) Mantle helium in groundwater of the Mirror Lake Basin, New Hampshire, USA. *Noble gas geochemistry and cosmochemistry, Tokyo (ed Matsuda)*, 279-292.
- Torgersen T., Drenkard S., Stute M., Schlosser P., and Shapiro A. (1995) Mantle helium in groundwaters of eastern North America: Time and space constraints on sources. *Geology*, 23, 675-678.
- Torgersen T. and Ivey G. N. (1985) Helium accumulation in groundwater. II. mechanisms for the accumulation of the crustal 4He degassing flux. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49, 2445-2452.
- Torgersen T., Kennedy B. M., Hiyagon H., Chiou K. Y., Reynolds J. H., and Clarke W. B. (1989) Argon accumulation and the crustal degassing flux of ⁴⁰Ar in the Great Artesian Basin, Australia. *Earth and Planetary Science Letters*, 92, 43-56.
- Torgersen T. and O'Donnell J. (1991) The degassing flux from the solid Earth : release by fracturing. *Geophysical Research Letters*, 18, 951-954.
- Trescott P. C., Pinder G. F., and Larson S. P. (1976) Finite difference model for aquifer simulations in two dimensions with results of numerical experiments. In *Technique of Water Resources Investigations of the USGS, Book 7, Chap. Automated data processing and computation*. U.S Geol. Survey.
- Troughton J. H. (1972) Carbon isotope fractionation by plants. *Proc. 8th Int. Conf. on Radiocarbon Dating*, 421-438.
- Valley J. W. (1986) Stable isotope geochemistry of metamorphic rocks. In *Stables Isotopes in High Temperature Geologic Processes*, Vol. 16 (ed. Ribbe), pp. 445-487. Mineralogical Society America, Reviews in Mineralogy.
- Verniani F. (1966) The total mass of the Earth's atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, 71, 385-391.
- Vostrov G. A. and Bol'shakov O. I. (1966) Permeability of glasses for helium. *Prib. Tekh. Eksp.*, 2, 112-116.
- Vuillaume Y. (1971) Utilisation des méthodes isotopiques et hydrochimiques en hydrogéologie : application à l'étude de la nappe de l'Albien dans le Bassin de Paris. Thèse de 3eme cycle, Université Paris VI. pp 101.
- Wakita H. and Sano Y. (1983) 3He/4He ratios in CH4-rich gases suggest magmatic origin. *Nature*, 305, 792-794.
- Weber C. (1972) Le socle antétriasique sous la partie sud du Bassin de Paris d'après les données géophysiques. Bull. BRGM, sect II, Géol. Appliquée, n°3 et 4.
- Wei H. F. (1990) Modélisation tridimensionnelle du transfert d'eau, de chaleur et de masse dans l'aquifère géothermique du Dogger dans le Bassin de Paris. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris. pp 228.
- Wei H. F., Ledoux E., and de Marsily G. (1990) Regional modelling of groundwater flow and salt and environmental tracer transport in deep aquifers in the Paris Basin. *Journal of Hydrology*, 120, 341-358.
- Weiss R. F. (1968) Piggyback sampler for dissolved gas studies on sealed water samples. *Deep Sea Res.*, 15, 721-735.
- Weiss R. F. (1970) The solubility of nitrogen, oxygen, and argon in water and seawater. *J. Chem. Eng. Data*, 16, 235-241.
- Weiss R. F. (1971) Solubility of helium and neon in water and seawater. *J. Chem. Eng. Data*, 16, 235-241.

- Wendling J. (1996) Site de l'Est : Modélisation hydrogéologique régionale - étape 2. *Rapport ANDRA B RP 0 ANT 96-122*.
- Wendling J. (1997) Site de l'Est : Modélisation hydrogéologique régionale - étape 3. rapport ANDRA n° B RP O ANT 97-029/A.
- Wetherill G. W. (1954) Variations in the isotopic abundances of neon and argon extracted from radioactive minerals. *Phys. Rev.*, 96, 679-683.
- Wigley T. M. L., Plummer L. N., and Pearson F. J. (1978) Mass transfer and carbon isotope evolution in natural water systems. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 42, 1117-1139.
- Wilson G. B. and Mc Neill G. W. (1997) Noble gas recharge temperatures and the excess air component. *Applied Geochemistry*, 12, 747-762.
- Wolf R. A., Farley K. A., and Silver L. T. (1996) Helium diffusion and low temperature thermochronometry of apatite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60, 4231-4240.
- Worden R. H. and Matray J. M. (1993) Cross-formational flow in the Paris Basin. In *Extended abstracts from Geofluids '93. Contributions to an International Conference on Fluid Evolution, Migration and Interaction in Rocks* (ed. A. H. R. a. N. R. M. Ed. by J. Parnell), pp. 299-303.
- Worden R. H. and Matray J. M. (1995) Cross formation flow in the Paris Basin. *Basin Research*, 7, 53-66.
- Yeh H. W. (1980) D/H ratios and late-stage dehydration of shales during burial. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44, 341-352.
- Zaikowski A., Kosanke B. J., and Hubbard N. (1987) Noble gas composition of deep brines from Palo Duro Basin, Texas. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 51, 73-84.
- Zartman R. E., Wasserburg G. J., and Reynolds J. H. (1961) Helium, argon and carbon in some natural gases. *Journal of Geophysical Research*, 66, 277-306.
- Zielinski R. A. (1978) Uranium abundances and distribution in associated glassy and crystalline rhyolites of the Western United States. *Geological Society of America Bulletin*, 89, 409-414.
- Zindler A. and Hart S. (1986) Chemical Geodynamics. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 14, 493-571.
- Zito R., Donahue D. J., Davis S. N., Bentley H. W., and Fritz P. (1980) Possible sub-surface production of ^{14}C . *Geophysical Research Letters*, 7, 235-238.

ANNEXES :

√ Annexe 1 : Analyses chimiques des roches sédimentaires de l'Est du Bassin Parisien

√ Annexe 2 : Production radiogénique dans les roches à partir des concentrations en éléments parents

√ Annexe 3 : Spectres R.X. des roches sédimentaires analysées

√ Annexe 4 : Méthode de détermination du modèle de correction à appliquer aux âges ^{14}C

√ Annexe 5 : Compléments d'information sur la modélisation

ANNEXE I : ANALYSES CHIMIQUES DES ROCHES SEDIMENTAIRES DE L'EST DU BASSIN PARISIEN

Méthode d'analyse SARM

Préparation de l'échantillon

- Perte au feu : Grillage à 1000 °C - Gravimétrie (balance automatisée pilotée par ordinateur).
- Fusion au métaborate de lithium (four tunnel automatique), suivie d'une mise en solution acide (banc de mise en solution robotisé).

La solution obtenue est analysée :

- directement par ICP-ES (Jobin-Yvon JY 70 Type II) pour les majeurs et les mineurs (Si, Al, Fe total, Mn, Mg, Ca, Na, K, P, Ti, Perte au feu, Sc) ;
- après dilution par ICP-MS (Perkin-Elmer ELAN 5000) pour les traces (As, Ba, Be, Bi, Cd, Ce, Co, Cr, Cs, Cu, Dy, Er, Eu, Ga, Gd, Ge, Hf, Ho, In, La, Lu, Mo, Nb, Nd, Ni, Pb, Pr, Rb, Sb, Sm, Sn, Sr, Ta, Tb, Th, U, V, W, Y, Yb, Zn, Zr).

Spectrométrie Absorption Atomique et émission de flamme (Perkin-Elmer 4000 et 5100 PC)

- Fusion LiBO_2 : **Al, Ca, Co, Cr, Fe, K, Mg, Mn, Na, Ni, Si**
- Extraction : **Be, Cd, Pb, Sn**
- Attaque acide :
- HF, HClO_4 : **Ba, Cu, Li, Sr, V, Zn, Cs, Rb**
- HF, HNO_3 - Extraction : **Ag**
- HF, HCl, HNO_3 - Séparation sur résines : **As** (méthode des hydrures)
- H_2SO_4 , HNO_3 : **Hg** (Méthode de l'amalgame)

Absorptiométrie (Beckman DU 62)

- Fusion LiBO_2 : **Ti, P_2O_5**
- Fusion Na_2CO_3 : **Cl**
- Fusion Na_2CO_3 - séparation sur résines : **B**
- Attaque acide HF, HClO_4 , HNO_3 - Extraction : **Mo, W**

Gravimétrie

- Séchage 110°C : **H_2O**
- Grillage 1000 °C : **Perte au feu**

Remarque : la vérification des analyses est effectuée au moyen de standards géochimiques introduits dans les séries, traités dans les mêmes conditions que les échantillons et dosés comme des inconnus.

Précisions analytiques sur les mesures chimiques

| ICP - AES | | | | |
|-----------|-----------|----------|----------|-----------|
| Element | > 10 mg/l | > 5 mg/l | > 1 mg/l | LD (µg/l) |
| Si | 5 | 5 | | 2,1 |
| Al | 5 | 5 | 10 | 0,8 |
| Fe | 5 | 5 | 10 | 0,6 |
| Mn | 5 | 5 | 5 | 0,1 |
| Mg | 5 | 5 | 10 | 0,9 |
| Ca | 5 | 5 | 10 | 1,5 |
| Na | 5 | 5 | 10 | 0,9 |
| K | 5 | 5 | 15 | 0,9 |
| Ti | 5 | 5 | 5 | 0,5 |
| P | 5 | 5 | 10 | 1,2 |

Tableau A1 : Incertitudes moyennes en %, englobant reproductibilité et justesse, sur les mesures chimiques des éléments majeurs effectuées par ICP-AES. (LD : limite de détection).

| ICP - MS | | | | | | | | | |
|----------|------|------|------|--------|----|------|------|------|--------|
| | 100 | 50 | 10 | LD | | 100 | 50 | 10 | LD |
| | µg/l | µg/l | µg/l | (µg/l) | | µg/l | µg/l | µg/l | (µg/l) |
| As | 3,8 | 3,0 | 5,1 | 0,2 | Ni | 2,2 | 4,1 | 4,7 | 0,5 |
| Ba | 3,6 | 2,4 | 7,6 | 0,2 | Pb | 1,1 | 1,5 | 1,3 | 0,2 |
| Be | 4,7 | 4,3 | 9,5 | 1,0 | Rb | 4,6 | 3,1 | 5,0 | 0,2 |
| Bi | 1,8 | 5,7 | 32,8 | 0,5 | Sb | 0,8 | 1,9 | 2,9 | 0,2 |
| Cd | 2,9 | 3,1 | 6,2 | 0,5 | Sn | 0,9 | 2,8 | 7,9 | 0,2 |
| Co | 2,1 | 3,3 | 3,3 | 0,2 | Sr | 2,0 | 3,3 | 12,5 | 1,0 |
| Cr | 2,2 | 5,0 | 7,6 | 1,0 | U | 1,2 | 3,9 | 2,2 | 0,2 |
| Cs | 1,2 | 1,8 | 2,7 | 0,2 | V | 1,5 | 3,4 | 2,3 | 0,2 |
| Cu | 0,9 | 2,5 | 3,2 | 1,0 | W | 1,8 | 2,8 | 5,0 | 0,5 |
| Ga | 2,6 | 1,9 | 3,1 | 0,5 | Zn | 1,7 | 2,0 | 11,4 | 2,0 |
| Mo | 1,0 | 1,5 | 1,9 | 0,2 | In | | | 18,2 | 0,2 |

Tableau A2 : Incertitudes moyennes en %, englobant reproductibilité et justesse, sur les mesures chimiques des éléments en trace effectuées par ICP-MS (solution standard 100 µg/l sur Elan 5000). LD : limite de détection.

COMPOSITION CHIMIQUE DES ROCHES SEDIMENTAIRES DE L'EST DU BASSIN

Majeurs

| | MSE 1492 | MSE 1138 | MSE 198 | MSE 85 | MSE 1122 | MSE 1166 | MSE 1494 | MSE 1489 | MSE 1497 | HTM 2017 | HTM 1660 | HTM 2037 | HTM 1943 | Gres | Calcaire |
|------------------------------------|-------------|-------------|------------|-----------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|--------|----------|
| SiO₂ | 46.24 | 0.87 | 0.58 | 5.38 | 0.57 | 1.18 | 31.42 | 45.84 | 46.43 | 44.48 | 46.97 | 45.07 | 52.32 | 94.22 | 5.05 |
| Al₂O₃ | 14.49 | 0.14 | 0.25 | 1.89 | 0.33 | 0.39 | 10.94 | 7.87 | 12.52 | 17.29 | 16.96 | 16.62 | 18.03 | 2.82 | 0.6 |
| Fe₂O₃ | 5.34 | 0.11 | 0.1 | 0.76 | 0.37 | 0.29 | 5.71 | 2.85 | 3.79 | 5.99 | 5.09 | 6.02 | 6.77 | 0.35 | 1.07 |
| MnO | 0.04 | | | | | | 0.03 | 0.03 | 0.02 | 0.09 | 0.04 | 0.08 | 0.07 | | 0.02 |
| MgO | 2.64 | 0.72 | 0.76 | 1.27 | 0.67 | 1.74 | 2.71 | 1.93 | 1.82 | 2.24 | 2.32 | 2.63 | 1.98 | 0.07 | 0.55 |
| CaO | 10.14 | 54.69 | 54.55 | 49.82 | 54.77 | 52.65 | 21.36 | 18.57 | 14.13 | 9.31 | 8.26 | 9.51 | 3.85 | 0.02 | 50.67 |
| Na₂O | 0.3 | 0.04 | | 0.05 | | 0.15 | 0.24 | 0.42 | 0.22 | 0.61 | 0.63 | 0.67 | 0.73 | 0.08 | 0.03 |
| K₂O | 3.16 | 0.04 | 0.05 | 0.45 | 0.04 | 0.1 | 2.39 | 2.09 | 2.7 | 2.46 | 2.95 | 2.51 | 2.65 | 1.87 | 0.14 |
| TiO₂ | 0.78 | | 0.02 | 0.08 | | 0.02 | 0.57 | 0.46 | 0.7 | 0.85 | 0.91 | 0.78 | 0.93 | 0.06 | 0.04 |
| P₂O₅ | 0.26 | 0.15 | 0.21 | 0.21 | 0.19 | 0.21 | 0.24 | 0.13 | 0.18 | 0.36 | 0.41 | 0.28 | 0.34 | 0.06 | 0.22 |
| PF | 15.46 | 43.09 | 43.30 | 40.01 | 42.89 | 43.02 | 23.66 | 18.91 | 16.96 | 15.65 | 14.06 | 15.20 | 11.34 | 0.6 | 40.91 |
| Total | 98.84 | 99.85 | 99.82 | 99.92 | 99.85 | 99.75 | 99.27 | 99.09 | 99.46 | 99.32 | 98.59 | 99.37 | 99.00 | 100.15 | 99.3 |

Tableau A3 : Composition chimique (%) des roches sédimentaires analysées par ICP-AES au SARM-CRPG.

| | MSE 1492 | MSE 1138 | MSE 198 | MSE 85 | MSE 1122 | MSE 1166 | MSE 1494 | MSE 1489 | MSE 1497 | HTM 2017 | HTM 1660 | HTM 2037 | HTM 1943 | Gres | Calcaire |
|-----------|-------------|-------------|------------|-----------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------|----------|
| As | 15 | 0.84 | 0.69 | 1.74 | 1.85 | 0.75 | 16 | 6.62 | 8.26 | 12.7 | 10.3 | 10.7 | 8.57 | 3.68 | 14.8 |
| Ba | 233 | 5.8 | 12 | 92 | 24 | 163 | 161 | 177 | 259 | 305 | 282 | 268 | 521 | 316 | 18 |
| Be | 1.98 | traces | traces | traces | traces | 0.07 | 1.25 | 1.36 | 1.54 | 2.52 | 1.98 | 1.24 | 1.4 | 0.36 | 0.2 |
| Bi | 0.32 | 0.01 | 0.01 | 0.06 | 0.02 | 0.03 | 0.22 | 0.14 | 0.03 | 0.32 | 0.53 | 0.3 | 0.33 | 0.02 | |
| Cd | 0.37 | 0.12 | 0.42 | 0.14 | 0.76 | 0.08 | 0.29 | 0.1 | 0.16 | 0.3 | 0.03 | 0.17 | 0.26 | 0.05 | 0.23 |
| Ce | 64.84 | 3.18 | 2.82 | 10.1 | 4.55 | 2.21 | 54.89 | 53.48 | 65.9 | 83 | 85 | 78.9 | 93.4 | 9.47 | 26.9 |
| Co | 13.9 | 0.57 | 0.78 | 1.85 | 1.69 | 0.99 | 15.4 | 6.33 | 6.9 | 16.1 | 12.9 | 14.6 | 14.8 | 0.98 | 2.22 |
| Cr | 102 | 5.34 | 13.1 | 21.4 | 10.4 | 8.4 | 79.6 | 72.8 | 106 | 105 | 113 | 98.5 | 116 | 3.33 | 31 |
| Cs | 64.27 | 3 | 2.21 | 2 | 1.07 | 1.64 | 28.59 | 7.58 | 111 | 5.44 | 4.04 | 5.52 | 4.24 | 1.36 | 0.11 |
| Cu | 18.1 | 2.6 | 3.7 | 6.1 | 16.1 | 5.2 | 15.9 | 10.8 | 12.2 | 28.3 | 17.5 | 27.4 | 29.7 | 2.5 | 4.9 |
| Dy | 3.78 | 0.283 | 0.56 | 0.64 | 0.48 | 0.16 | 3.39 | 2.85 | 3.89 | 4.96 | 5.19 | 4.79 | 5.38 | 0.87 | 2.2 |
| Er | 1.97 | 0.111 | 0.38 | 0.37 | 0.27 | 0.07 | 1.79 | 1.67 | 2.05 | 2.7 | 2.83 | 2.65 | 2.97 | 0.45 | 1 |
| Eu | 1.11 | 0.07 | 0.15 | 0.17 | 0.12 | 0.05 | 0.98 | 0.84 | 1 | 1.52 | 1.47 | 1.36 | 1.8 | 0.35 | 0.65 |
| Ga | 18.9 | 0.22 | 0.34 | 2.72 | 0.52 | 0.62 | 13.9 | 10.5 | 17.1 | 20.9 | 20.9 | 21 | 21.4 | 2.48 | 0.83 |
| Gd | 4.22 | 0.36 | 0.66 | 0.64 | 0.48 | 0.14 | 4.08 | 3.46 | 4.21 | 5.41 | 5.81 | 5.33 | 6.65 | 0.95 | 2.48 |
| Ge | 1.31 | 0.03 | 0.02 | 0.23 | 0.57 | 0.03 | 0.86 | 0.95 | 1.06 | 1.29 | 1.37 | 1.19 | 1.36 | 0.9 | 0.09 |
| Hf | 4.72 | 0.05 | 0.06 | 0.42 | 0.08 | 0.1 | 3 | 4.55 | 5.1 | 4.81 | 5.31 | 4.32 | 5.49 | 1.11 | 0.76 |
| Ho | 0.73 | 0.05 | 0.14 | 0.13 | 0.08 | 0.03 | 0.63 | 0.57 | 0.78 | 0.94 | 1.01 | 0.93 | 1.04 | 0.191 | 0.43 |
| In | 0.07 | 0.02 | 0.05 | 0.02 | 0.04 | 0.02 | 0.08 | 0.03 | 0.06 | 0.06 | 0.05 | 0.06 | 0.09 | 0.01 | 0.02 |
| La | 33.11 | 1.95 | 6.08 | 5.54 | 3.12 | 1.29 | 31.04 | 26.27 | 36.3 | 41.2 | 40.6 | 39.5 | 42.9 | 6.18 | 16.13 |
| Lu | 0.34 | 0.01 | 0.05 | 0.04 | 0.03 | 0.01 | 0.28 | 0.28 | 0.38 | 0.44 | 0.44 | 0.41 | 0.48 | 0.08 | 0.12 |

Tableau A4 : Composition chimique des roches sédimentaires analysées par ICP-MS au SARM-CRPG.

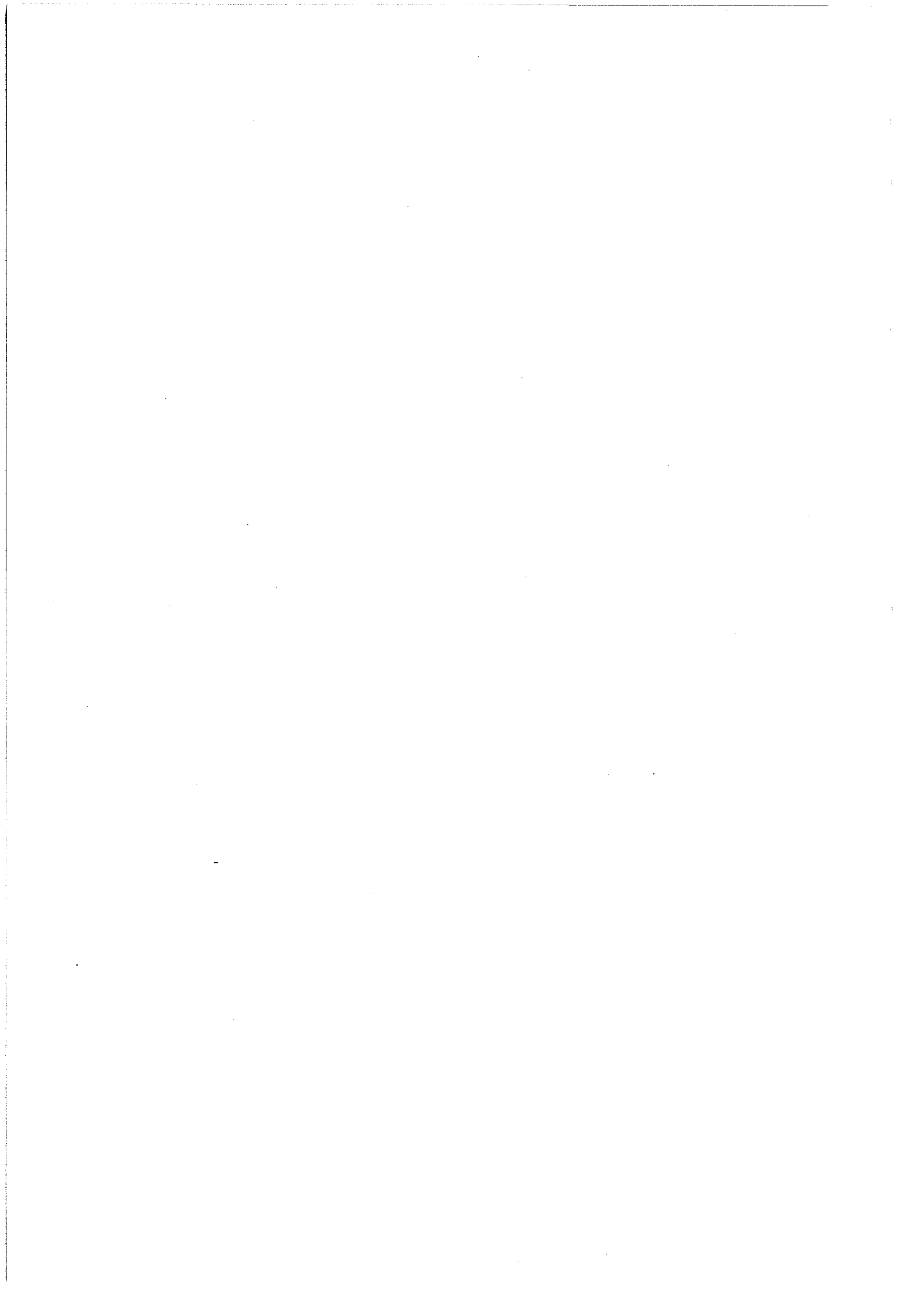
| | MSE 1492 | MSE 1138 | MSE 198 | MSE 85 | MSE 1122 | MSE 1166 | MSE 1494 | MSE 1489 | MSE 1497 | HTM 2017 | HTM 1660 | HTM 2037 | HTM 1943 | Gres | Calcaire |
|-----------|-------------|-------------|------------|-----------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------|----------|
| Mo | 1.05 | 0.86 | 0.36 | 1.25 | 2.39 | 1.14 | 0.89 | 0.49 | 1.01 | 3.32 | 0.65 | 3.05 | 0.97 | 0.35 | 0.07 |
| Nb | 14.54 | 0.22 | 0.22 | 2.04 | 0.381 | 0.45 | 10.75 | 9.81 | 15.5 | 14.6 | 15.3 | 13.9 | 15.6 | 0.79 | 1.07 |
| Nd | 27.22 | 1.57 | 2.71 | 4.07 | 2.38 | 0.96 | 25.89 | 22.66 | 30 | 35.5 | 37.7 | 34.3 | 40.4 | 5.31 | 15.8 |
| Ni | 58.8 | 13.8 | 16.9 | 19 | 17 | 14.2 | 59.1 | 28.7 | 33.9 | 58.7 | 45.9 | 52.8 | 51.8 | 0.61 | |
| Pb | 21.3 | 0.48 | 4.76 | 33.7 | 9.23 | 3.77 | 19.2 | 11.3 | 15.6 | 35.5 | 23 | 23.9 | 30.3 | 10.2 | 3.72 |
| Pr | 7.25 | 0.42 | 0.726 | 1.19 | 0.62 | 0.25 | 6.8 | 5.74 | 7.78 | 9.75 | 9.94 | 9.28 | 10.79 | 1.39 | 4.08 |
| Rb | 119.4 | 1.46 | 2.96 | 24 | 2.7 | 3.88 | 93.45 | 66.69 | 115.6 | 105.7 | 105.5 | 100 | 102 | 57.31 | 4.9 |
| Sb | 0.67 | 0.08 | 0.28 | 0.21 | 0.42 | 0.17 | 0.79 | 0.37 | 0.49 | 0.53 | 0.53 | 0.56 | 0.66 | 0.5 | 0.09 |
| Sm | 4.82 | 0.34 | 0.55 | 0.92 | 0.54 | 0.17 | 4.65 | 4.18 | 5.16 | 6.79 | 7.11 | 6.63 | 7.95 | 0.84 | 3.13 |
| Sn | 2.51 | 0.08 | 0.19 | 0.52 | 0.2 | 0.13 | 1.88 | 2.09 | 2.28 | 2.85 | 2.81 | 2.61 | 2.82 | 0.63 | 0.23 |
| Sr | 326 | 418 | 450 | 460 | 364 | 382 | 418 | 310 | 328 | 300 | 225 | 279 | 199 | 77.8 | 519 |
| Ta | 1.28 | 0.01 | 0.02 | 0.15 | 0.06 | 0.03 | 0.91 | 0.833 | 1.21 | 1.25 | 1.33 | 1.19 | 1.3 | 0.11 | 0.07 |
| Tb | 0.62 | 0.05 | 0.08 | 0.1 | 0.08 | 0.02 | 0.58 | 0.48 | 0.67 | 0.84 | 0.86 | 0.8 | 0.99 | 0.15 | 0.39 |
| Th | 12.17 | 0.19 | 0.19 | 1.36 | 0.27 | 0.23 | 9.24 | 7.82 | 9.68 | 13 | 15.1 | 12.4 | 14.2 | 2.33 | 2.99 |
| Tm | 0.34 | 0.02 | 0.05 | 0.04 | 0.03 | 0.01 | 0.26 | 0.241 | 0.33 | 0.41 | 0.45 | 0.38 | 0.42 | 0.08 | 0.14 |
| U | 2.61 | 1.71 | 1.27 | 1.36 | 1.41 | 1.17 | 2.19 | 1.85 | 2.63 | 3.27 | 3.18 | 3.07 | 2.93 | 0.57 | 0.59 |
| V | 136 | 6.39 | 12.6 | 20.8 | 7.23 | 7 | 107 | 75 | 99.9 | 142 | 123 | 120 | 113 | 3.45 | 50 |
| W | 1.85 | 0.6 | 0.1 | 0.39 | 13.6 | 0.6 | 1.39 | 1.09 | 1.54 | 2.16 | 1.87 | 1.84 | 1.89 | 0.29 | 0.12 |
| Y | 21.6 | 2.39 | 9.6 | 5.21 | 4.36 | 1.15 | 21 | 18.1 | 23.8 | 27.5 | 28.8 | 26.9 | 29.5 | 5.56 | 17.5 |
| Yb | 2.09 | 0.11 | 0.29 | 0.35 | 0.22 | 0.09 | 1.74 | 1.69 | 2.19 | 2.48 | 2.71 | 2.56 | 2.76 | 0.46 | 0.96 |
| Zn | 348 | 2.76 | 17.1 | 18.3 | 121 | 7.99 | 162 | 57.5 | 57.8 | 115 | 72.4 | 74.9 | 126 | 4.99 | 35 |
| Zr | 167 | 2.51 | 3.04 | 21.3 | 4.3 | 5.68 | 107 | 167 | 190 | 170 | 193 | 163 | 200 | 41 | 33.3 |

Tableau A5 : Composition chimique des roches sédimentaires analysées par ICP-MS au S.ARM-CRPG.

**ANNEXE II : PRODUCTION RADIOGENIQUE DANS LES ROCHES
A PARTIR DES CONCENTRATIONS EN ELEMENTS PARENTS**

| Forage | Densité g/cm ³ | U ppm | Th ppm | Li ppm | K ppm | P(⁴ He) mol/g/an | P(³ He) mol/g/an | P(⁴⁰ Ar) mol/g/an |
|--------------------------------|------------------------------|----------|-----------|-----------|----------|---------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|
| Tertiaire/Crétacé supérieur | 2.1 | 1.98 | 6.39 | 38 | 13 400 | 1.89 x 10 ⁻¹⁷ | 3.58 x 10 ⁻²⁵ | 2.32 x 10 ⁻¹⁸ |
| Albien | 2.1 | 1.98 | 6.39 | 38 | 13 400 | 1.89 x 10 ⁻¹⁷ | 3.58 x 10 ⁻²⁵ | 2.32 x 10 ⁻¹⁸ |
| Aptien | 2.1 | 2.7 | 8.75 | 41 | 18 650 | 2.58 x 10 ⁻¹⁷ | 5.27 x 10 ⁻²⁵ | 3.23 x 10 ⁻¹⁸ |
| Néocomien | 2.2 | 2.5 | 8.05 | 45 | 7 000 | 2.38 x 10 ⁻¹⁷ | 5.34 x 10 ⁻²⁵ | 1.21 x 10 ⁻¹⁸ |
| Tithonien | 2.3 | 1.87 | 2.11 | 13 | 3 900 | 1.28 x 10 ⁻¹⁷ | 8.29 x 10 ⁻²⁶ | 6.75 x 10 ⁻¹⁹ |
| Kimméridgien | 2.5 | 1.45 | 2.95 | 36 | 14 650 | 1.16 x 10 ⁻¹⁷ | 2.08 x 10 ⁻²⁵ | 2.53 x 10 ⁻¹⁸ |
| Oxfordien calcaire | 2.6 | 2.2 | 1.7 | 5 | 2 700 | 1.40 x 10 ⁻¹⁷ | 3.50 x 10 ⁻²⁶ | 4.67 x 10 ⁻¹⁹ |
| Callovo-Oxfordien | 2.6 | 2.2 | 9.24 | 60 | 23 000 | 2.37 x 10 ⁻¹⁷ | 7.10 x 10 ⁻²⁵ | 3.98 x 10 ⁻¹⁸ |
| Dogger calcaire | 2.6 | 0.59 | 2.99 | 3 | 1 160 | 7.01 x 10 ⁻¹⁸ | 1.05 x 10 ⁻²⁶ | 2.01 x 10 ⁻¹⁹ |
| Lias | 2.2 | 2.16 | 7.77 | 77 | 22 600 | 2.16 x 10 ⁻¹⁷ | 8.30 x 10 ⁻²⁵ | 3.91 x 10 ⁻¹⁸ |
| Rhétien | 2.6 | 0.57 | 2.33 | 12 | 15 500 | 6.05 x 10 ⁻¹⁸ | 3.63 x 10 ⁻²⁶ | 2.68 x 10 ⁻¹⁸ |
| Trias non détritique | 2.6 | 1 | 2.66 | 20 | 34500 | 8.79 x 10 ⁻¹⁸ | 8.78 x 10 ⁻²⁶ | 5.97 x 10 ⁻¹⁸ |
| Trias détritique | 2.6 | 0.57 | 2.33 | 12 | 15 500 | 6.05 x 10 ⁻¹⁸ | 3.63 x 10 ⁻²⁶ | 2.68 x 10 ⁻¹⁸ |
| Socle | 2.7 | 5.87 | 6.01 | 86 | 40 500 | 3.93 x 10 ⁻¹⁷ | 1.69 x 10 ⁻²⁴ | 7.01 x 10 ⁻¹⁸ |

Tableau A6 : Taux de production des isotopes nucléogéniques d'après leurs concentrations en éléments parents dans la roche réservoir. Analyses effectuées au CRPG (Pinti, 1993 ; Castro, 1995 ; cette étude).



ANNEXE III : SPECTRES R.X. DES ROCHES SEDIMENTAIRES ANALYSEES

Argilites

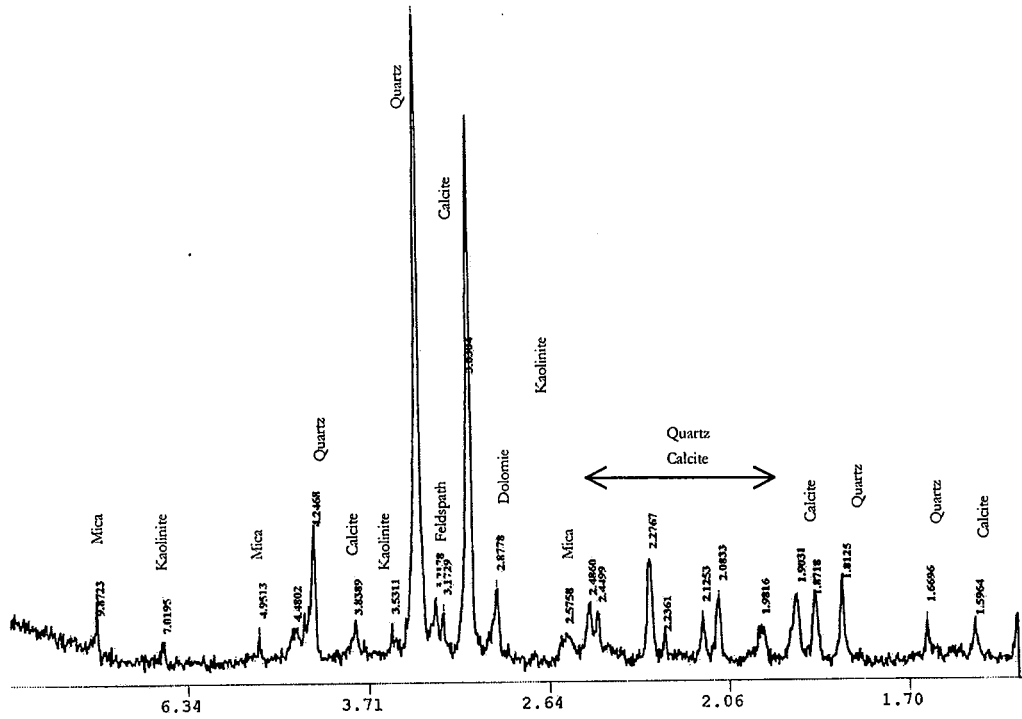


Figure A1 : Spectres R.X. d'un échantillon d'argilites (MSE 1489) du Callovo-Oxfordien.

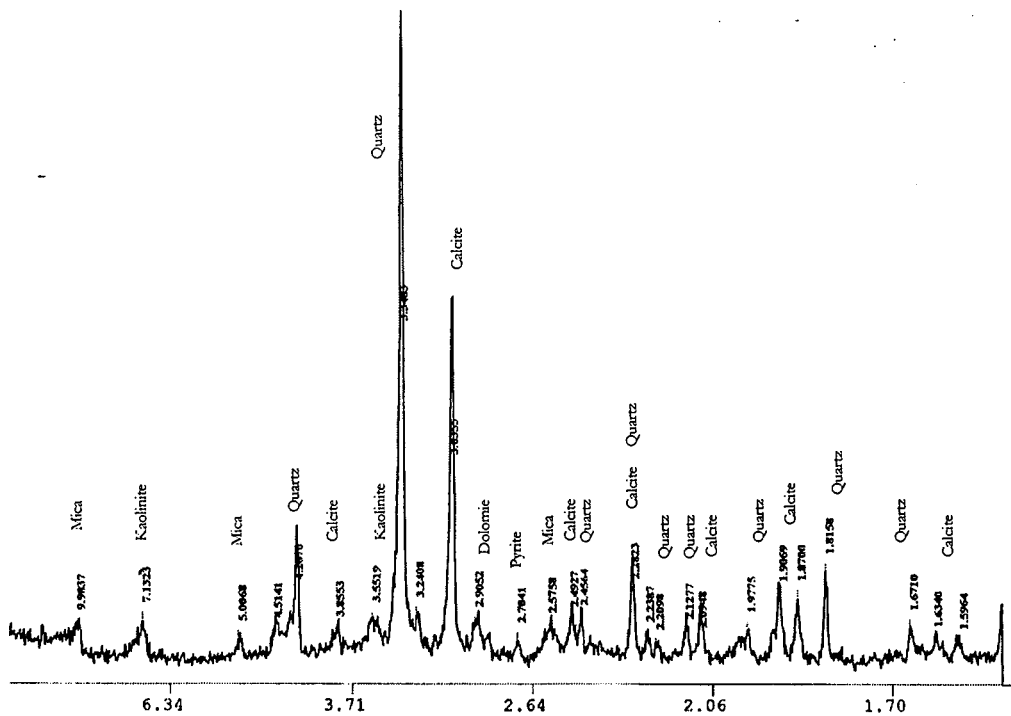


Figure A2 : Spectres R.X. d'un échantillon d'argilites (MSE 1497) du Callovo-Oxfordien.

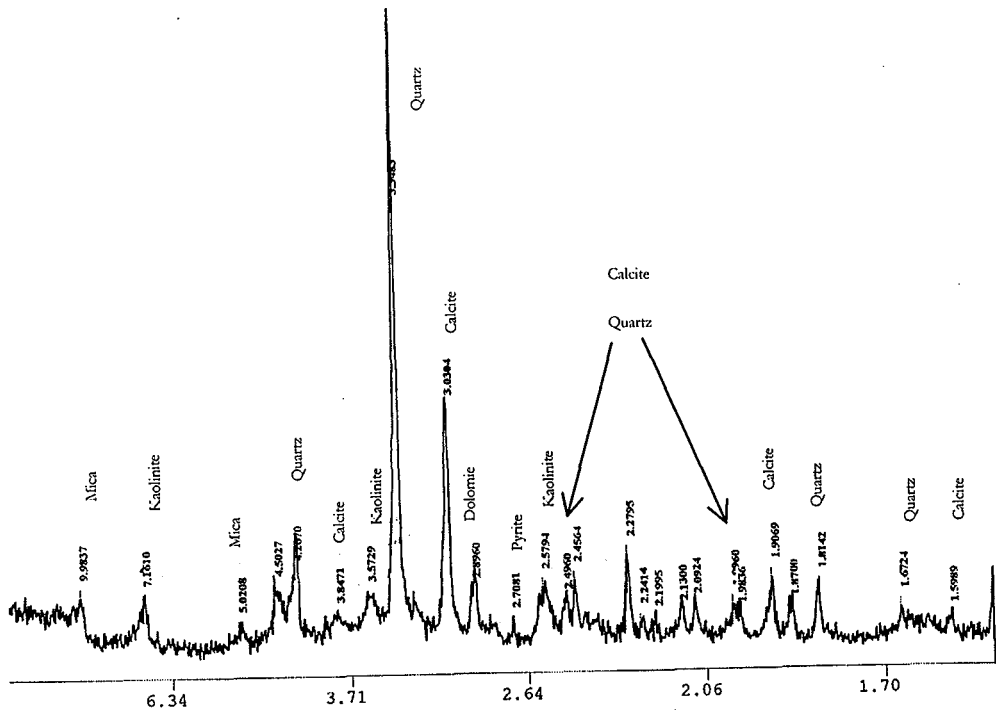


Figure A3 : Spectres R.X. d'un échantillon d'argilites (MSE 1492) du Callovo-Oxfordien.

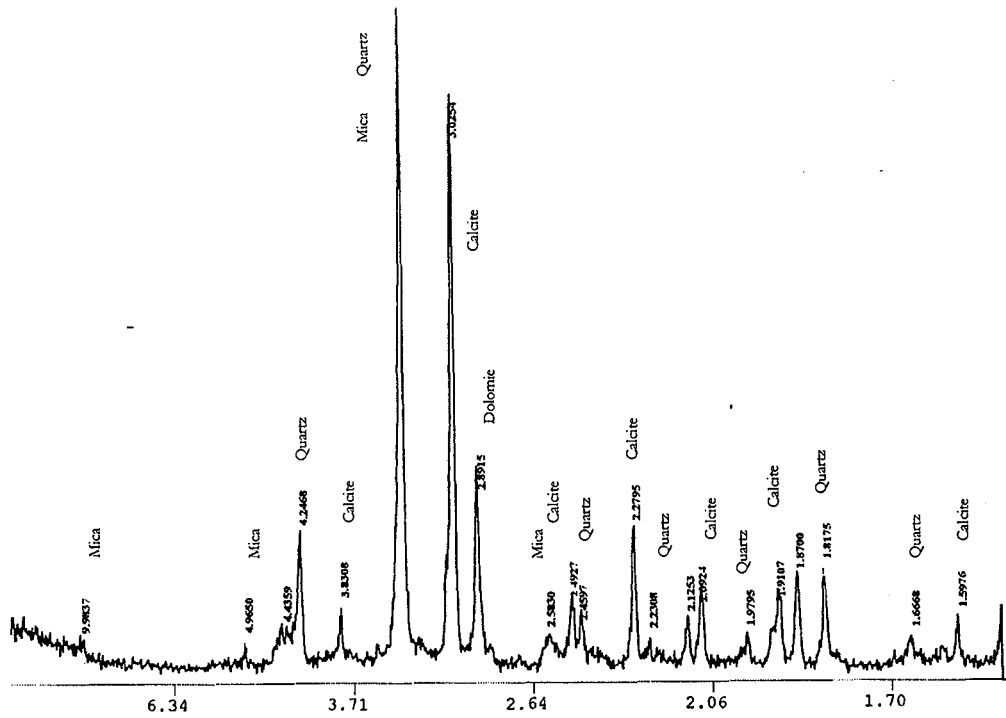


Figure A4 : Spectres R.X. d'un échantillon d'argilites (EST 104) du Callovo-Oxfordien.

Grès

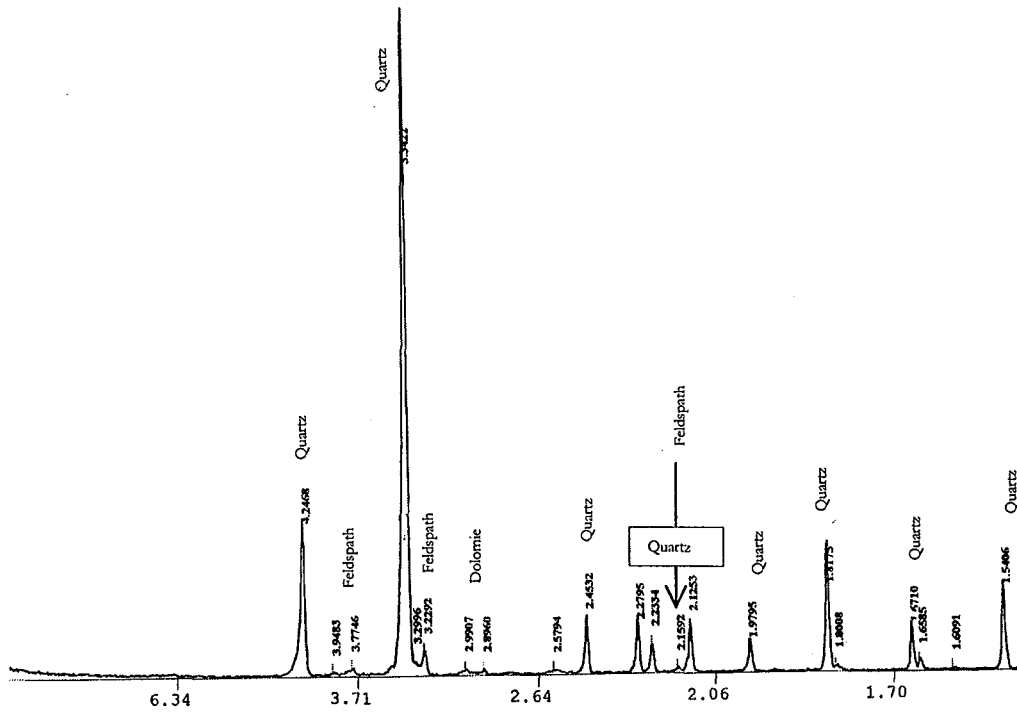


Figure A5 : Spectres R.X. d'un échantillon de grès du Trias.

Calcaires

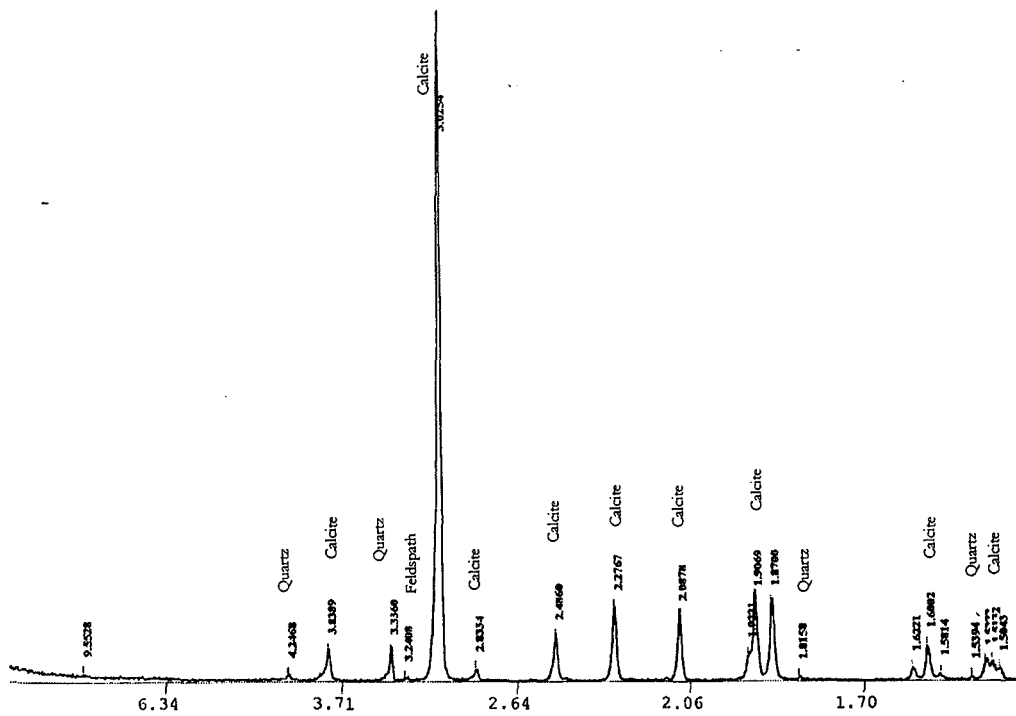


Figure A6 : Spectres R.X. d'un échantillon de calcaire du Dogger.

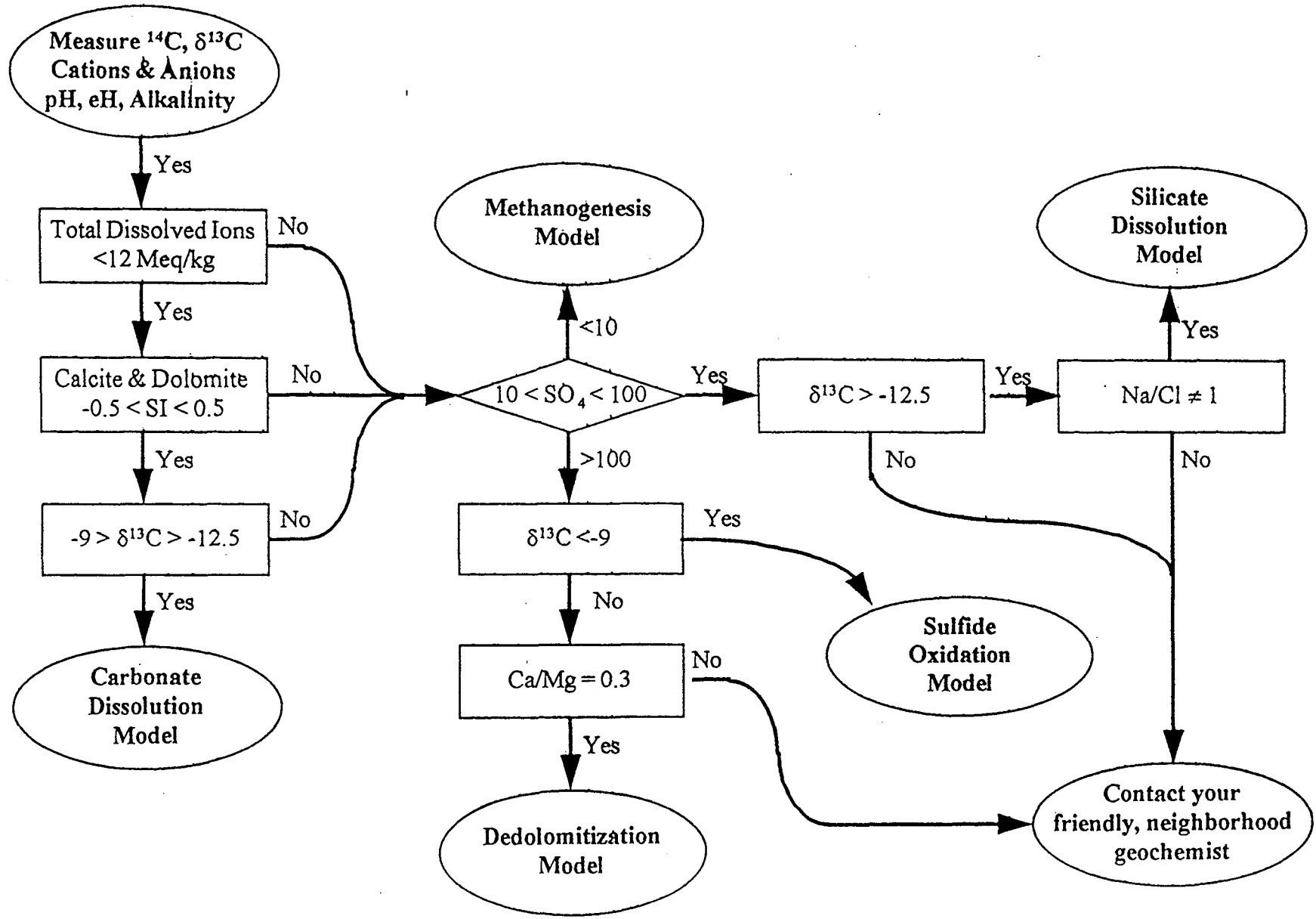
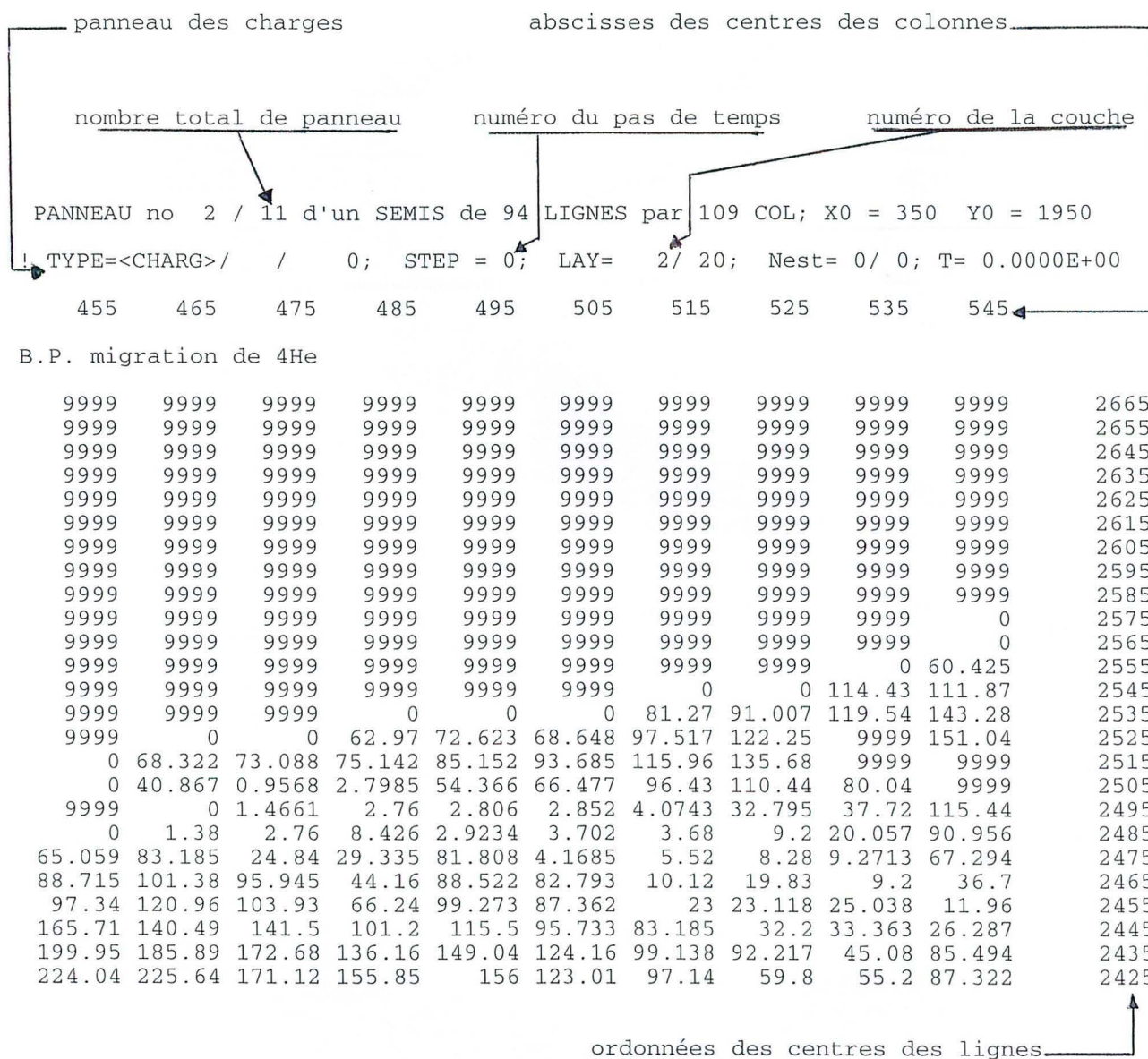


Figure A7 : Selection du modèle de correction à appliquer pour la datation radiométrique (Alexander and Alexander, 1997).

ANNEXE V : COMPLEMENTS D'INFORMATION SUR LA MODELISATION

Présentation des fichiers de données



La charge au centre de la maille de coordonnées $x = 495$ km et $y = 2445$ km (en système Lambert zone II étendue) de la couche 2 du modèle est égale à 115.5. Le pas de temps est égal à zéro car les charges sont calculées en régime permanent.

Figure A8 : Extrait d'un fichier ASCII donnant les charges piézométriques affectées aux mailles du modèle. Les mailles à 9999 ne font pas partie du modèle et celles à 0 correspondent à la limite du modèle.

Présentation spatiale du modèle

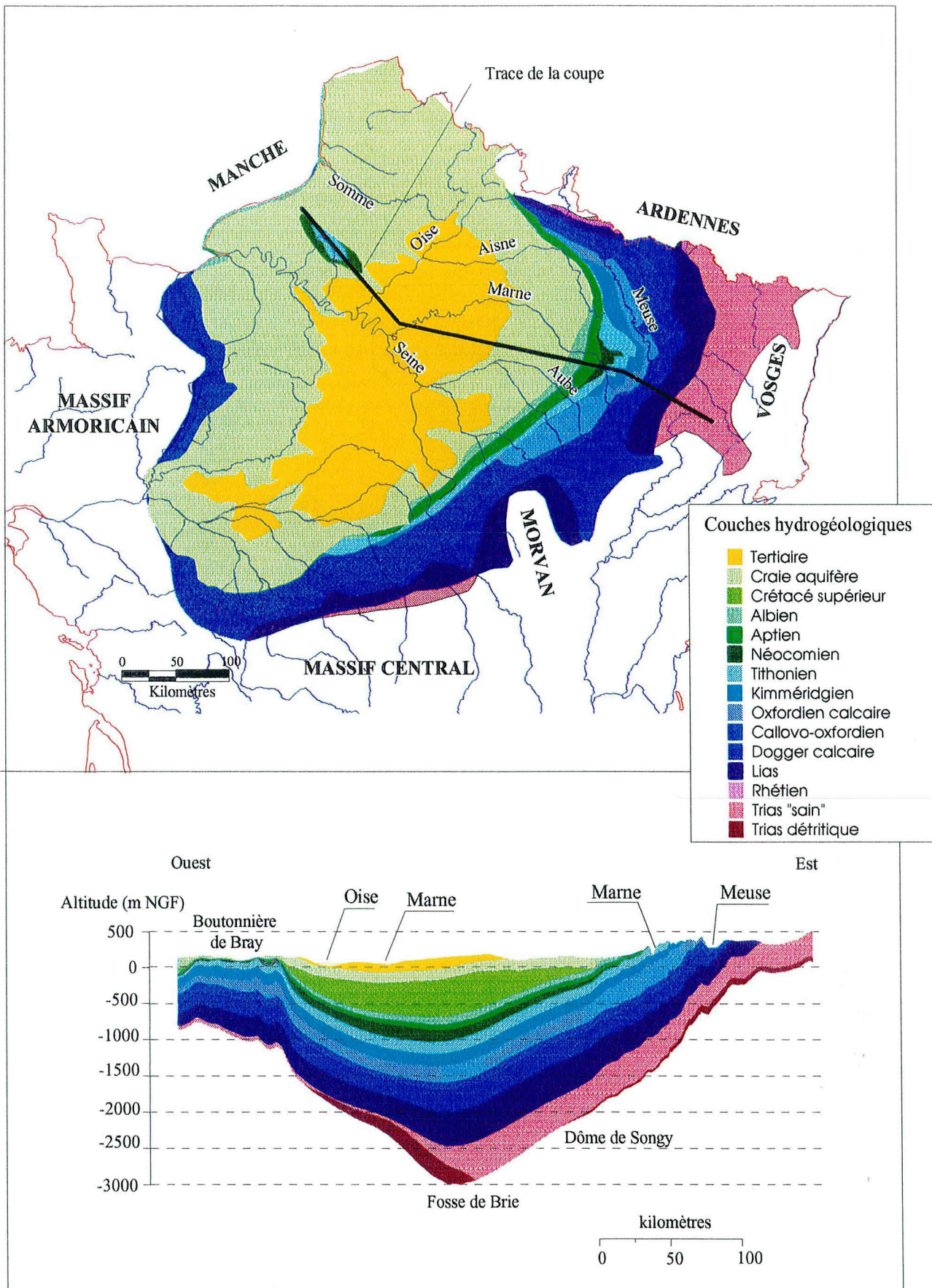


Figure A9 : Schéma hydrogéologique du Bassin Parisien utilisé dans le modèle hydrogéologique de base.

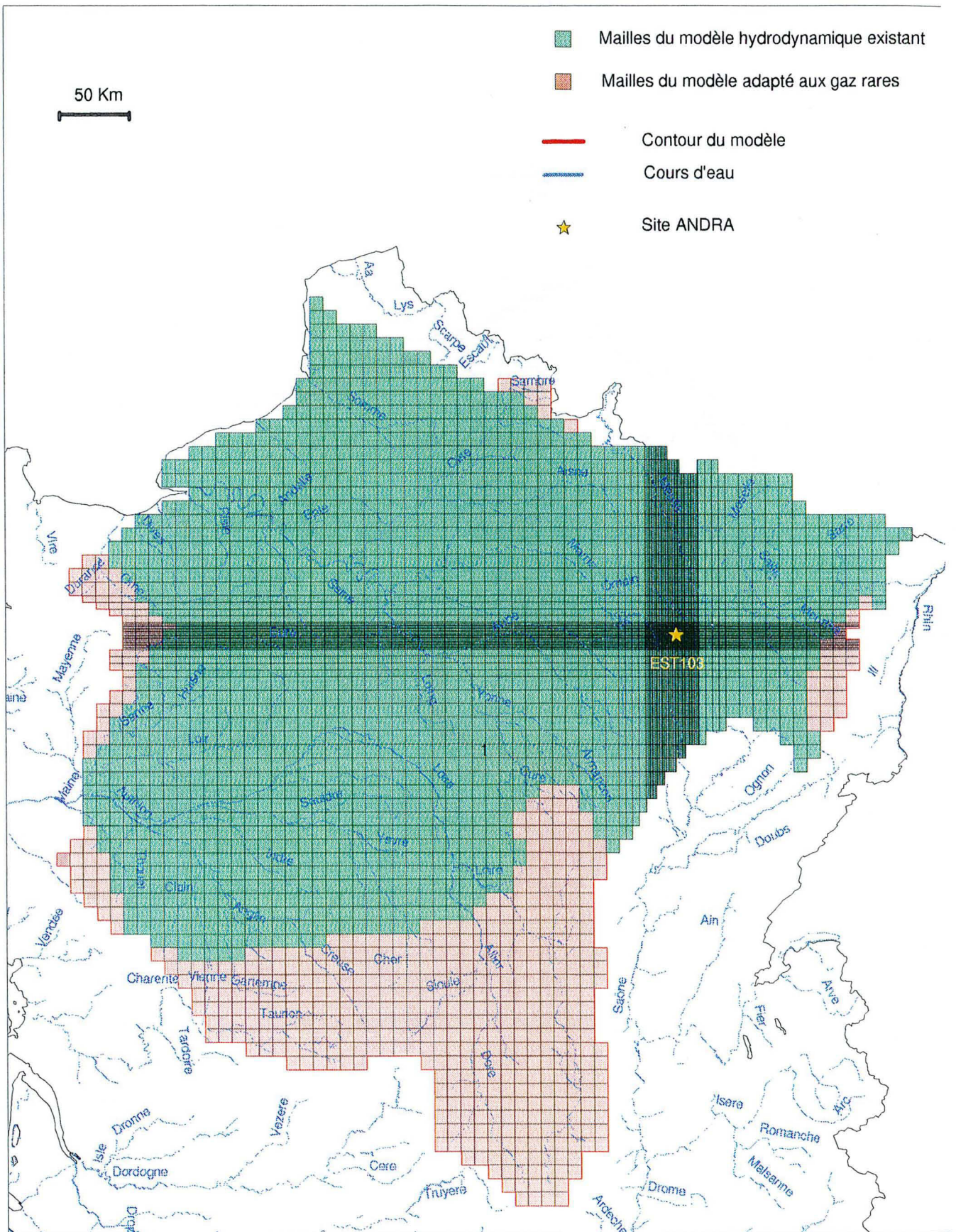


Figure A10 : Extension du modèle « gaz rares » par rapport au modèle de base et détail du maillage de type écossais.

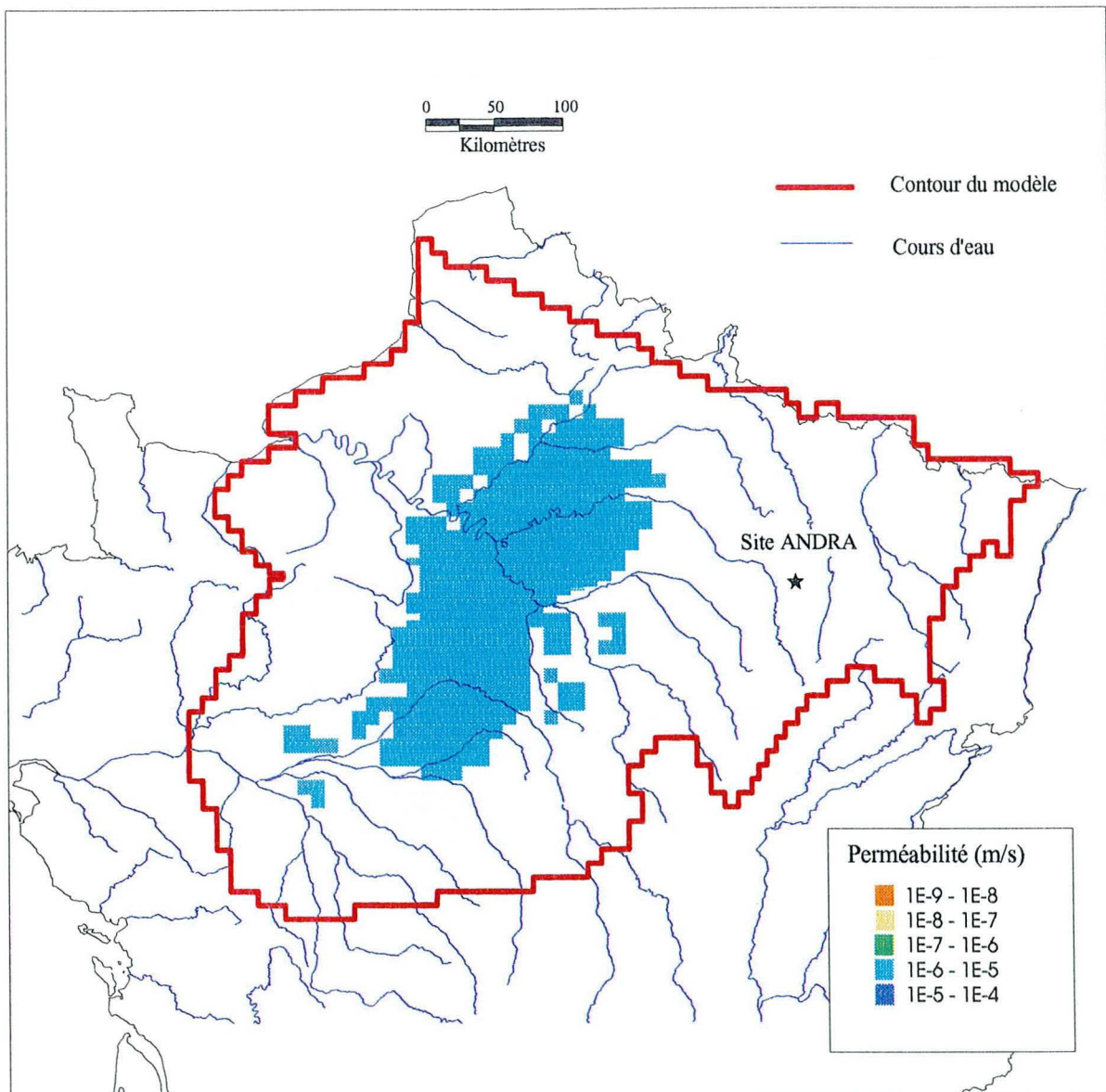
Distribution des perméabilités dans les différentes couches aquifères du modèle

Figure A11 : Distribution des perméabilités dans le Tertiaire .

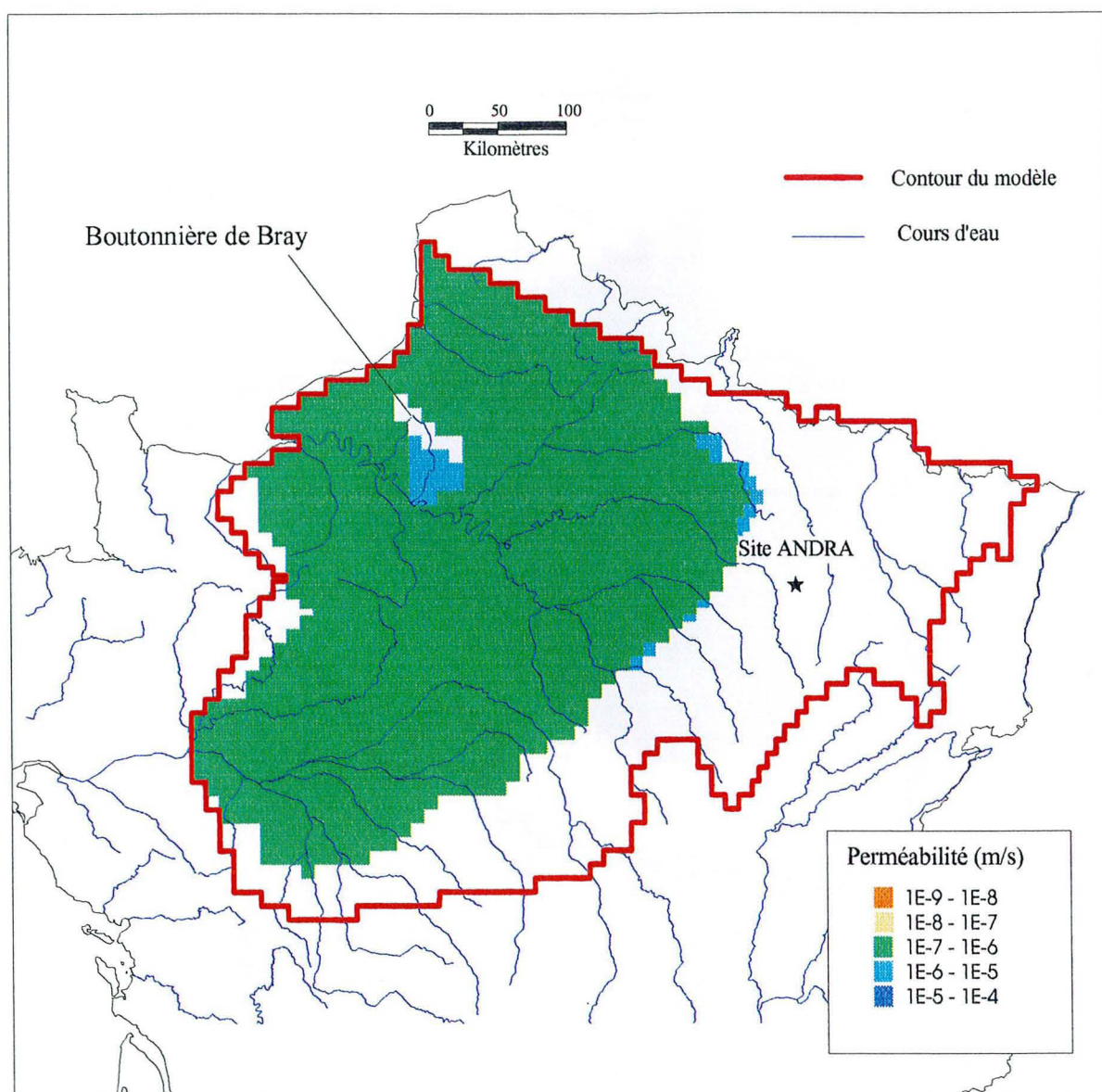


Figure A12 : Distribution des perméabilités dans la Craie Aquifère

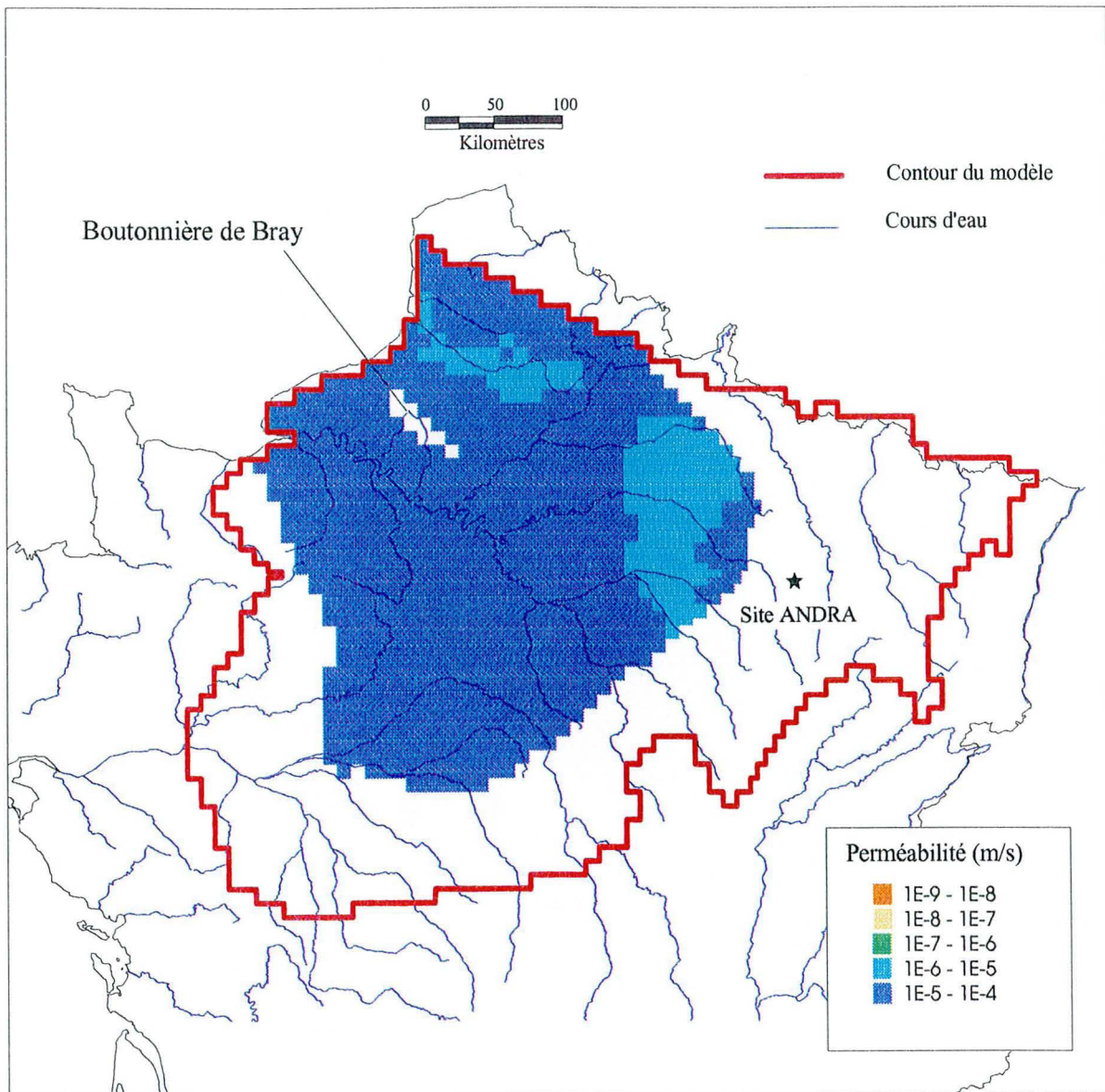


Figure A13 : Distribution des perméabilités dans l'Albien

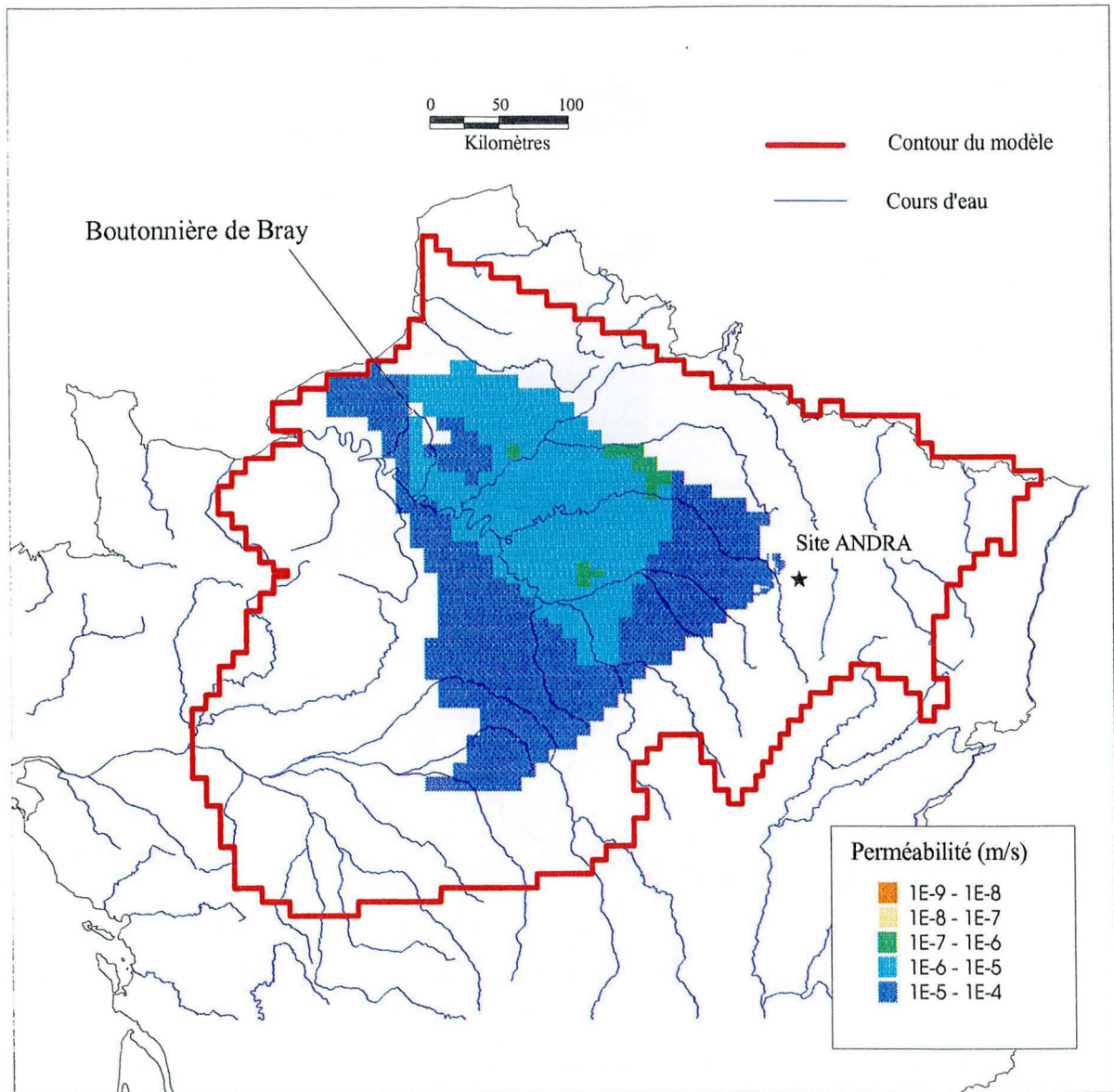


Figure A14 : Distribution des perméabilités dans le Néocomien

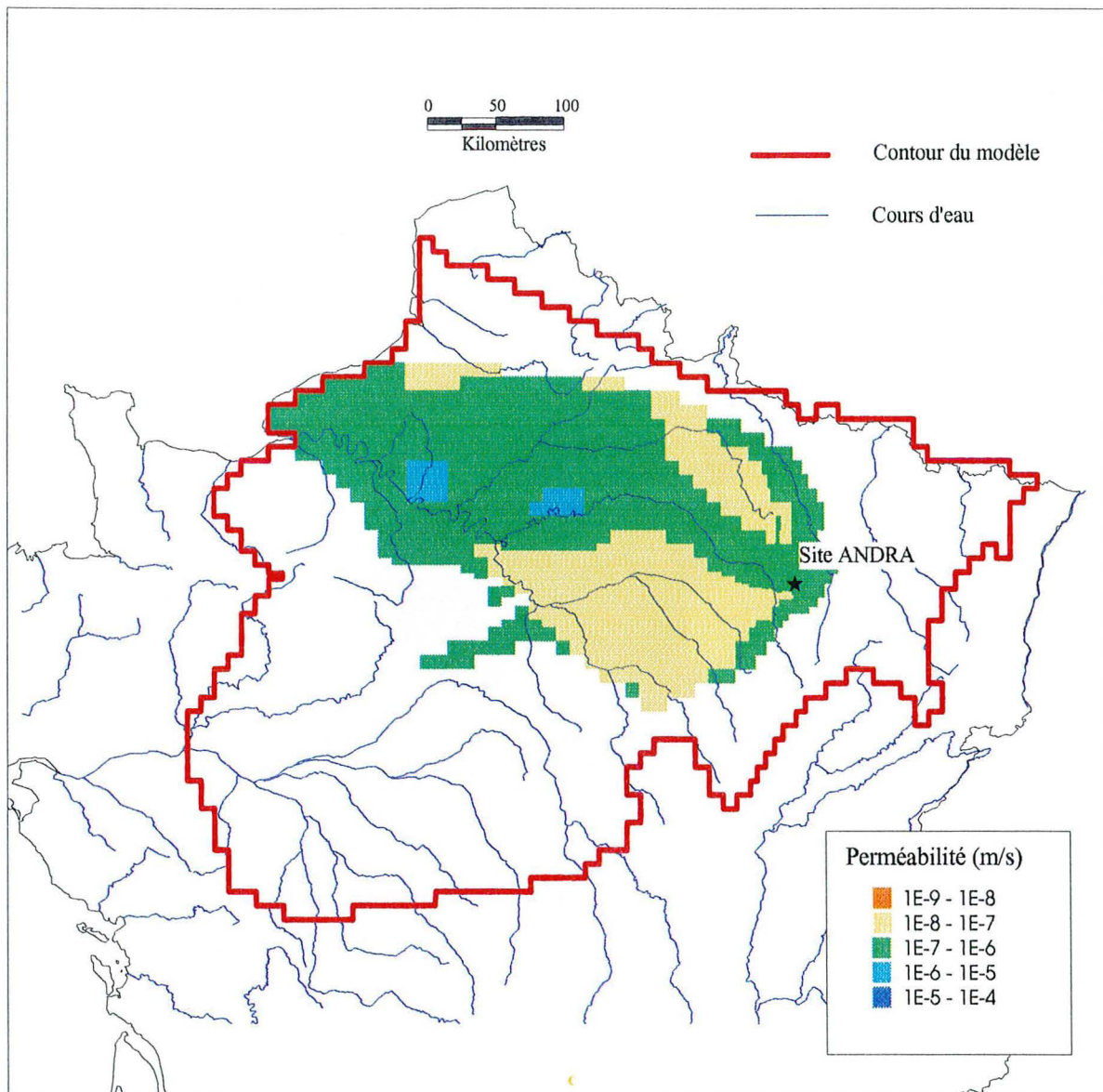


Figure A15 : Distribution des perméabilités dans l'Oxfordien calcaire.

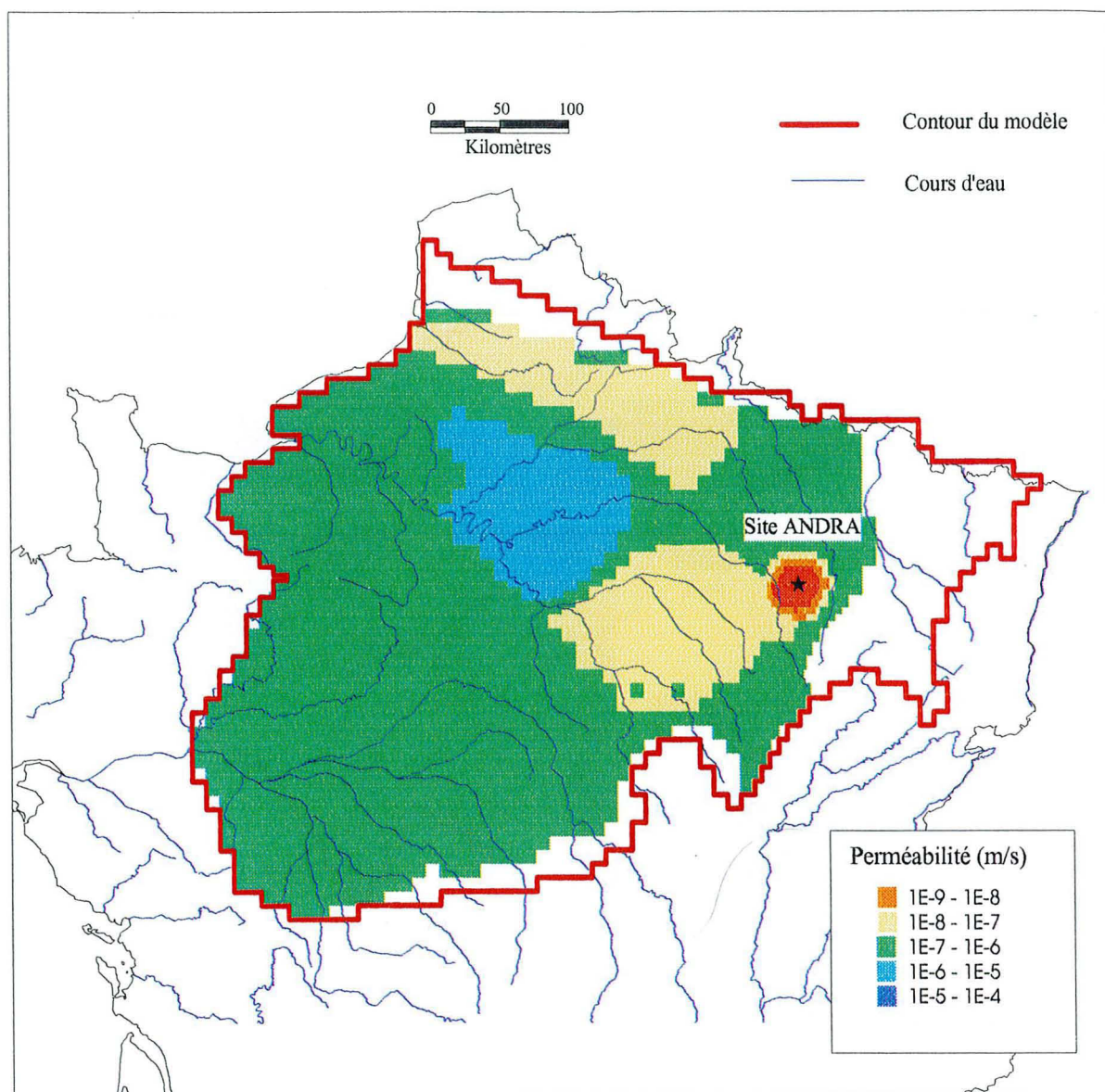


Figure A16 : Distribution des perméabilités dans le Dogger

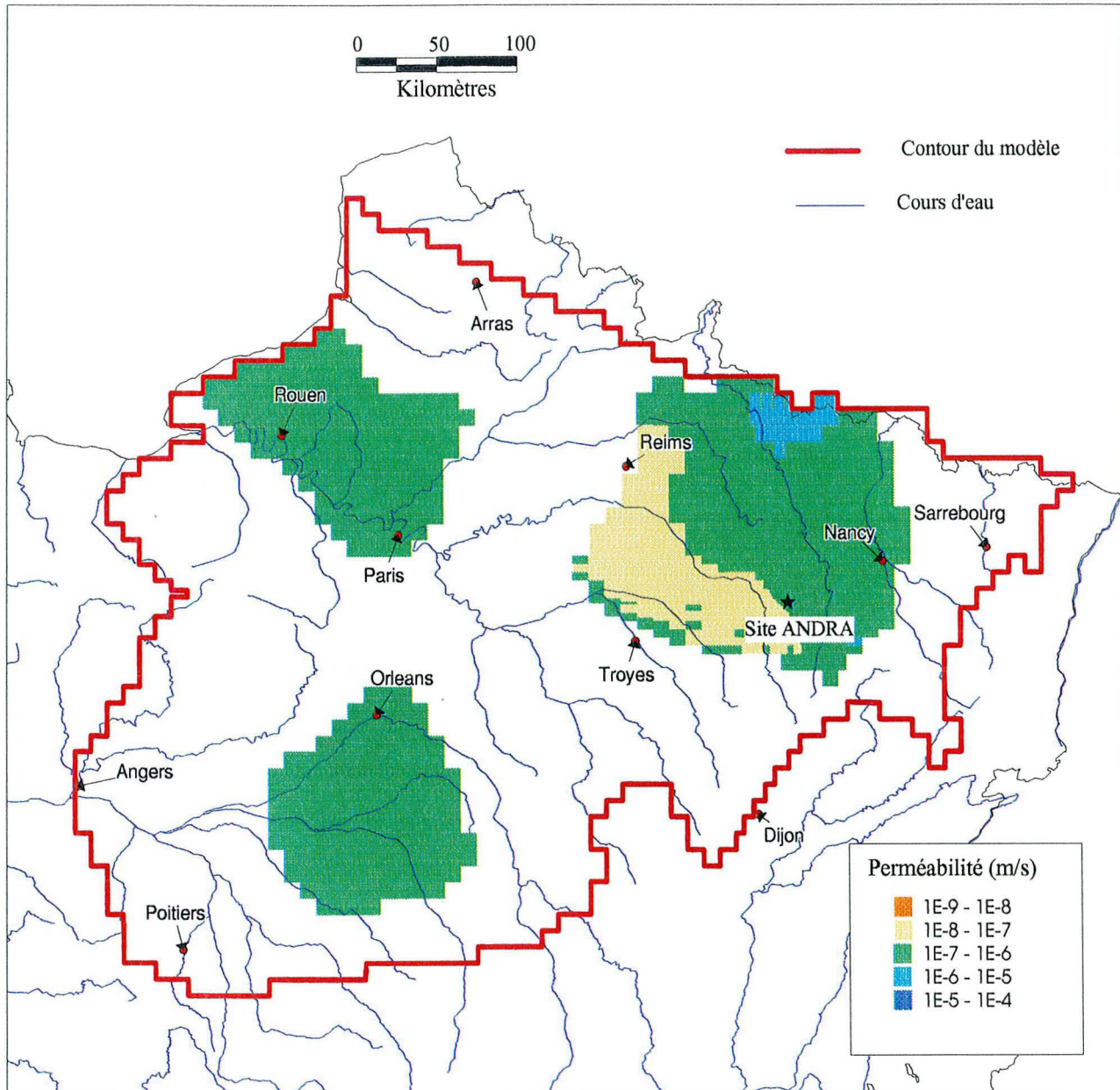


Figure A17 : Distribution des perméabilités dans le Rhénien

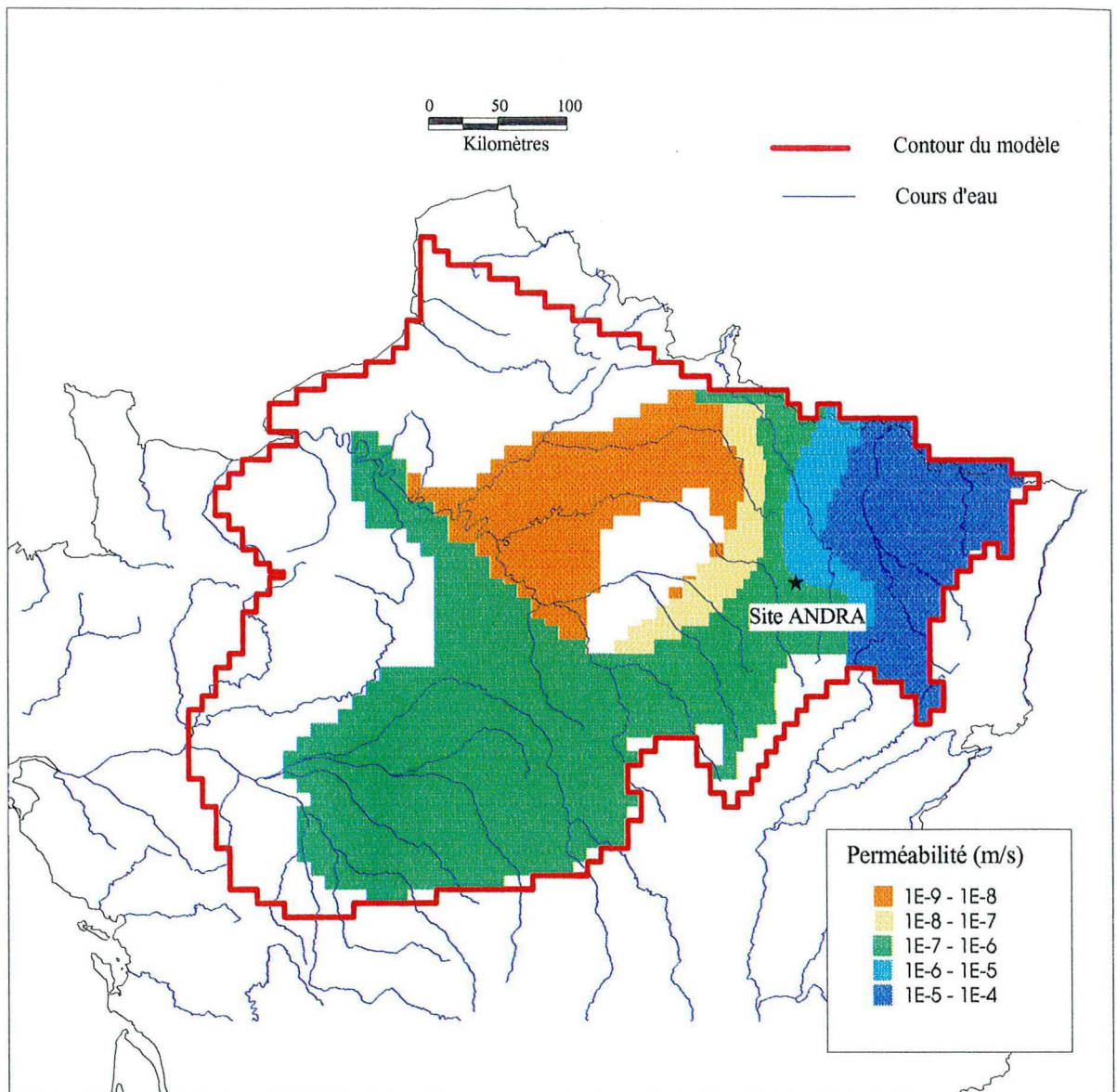


Figure A18 : Distribution des perméabilités dans le Trias détritique

**AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE**

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur CLAUER Norbert, Directeur de Recherche CNRS, Faculté des Sciences de la Vie,
Strasbourg,**

Monsieur SARDA Philippe, Professeur, Université Paris XI Orsay.

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Mademoiselle DEWONCK Sarah

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

**"Géochimie isotopique des gaz rares dans les roches sédimentaires et les eaux
souterraines de l'Est du Bassin Parisien : contribution aux transferts massiques intra-
bassinaux".**

en vue de l'obtention du titre de :

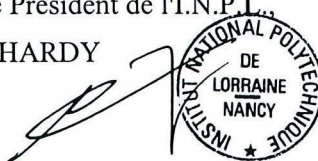
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : **"GEOSCIENCES"**

Fait à Vandoeuvre le, 8 février 2000

Le Président de l'I.N.P.L.

J. HARDY



NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 170
F - 54500
VANDŒUVRE CEDEX

RESUME

Dans le cadre de l'implantation d'un laboratoire souterrain de recherche dans la Meuse visant à définir les possibilités de stockage des déchets radioactifs, l'ANDRA a initié de nombreuses études afin d'acquérir une meilleure connaissance des propriétés naturelles de la zone cible. La géochimie isotopique des gaz rares, les isotopes stables de l'eau et l'activité ^{14}C appliqués aux fluides et aux sédiments de l'Est du Bassin Parisien permettent de discuter des transferts massiques intrabassinaux.

Dans les roches sédimentaires, la mobilité des éléments traces est extrêmement variable : si Ar est retenu quantitativement, He migre très facilement. Cependant, He restant dans la roche est moins mobile puisqu'il est extrait par paliers de température. Cette différence de cinétique s'explique par des sites de diffusion distincts, caractérisés par des coefficients de diffusion et des énergies d'activation propres. Ces sites ont été documentés via la caractérisation des δD de l'eau extraite lors de paliers de déshydratation de la roche et en examinant les traces de fission laissées lors de l'irradiation des échantillons.

Les eaux souterraines du Dogger constituent un mélange d'eaux météoriques et d'eaux des horizons inférieurs. Le Trias concentre, en plus, des fluides d'origine mantellique impliquant des transferts convectifs de grande ampleur à l'échelle de la croûte. Les temps de résidence associés s'échelonnent entre 2 et 30 000 ans, d'où des vitesses de l'ordre de 2.5 m/an. Les eaux du Dogger, plus anciennes (1 Ma), circuleraient plus lentement (0.05 m/an). Les transferts d'éléments traces entre le Dogger et le Trias étant quantitativement limités, les argiles du Lias constitueraient une barrière isolante efficace entre ces deux formations.

La validité de ces résultats a été éprouvée par comparaison avec une approche numérique. La bonne cohérence entre les deux outils a permis d'apporter des informations complémentaires sur les transferts diffusifs et hydrodynamiques.

Mots - Clés : hélium, diffusion, modélisation, traces de fission, circulations hydrodynamiques.

ABSTRACT

A research laboratory is being constructed at Bure (Meuse - France) to determine the potential of this geological repository for the storage of radioactive waste. As part of this installation, ANDRA has initiated several studies in order to define the natural properties of the designated zone. The rare gas geochemistry, the stable isotopes (δD , $\delta^{18}\text{O}$) and the ^{14}C activity of the fluids and sediments from the eastern part of the Paris Basin has been used to characterise intrabasinal mass transfers.

In the sedimentary layers, the mobility of trace elements is extremely variable : while Ar is quantitatively retained, He is very mobile. Nevertheless, He left in the rock is clearly less mobile and only extracted by step heating. This difference in behaviour can be explained by the presence of different diffusion sites, each one characterised by a specific diffusion coefficient and activation energy. These sites are constrained by the study of δD of the water extracted during rock dehydration steps and by examining fission tracks produced during irradiation of the samples.

The groundwaters of the Dogger aquifer consist of a mixture of meteoric waters and fluids from the basement. The Trias aquifer contains these two components and is enriched in fluids with a mantle signature injected by large convective transfers between the crust and the sedimentary layers. The residence time associated is in the range 2 to 30 000 years involving average velocities of 2.5 m/year. The jurassic waters are older (≈ 1 Ma), and may flow more slowly (0.05 m/year). The transfer of trace elements between the Dogger and Trias are quantitatively limited, implying that Liassic shales could effectively isolate these two formations.

The validity of the geochemical results was tested by comparison with a hydrodynamic model. This numerical approach yields results that agree well with the natural data and provides complementary information about the hydrodynamic and diffusive transfers in the Paris Basin.

Key Words : helium, diffusion, modelling, fission tracks, hydrodynamic flows.