
Mécanismes de diffusion de l'hélium dans la calcite de remplissage de faille

1. Introduction

Les gaz rares diffusent plus rapidement que les atomes formant le réseau cristallin pour une température donnée. La vitesse de diffusion des gaz rares dépend de la taille de l'atome, par exemple, le néon diffuse plus lentement que l'hélium. Les gaz rares sont activés thermiquement, et le coefficient de diffusion D suit une loi d'Arrhenius définie ci-dessous:

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (1)$$

Avec D_0 le coefficient de diffusion à l'origine, E_a l'énergie d'activation, R la constante des gaz parfaits et T la température en ° Kelvin. La diffusion des gaz rares dépend de l'agencement atomique (réseau cristallin, présence de canaux de diffusion, clivage) et de la température. L'étude des paramètres de diffusion (énergie d'activation E_a et coefficient de diffusion à l'origine D_0) est fondamentale pour estimer le potentiel chronologique ou thermochronologique d'un minéral. Ces paramètres permettent de calculer la température de fermeture (Dodson, 1973) et sont intégrables dans les modèles de diffusion permettant de reconstruire l'histoire thermique du cristal étudié. La figure IV.1 présente une compilation des paramètres de diffusion de l'hélium pour différents minéraux tels que la calcite (Copeland et al., 2007), l'apatite (Farley, 2000), la goethite (Shuster et al., 2005), l'hématite spéculaire et l'hématite botryoïdale (Bahr et al., 1994), la magnétite (Blackburn et al., 2007), la monazite (Boyce et al., 2005), l'olivine (Shuster et al., 2004) et le quartz (Trull et al., 1991).

Pour déterminer les paramètres de diffusion (E_a , D_0), les expériences se basent sur le chauffage d'un échantillon à différents paliers de température et de temps. Le coefficient de diffusion est déduit de la fraction d'He relâchée à chaque palier. Cette fraction d'hélium permet de calculer les paramètres de diffusion avec des modèles mathématiques (Fechtig et Kalbitzer, 1966). McDougall et Harrison (1999) donnent les critères pour que les paramètres de diffusion déduits des expériences soient représentatifs d'un phénomène de diffusion naturel. Ces conditions sont :

- (1) le minéral doit rester stable au cours de l'expérience,
- (2) la distribution de l'hélium dans le minéral doit être uniforme,
- (3) la forme du cristal doit correspondre à la géométrie utilisée dans les modèles,
- (4) l'échantillon doit être pur, il ne doit pas contenir d'inclusions solides,
- (5) l'échantillon doit se caractériser par un seul domaine de diffusion.

Dans le cas de la diffusion de l'hélium dans l'apatite, minéral abondamment étudié, les paramètres de diffusion sont bien définis (Zeitler et al. 1987 ; Lippolt et al. 1994 ; Wolf et al. 1996 ; Warnock et al., 1997 ; Farley, 2000 ; Shuster et al., 2004 ; Shuster et al., 2006 ; Shuster et Farley 2009). Cependant, pour des températures supérieures à $\sim 265^{\circ}\text{C}$, il y a un changement des paramètres de diffusion, expliqué par la cicatrization des dommages de recul alpha présents dans le réseau cristallin (Farley, 2000; Shuster et al., 2006). Pour d'autres minéraux, les valeurs des paramètres de diffusion ne font pas consensus. Dans le cas de la monazite, les valeurs des paramètres de diffusion sont très dispersées et présentent des températures de fermeture différentes de $206\pm 24^{\circ}\text{C}$, $230\pm 4^{\circ}\text{C}$ et $286\pm 13^{\circ}\text{C}$ respectivement pour 3 échantillons étudiés (Boyce et al., 2005). L'hématite spéculaire présente une température de fermeture de $104\pm 21^{\circ}\text{C}$, alors que l'hématite botryoïdale présente une température de fermeture de $200\pm 8^{\circ}\text{C}$ (Bahr et al., 1994).

Dans le cas de la calcite, une seule étude de la diffusion de l'He existe (Copeland et al., 2007), et les auteurs proposent une température de fermeture de $70\pm 10^{\circ}\text{C}$. Les mesures de diffusion de l'hélium dans ce minéral présentent deux types de difficultés, la présence de nanostructures et leur évolution avec la température.

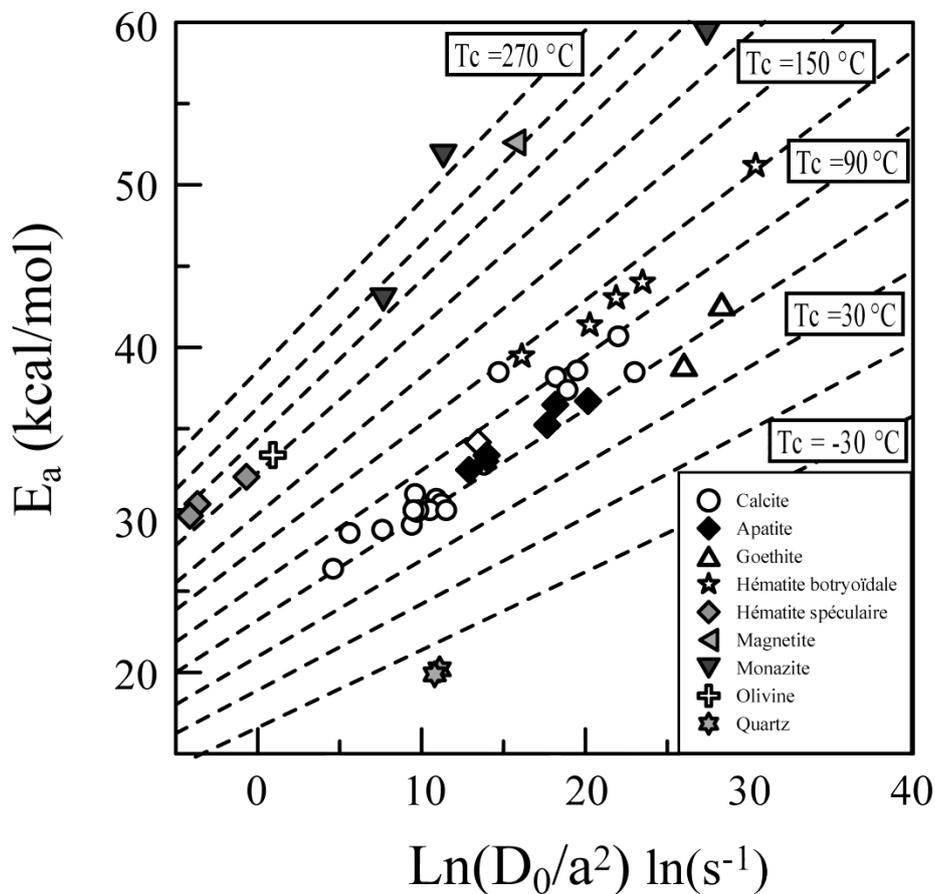


Figure IV.1: Compilation des paramètres de diffusion de l'hélium pour la calcite (Copeland et al., 2007), l'apatite (Farley, 2000), la goethite (Shuster et al. 2005), l'hématite spéculaire et l'hématite botryoïdale (Bahr et al., 1994), la magnétite (Blackburn et al., 2007), la monazite (Boyce et al., 2005), l'olivine (Shuster et al., 2004) et le quartz (Trull et al., 1991). Les droites correspondent aux températures de fermeture selon la formule de Dodson (1973) pour un gradient de $10^{\circ}\text{C}/\text{Ma}$.

Dans cette partie, se trouvent exposés les résultats des expériences de diffusion de l'hélium dans des cristaux de calcite de remplissage de faille (échantillon provenant du fossé de Gondrecourt, cf. chapitre I) et sur un échantillon de remplissage calcitique hydrothermal (MVT).

2. Aspects théoriques de la diffusion

La diffusion des gaz rares est relativement simple car elle ne nécessite pas de faire intervenir d'effets chimiques sur ces derniers. La méthode couramment utilisée pour déterminer les coefficients de diffusion (E_a énergie d'activation et D_0/a^2 coefficient de diffusion à l'origine avec a la taille du grain) dans les minéraux s'appuie sur une modélisation mathématique et thermodynamique. Cette partie se base majoritairement sur les ouvrages d'Albarède (1995) et Mac Dougall & Harrison (1999).

2.1 Modélisation mathématique du processus de diffusion

Le processus de diffusion est similaire au processus de conduction de la chaleur modélisé à travers les lois de Biot-Fourier. Fick a appliqué ces concepts mathématiques à la diffusion d'espèces chimiques suivant des gradients de concentration. Le point de départ des modélisations de la diffusion des gaz rares dans les minéraux est la seconde loi de Fick :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \cdot \Delta c \quad (1)$$

où D est le coefficient de diffusion, c correspond à la concentration de l'espèce diffusante, et t le temps. Cette loi est basée sur l'hypothèse que la diffusion tend à répartir de façon homogène les concentrations dans un volume. Dans le cas d'une diffusion isotrope, D est un scalaire, c'est-à-dire que la diffusion est homogène dans toutes les directions de l'espace, des régions les plus concentrées vers les moins concentrées.

Dans le cas d'une sphère, les formules de Carslaw et Jaeger (1959) appliquées aux gaz rares sont :

$$F(t) = \frac{\text{gaz relâchée}}{\text{gaz total}} \quad (3)$$

$$F(t) = 1 - (6/\pi^2) \sum_1^{\infty} (1/n^2) * \exp(-n^2 \pi^2 \frac{Dt}{a^2}) \quad (4)$$

où $F(t)$ est la fraction de gaz qui diffuse à l'extérieur en fonction du temps et a^2 la taille du domaine de diffusion. Le graphique IV.2 présente la relation entre cette fraction d'hélium et le paramètre sans dimension $\sqrt{Dt/a^2}$ (Mac Dougall & Harrison, 1999). Toutes les courbes se superposent de 0 à 40 % d'hélium extrait, et sont similaires quelque soit la géométrie (sphère, cube, parallélépipède rectangle de longueur infinie). Ceci montre que, pour des grains de différentes géométries, le modèle sphérique est satisfaisant jusqu'à 40 % d'hélium extrait. Au-delà, le calcul des coefficients de diffusion pour des géométries complexes est imparfait. Lagerwall et Zimen (1963) proposent deux solutions à la formule (4) :

$$F(t) = \frac{6}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{Dt}{a^2}} - 3 \frac{Dt}{a^2} \quad 0 \leq F(t) \leq 0,86 \quad (5)$$

$$F(t) = 1 - \frac{6}{\pi^2} \exp\left[-\pi^2 \frac{Dt}{a^2}\right] \quad F(t) \leq 0,86 \quad (6)$$

Les formules de détermination des paramètres de diffusion qui en découlent sont :

$$\frac{Dt}{a^2} = \frac{1}{\pi^2} \left(2\pi - \frac{\pi^2}{3} F(t) - 2\pi \sqrt{1 - \frac{\pi}{3} F(t)} \right) \quad 0 \leq F(t) \leq 0,86 \quad (7)$$

$$\frac{Dt}{a^2} = \frac{1}{\pi^2} \ln\left(\frac{\pi^2}{6} (1 - F(t))\right) \quad F(t) \leq 0,86 \quad (8)$$

Expérimentalement, la fraction d'hélium se mesure pour des paliers à température constante pour un temps donné. La méthode de détermination des paramètres de diffusion proposée par Fechtig et Kalbitzer (1966) consiste à calculer la différence des $\sqrt{Dt/a^2}$ entre deux paliers divisée par le temps de chauffage .

Ainsi les valeurs de $\ln(D/a^2)$ pour le palier m s'écrivent :

$$\ln\left(\frac{D}{a^2}\right)_m = \frac{\Delta \xi_m}{\Delta t_m} = \frac{\xi_m - \xi_{m-1}}{\Delta t_m} \quad (9)$$

Cette soustraction finie est toujours exacte même si la fonction de dégazage est courbée comme illustrée dans la figure IV.2 (cas de géométrie complexe) à la seule condition que D reste constant sur le palier. Si D reste constant, à température constante, et que l'on mesure la fraction d'hélium relâchée sur plusieurs intervalles de temps dt , chacun doit donner la même valeur de D/a^2 . Au-delà de ces conditions, la valeur de D n'est plus significative. Par exemple, dans le cas de fractions d'hélium importantes, pour un grain à géométrie complexe, ou dans le cas d'un minéral possédant de multiples domaines de diffusion, D varie au cours du temps.

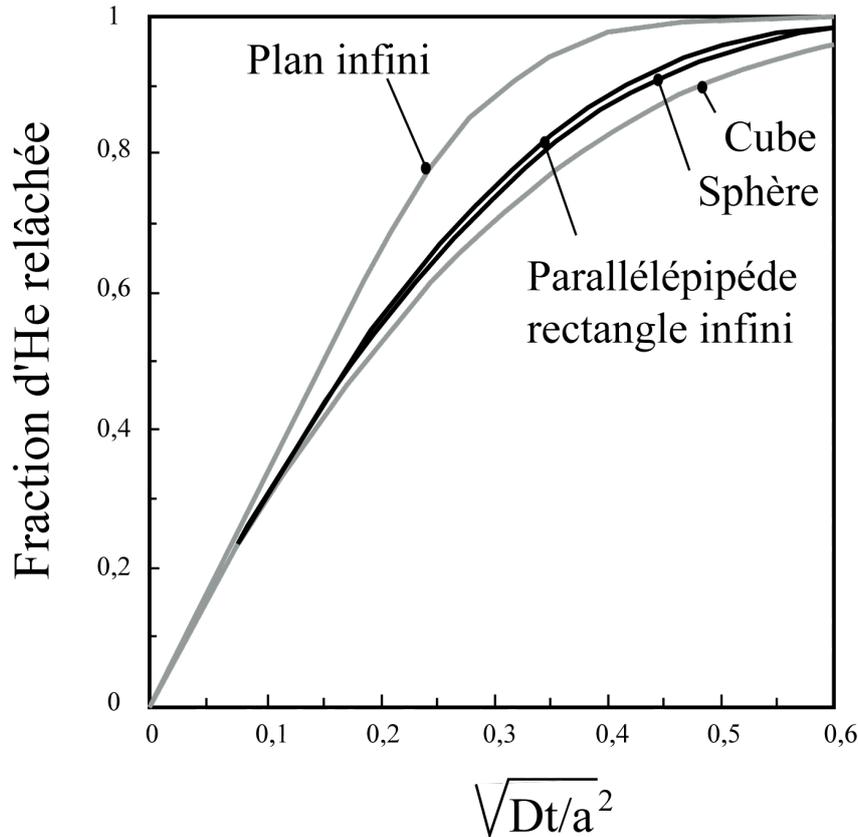


Figure IV.2 : Relation entre la fraction d'hélium relâchée et le paramètre $\sqrt{Dt/a^2}$ pour quatre types de géométrie (plan infini, sphère, parallélépipède rectangle infini et cube). La racine carrée a été utilisée pour améliorer la lisibilité du diagramme. La tangente à l'origine entre 0 et 0,4 est la même pour toutes les géométries sauf le plan infini. Elle est différente dans le cas du plan infini à partir de 0,4 et reste similaire pour des géométries cubique, sphérique et le parallélépipède rectangle infini jusqu'à une fraction d'hélium extraite de 0,6.

2.2 Multiples domaines de diffusion

Dans le cas où plusieurs domaines de diffusion existent dans un minéral, la résolution des équations est plus complexe. Elle doit intégrer un effet de cinétique de dégazage différent en fonction de la forme des domaines et de leur abondance. Ces paramètres sont différents d'échantillon à échantillon. De façon générale, le volume total de l'échantillon est noté :

$$V = \sum_{i=1}^n V_i \quad (10)$$

Dans le cas d'une répartition homogène d'hélium dans le cristal, et sans considérer les multiples domaines de diffusion, les fractions contenues dans chaque sous-domaine sont calculables par :

$$f_{ci} = \frac{V_i}{V} \quad (11)$$

avec f_{ci} la fraction d'un sous domaine V_i par rapport aux volumes total V de l'échantillon.

La courbe de dégazage se déduit à partir de l'équation suivante :

$$f(t) = \sum_{i=1}^n f_{ci} \cdot f_i \left(\sqrt{\frac{Dt}{a_i^2}} \right)$$

où (f_i) est la fraction d'hélium libérée de chaque sous-domaine et $f(t)$ la fraction d'hélium libérée pour un temps t donnée.

2.3 Modélisation thermodynamique de la diffusion

La diffusion d'un gaz rare dépend de la fréquence de site potentiel vacant au voisinage de l'atome migrant, de la géométrie du volume, des types de liaisons atomiques dans le solide et de la distance atomique entre chaque déplacement. Les atomes se déplacent suivant des directions aléatoires ou « mouvements browniens » sous l'effet de la température. Physiquement, l'atome est piégé dans un site et est agité thermiquement. Certains atomes possèdent une énergie cinétique suffisante pour sauter la barrière potentielle entre deux sites. Ce phénomène est d'autant plus probable que l'énergie cinétique de ces derniers est élevée ce qui explique l'augmentation du coefficient de diffusion avec la température. Ces déplacements sont dépendants de la taille de l'atome, du milieu, et de l'état de vibration du système.

La diffusion se modélise par :

$$D = \frac{d^2 \nu}{3} X_v \exp\left(\frac{-\Delta H_m}{\mathfrak{R}T}\right) \quad (13)$$

où d est la distance des sauts, ou libre parcours moyen, d'un site à l'autre, X_v la fraction d'abondance de site hôte, ν la fréquence de vibration des atomes, R la constante des gaz parfaits et ΔH_m le potentiel énergétique dont a besoin l'atome pour se déplacer.

Cette formule se simplifie par :

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E}{\mathfrak{R}T}\right) \quad (14)$$

où D_0 est le facteur pré-exponentiel qui comprend les paramètres structurels du cristal et E l'énergie d'activation correspondant à la barrière d'énergie à soumettre à l'atome pour qu'il migre dans le solide. Plus cette énergie est élevée, plus la diffusion est lente pour une température donnée. Cette relation est aussi appelée la loi d'Arrhenius (1889), caractéristique de la diffusion des gaz rares et est applicable à tout processus cinétique physico-chimique dépendant de la température. En prenant le logarithme népérien de l'équation (14), l'énergie d'activation et le facteur pré-exponentiel suivent une loi linéaire :

$$\ln D = \ln D_0 - \frac{E}{RT} \quad (15)$$

Graphiquement cela signifie que, pour un processus diffusif, les paramètres en fonction de l'inverse de la température de diffusion s'alignent sur une droite de pente égale à l'énergie d'activation. L'intersection à l'origine correspond au logarithme du facteur pré-exponentiel (Figure IV.3).

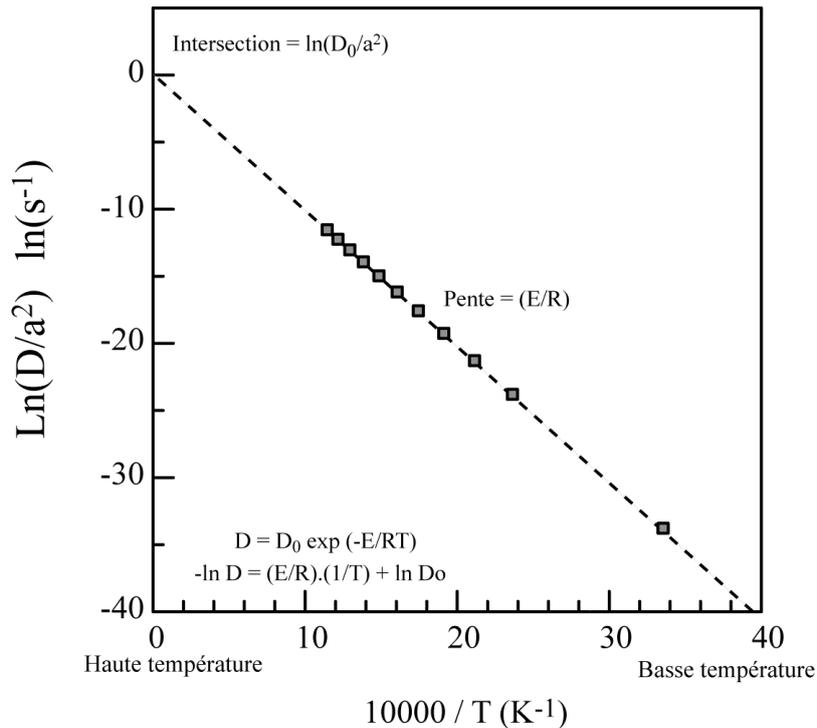


Figure IV.3 : Diagramme d'Arrhenius présentant la méthode de résolution graphique de la formule (14) (cf. texte). La pente de la droite représente l'énergie d'activation. Plus la pente est forte plus l'énergie d'activation sera élevée.. L'intersection définit le facteur pré-exponentiel. Ce facteur est dépendant du coefficient de diffusion D et de la taille du domaine de diffusion a^2 (modifié de McDougall et Harrison 1999).

2.4 Température de fermeture

Le concept de température de fermeture (T_c) pour un minéral a été introduit par Dodson (1973). Cette température correspond, pour un taux de refroidissement constant, à 50 % d'hélium retenu dans le cristal. Cette température se détermine par la formule suivante :

$$T_c = \frac{\left(\frac{E}{R}\right)}{\ln \left(\frac{A \cdot R \cdot T_c^2 \left(\frac{D_0}{a^2}\right)}{E \frac{dT}{dt}} \right)} \quad (16)$$

Dans cette formule, E_a est l'énergie d'activation, D_0 le facteur pré-exponentiel, A une constante géométrique et dT/dt , le taux de refroidissement. Celui qui est communément utilisé est de $10^\circ C/Ma$.

La résolution de l'équation (16) se réalise par calcul itératif. Une valeur de température de fermeture supposée est introduite, et par itération, l'écart entre la valeur

introduite et la valeur calculée est diminuée. Certaines hypothèses de base doivent être respectées pour que ce calcul soit significatif : (1) il est nécessaire que les températures expérimentales soient dans la même gamme que la température de fermeture du minéral étudiée, (2) les coefficients de diffusion (E_a , D_0), doivent être homogènes dans le minéral. Dans le cas de minéraux présentant de multiples domaines de diffusion, ce calcul est plus complexe. La température de fermeture inclut la somme de ces domaines, pondérée par leur abondance.

Pour une application robuste en géochronologie, il est nécessaire que ces paramètres soient constants au cours des temps géologiques.

3. Réseau cristallin de la calcite et site de l'He

La localisation précise de l'hélium dans le réseau cristallin est un enjeu important pour étudier les mécanismes de diffusion. Les atomes d'hélium sont localisés dans les espaces interstitiels, les défauts cristallins, les lacunes et les microfissures. Scheidegger et al. (2010) ont proposé que les atomes d'hélium soient localisés dans les structures tétraédriques formées par les groupements CO_3^{2-} . Dans ces espaces, il est possible de loger un atome de moins de 3 Å de rayon ionique, ce qui est le cas pour l'atome d'hélium (2,55 Å). Il existe quatre sites potentiels dans la maille élémentaire simplifiée (Figure III.1). D'autre part, dans le réseau, les plans de clivages $\{1\ 0\ \bar{1}\ 4\}$ des cristaux de calcite peuvent être potentiellement d'autres sites pour les atomes d'He (pour plus de détails, cf. chapitre III).

L'hélium peut également se trouver hors du réseau dans les inclusions fluides. Des quantités d'hélium non négligeables (de l'ordre de 0,5 à 6,4 pmol/g) ont été mesurées dans les cristaux de calcite de remplissage de faille par Pik et Marty (2009). Or cette calcite est très jeune (150 ka – 800 ka). Par conséquent la production d'hélium radiogénique ne peut pas expliquer ces teneurs en hélium

L'estimation de la présence des inclusions fluides et surtout du contenu en He est importante afin de déterminer l'impact sur le bilan total de cet hélium hérité dans le grain.

4. Description des échantillons étudiés

4.1 Apatite de Durango

Des fragments d'un cristal d'apatite de Durango ont été analysés afin de valider les protocoles analytiques de diffusion. En effet, ce minéral est internationalement utilisé afin de déterminer les coefficients de diffusion de l'He (e.g. Wolf et al., 1998; Farley, 2000). Des échantillons de tailles variant de 100 à 1000 microns du standard (DUR17, référence interne au laboratoire He, Orsay) ont été analysés (Figure IV.4).

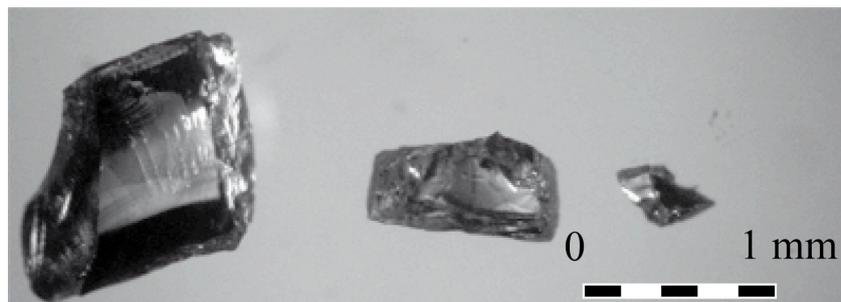


Figure IV.4: Photo de fragments d'apatite de Durango de différentes tailles utilisés pour les expériences de diffusion.

Dans le tableau IV.1 sont résumés, les caractéristiques des grains et les types de chauffage par paliers utilisés lors des expériences de diffusion.

Tableau IV.1: Taille des grains et protocoles expérimentaux utilisés lors des expériences de diffusion sur l'apatite de Durango.

Échantillons	Nombre de grains	Taille des grains (micron)	Durée des paliers (minutes)	Paliers de chauffage
ApDur-3	1	100-300	60	constants
ApDur-4	1	375-500	60	constants
ApDur-5	1	100-300	60	constants
ApDur-6	1	100-300	60	constants
ApDur-8	1	300-300	60	constants
ApDur-9	1	100-300	60	constants
ApDur-20	1	100-300	25	Isothermes

4.2. Calcite de faille et calcite d'un gisement MVT

Des expériences de dégazage d'hélium des échantillons de calcite de failles de Gondrecourt (3 échantillons avec de 2 à 4 répliquats) et d'un échantillon d'un remplissage calcitique hydrothermal (MVT) ont été réalisées. La planche photo de la figure IV.5 illustre les types de cristaux de calcite analysés.

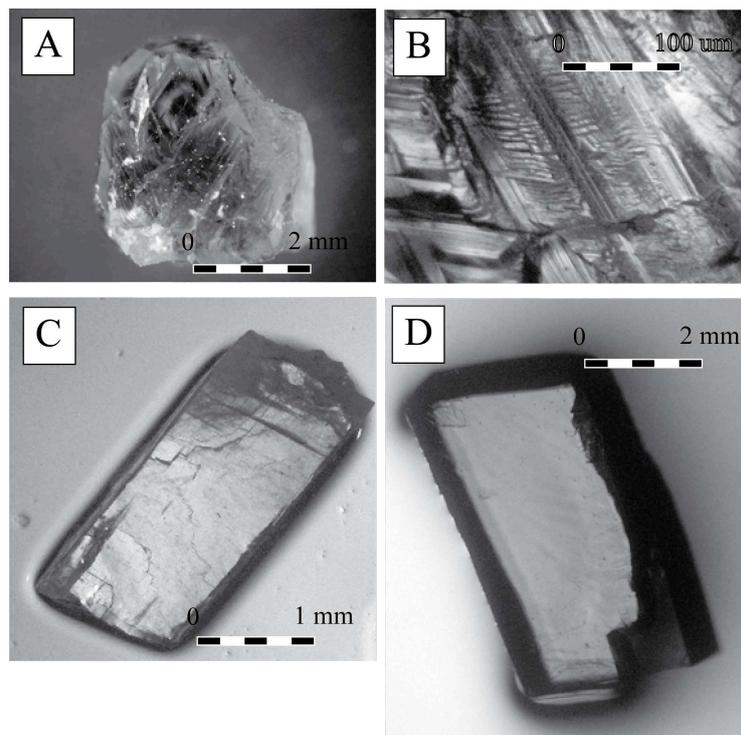


Figure IV.5 : Echantillons de calcite utilisés pour les expériences de diffusion. A & B correspondent à l'échantillon B4a, A est la photo de l'échantillon global et B est un grossissement sur la surface où l'on peut observer une striation dans deux directions préférentielles. C & D sont des fragments représentatifs des échantillons C1b (calcite filonienne) et A2 (microfracture).

Les paramètres caractéristiques (morphologie, taille, ...) des échantillons de cristaux de calcite analysés dans le cadre des expériences de diffusion se trouvent dans le tableau IV.2.

Tableau IV.2 : Tableau descriptif des caractéristiques physiques des cristaux de calcite analysés lors des expériences de diffusion (tableau II.1)

Échantillon	Masse (mg)	Forme	Longueur (mm)	Largeur (mm)	Épaisseur (mm)	Observation	Durée des paliers (minutes)
A2-2	9,9	Rhomboédrique	1,8	1	1,2	Quelques clivages	60
(trois grains)	-	-	2	1,5	1,2	-	
-	-	-	1,5	1	1	-	
B4-a8	31,4	Rhomboédrique	2,2	2,2	2,0	-	60
B4-a14	40,1	Ellipsoïdale	4,2	3,0	2,5	-	25
C1b-12	47,4	Rhomboédrique	6	3,8	2	-	60
MVT-16	56,0	Rhomboédrique	4,78	2,97	2,02	Quelques clivages	25

5. Stratégie analytique et résultats

Dans le cadre de ce travail, un protocole de diffusion pour des durées courtes a été développé. Les détails techniques expérimentaux de la cellule de diffusion et de l'analyse de l'hélium sont plus détaillés dans le chapitre I. La stratégie analytique a consisté à dégazer les échantillons en plusieurs paliers de 40°C et 701°C sans interruption du chauffage de l'échantillon, avec augmentation croissante ou cyclique de la température (Tableau IV.1 et IV.2). La durée totale des expériences est de l'ordre de 12h avec des paliers de chauffage de 25 ou 60 minutes. Cette stratégie présente l'intérêt que chaque palier de chauffage est de durée identique, et de courte durée ce qui permet de caractériser les différents mécanismes contrôlant la diffusion de l'hélium.

Le coefficient de diffusion D a été calculé selon les formules de Fechtig et Kalbitzer (1966) expliqué à la section 2 en considérant le modèle sphérique et le cas d'un seul domaine de diffusion. L'ensemble des résultats est reporté dans les tableaux IV.3 et IV.4.

5.1 Diffusion dans l'apatite

Les résultats des sept échantillons sont donnés dans le tableau IV.3. avec les énergies d'activation, les valeurs du facteur pré-exponentiel et leur température de fermeture.

Tableau IV.3: Paramètres de diffusion obtenus lors des expériences sur des fragments d'un cristal d'apatite de Durango.

Échantillon	E_a (kcal/mole)	$\ln(D_0/a^2)$ (s^{-1})	Température de fermeture (°C)
ApDur-3	34,4	14,1	73,5
ApDur-4	31,6	13,9	51,1
ApDur-5	34,4	14,8	81,3
ApDur-6	30,3	12,1	57,9
ApDur-8	34,6	16,2	74,0
ApDur-9	30,2	12	57,1
ApDur-20	29,3	8	77

Les diagrammes arrhéniens montrent une même tendance diffusive pour l'ensemble des températures analysées (Figures IV.6). La gamme d'énergies d'activation obtenue varie de 29,3 à 34,6 kcal/mole, le facteur pré-exponentiel $\ln(D_0/a^2)$ varie entre 8 et 16,2 s^{-1} pour des températures comprises entre 200°C et 400°C. Les températures de fermeture varient de 51,1°C à 74°C.

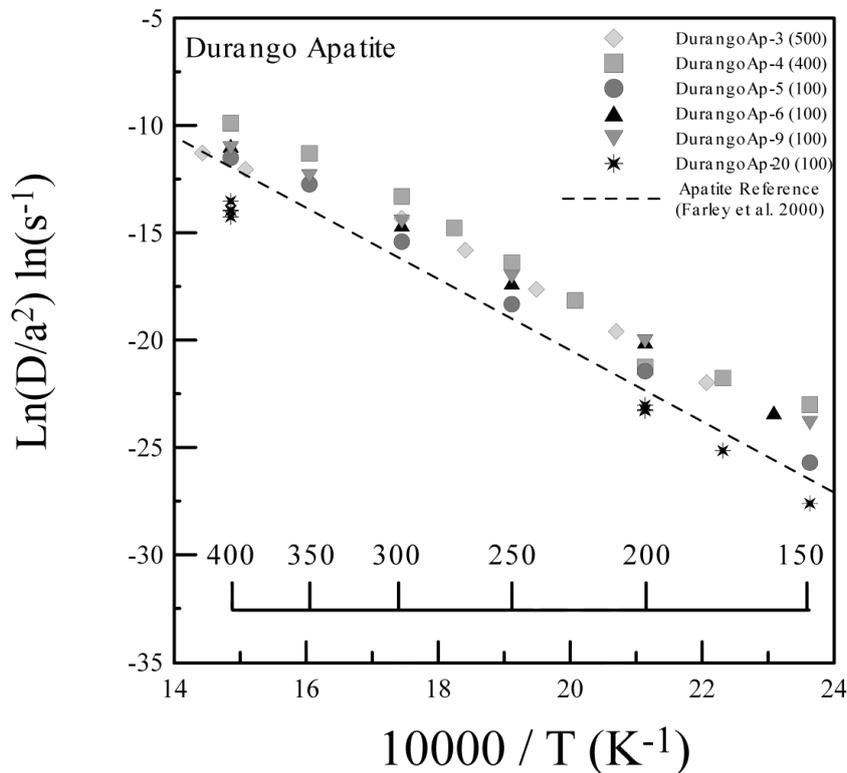


Figure IV.6 : Diagramme d'Arrhenius des expériences de diffusion d'hélium sur des fragments d'un cristal d'apatite. La ligne en pointillé correspond à la valeur moyenne obtenue par Farley (2000) pour des grains de 100 microns. Une échelle en degré celsius est représentée.

Pour l'échantillon ApDur-20, trois paliers à 200°C et quatre paliers à 400°C ont également été réalisés, et présentent, pour chaque gamme de température, des résultats similaires entre eux (Figure IV.7) et à ceux de la littérature (Cherniak et al., 2009). L'énergie d'activation est de 29,3 kcal/mole et $\ln(D_0/a^2)$ est de 8 s^{-1} . La température de fermeture T_c associée sur cette apatite est de 77°C, pour un taux de refroidissement de 10 °C/Ma.

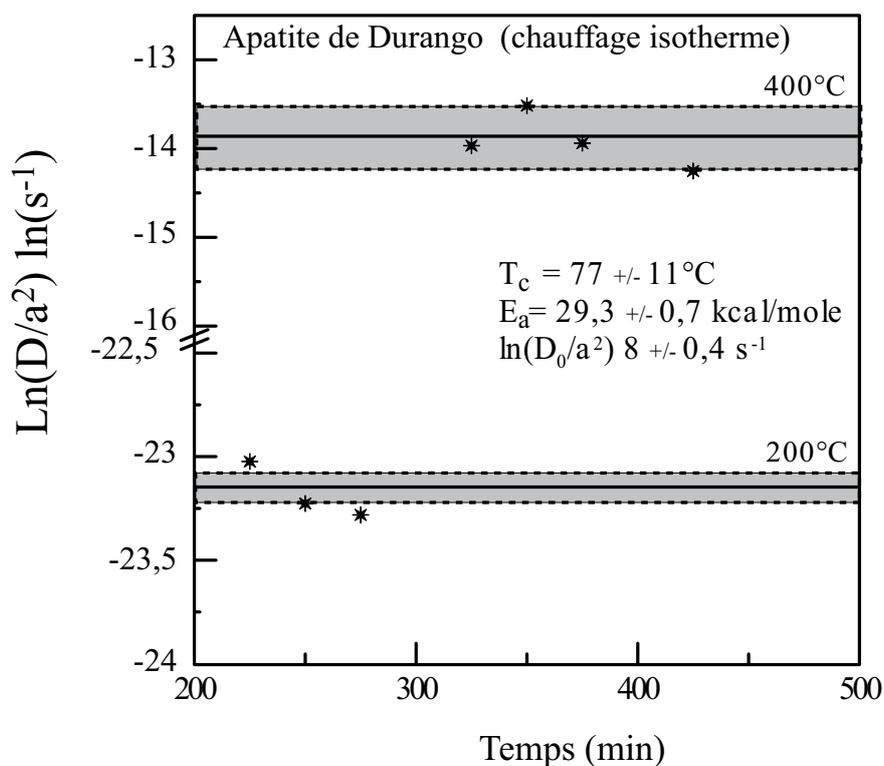


Figure IV.7 : Valeurs de $\ln(D/a^2)$ pour trois paliers à 200 °C et de 4 paliers à 400 °C en fonction du temps. L'énergie d'activation et le facteur pré-exponentiel $\ln(D_0/a^2)$ sont de 29,3 kcal/mole et de 8 s^{-1} pour une température de fermeture de 77 °C. Ces valeurs sont calculées avec les valeurs moyennes obtenues pour 200 °C et 400 °C. Les valeurs moyennes et les écart-types sont représentés par les encadrés gris.

Les résultats obtenus sur les cristaux d'apatite de Durango sont similaires aux résultats de Farley (2000) avec, à haute température, une inflexion de la droite. Certains échantillons présentent des valeurs qui s'écartent de la droite de corrélation pour des basses températures. Farley (2000) considère que les valeurs anormalement supérieures sont l'effet d'un processus de dégazage de surface; les auteurs excluent ces points des diagrammes d'Arrhenius. Dans ce cas, la représentation arrhénienne de la diffusion de l'hélium dans l'apatite correspond aux dégazages d'un domaine de diffusion homogène. Les résultats s'alignent correctement sur les diagrammes d'Arrhenius. Comme pour l'étude de Farley (2000), il ressort l'effet de la taille des grains : plus les grains sont gros, plus le facteur pré-exponentiel est important et les températures de fermeture sont élevées (Figure IV.6). Toutefois ces effets n'affectent pas l'énergie d'activation. L'ensemble de ces données valide le protocole analytique de diffusion développé dans cette étude.

5.2 Diffusion dans la calcite

5.2.1 Comportement général

Les résultats des expériences de diffusion sur les cristaux de calcite sont présentés dans les tableaux IV.5 (cf. tableaux sur les résultats de diffusion en annexe) et dans les figures IV.8 à IV.11. Une tendance linéaire des diagrammes Arrhenius n'est pas retrouvée dans un premier temps, les points dessinent une inflexion qui tend à s'horizontaliser, dans certains cas, vers 200 °C. Les faibles relâchements d'hélium, inférieurs à 5 % provoquent des bombements à ces basses températures dans les diagrammes d'Arrhenius et ce comportement

se retrouve pour les paliers de 25 minutes ou de 60 minutes, indépendamment du type d'échantillon. Ce n'est qu'après ces relâchements que les points dans les diagrammes d'Arrhenius dessinent une tendance linéaire. Les points de basses températures (<140 °C) ne sont pas pris en compte dans le calcul des paramètres de diffusion. De la même façon, les paramètres de diffusion correspondant à des fractions d'hélium supérieures à 70 % sont exclus car la détermination du rapport D/a^2 n'est plus correctement modélisable avec les équations de Fechtig et Kalbitzer (1966). En effet, ces points deviennent dépendants des facteurs géométriques. Au-delà de ces fractions d'hélium, les calculs de détermination des énergies d'activation ne sont plus justes (cf. section 2). Le tableau IV.4. résume les résultats calculés pour les cristaux de calcite de failles et le cristal de calcite hydrothermal. T_{inf} et T_{sup} représentent les températures inférieures (T_{inf}) et supérieures (T_{sup}) des paliers utilisés pour le calcul des paramètres de diffusion. La colonne « temps total » est la durée de cet intervalle. Enfin, f_{He} est la fraction d'He relâchée avant la température T_{inf} .

Tableau IV.4: Résumé des valeurs de diffusion obtenues lors des expériences de diffusion sur les cristaux de calcite de faille du fossé de Gondrecourt et sur un échantillon de calcite hydrothermale type MVT.

Échantillon	E_a (kcal/mole)	$\ln(D_0/a^2)$ (s ⁻¹)	T_c (°C)	T_{inf} (°C)	T_{sup} (°C)	Temps total (min)	f_{He} (%)
A2-2	23,3±0,2	6,6±0,1	10±2	160	250	480	0,02
B4-8	26,7±0,7	12,4±0,3	13±5	160	260	300,0	0,0
B4-14	17,3±0,5	4,2±0,1	-48±5	140	300	375,0	0,1
C1b-12	21±0,8	5,2±0,1	-8±7	160	300	480	0,02

5.2.2 Diffusion dans les cristaux de calcite de Gondrecourt

5.2.2.1 Échantillons à diffusion arrhénienne

Les paramètres de diffusion obtenus sur les échantillons A2-2, B4a-8, B4a14 et C1b-12 (tableau II.1) présentent des comportements arrhéniens à partir desquels il est possible de calculer l'énergie d'activation et le facteur préexponentiel.

La sélection des paliers qui permettent de définir les paramètres de diffusion se font suivant la procédure suivante :

- Pour les températures les plus basses, les fractions d'hélium doivent être supérieures à 2% pour éviter les effets de surface et de dégazage des plus petits domaines de diffusion.
- Pour les températures les plus élevées, les paliers correspondant à plus de 70% d'hélium total ne sont pas pris en compte car ils ne respectent pas les prérequis nécessaires pour la bonne utilisation des modèles.

Les expériences de diffusion sur l'échantillon A2-2 se sont déroulées selon une évolution linéaire de la température avec une vitesse de chauffage d'environ 0,8°C/min (à partir du deuxième palier) (Figure IV.8). Une droite de corrélation a été établie à partir de quatre paliers, du troisième au sixième, de 200 à 350°C, de 180 minutes à 360 minutes. Dans cet intervalle, il y a 41 % d'hélium dégazé. Les paramètres de diffusion déduits de cette droite

de corrélation sont $E_a=23,3\pm 0,2$ kcal/mole et $\ln(D_0/a^2)=6,6\pm 0,1$ s⁻¹, la température de fermeture associée est de $10\pm 2^\circ\text{C}$.

Les expériences de diffusion sur l'échantillon B4a-8 ont été réalisées avec des paliers de 60 minutes et une vitesse de chauffage de $0,7$ °C/min jusqu'à 300°C puis de $1,6$ °C/min (Figure IV.9). La droite de corrélation intègre quatre paliers à partir du troisième palier de 160°C à 350°C , de 180 minutes à 360 minutes. Au cours de ces paliers, environ 70 % de la quantité totale d'hélium de l'échantillon a été dégazé. L'énergie d'activation associée est de $26,7\pm 0,7$ kcal/mole, la valeur du facteur pré-exponentiel $\ln(D_0/a^2)$ de $12,4\pm 0,3$ s⁻¹ et la température de fermeture est de $13\pm 5^\circ\text{C}$.

L'échantillon B4a-14, dont les paliers de chauffage étaient de 25 min et non plus de 60 min, présente un comportement non arrhézien à basse température (inférieure à 200°C) (Figure IV.10). L'hélium dégazé durant ces paliers est de 11 % de l'hélium total extrait. Par la suite, huit paliers présentent des paramètres de diffusion qui s'alignent du sixième palier au treizième palier, entre 140°C et 280°C , de 175 minutes à 350 minutes. Dans cet intervalle, de petits dégazages d'hélium aux températures de 280°C , 300°C et 320°C sont notables. Cela permet de calculer une énergie d'activation de $17,3\pm 0,5$ kcal/mole et de $\ln(D_0/a^2)$ de $4,2\pm 0,1$ s⁻¹. La température de fermeture est de $-48\pm 5^\circ\text{C}$.

Pour l'échantillon C1b-12 la vitesse de chauffage est d'environ $0,3$ °C/min jusqu'à $1,3^\circ\text{C}/\text{min}$ en passant par $0,6$ °C/min (Figure IV.11). Entre le cinquième palier et le huitième, entre 160 et 300°C et à partir de 300 minutes, les paramètres de diffusion s'alignent sur une droite de corrélation avec 65 % d'hélium dégazé. L'énergie d'activation associée est de $21\pm 0,8$ kcal/mole et $\ln(D_0/a^2)$ de $5,1\pm 0,1$ s⁻¹. La température de fermeture est de -8°C .

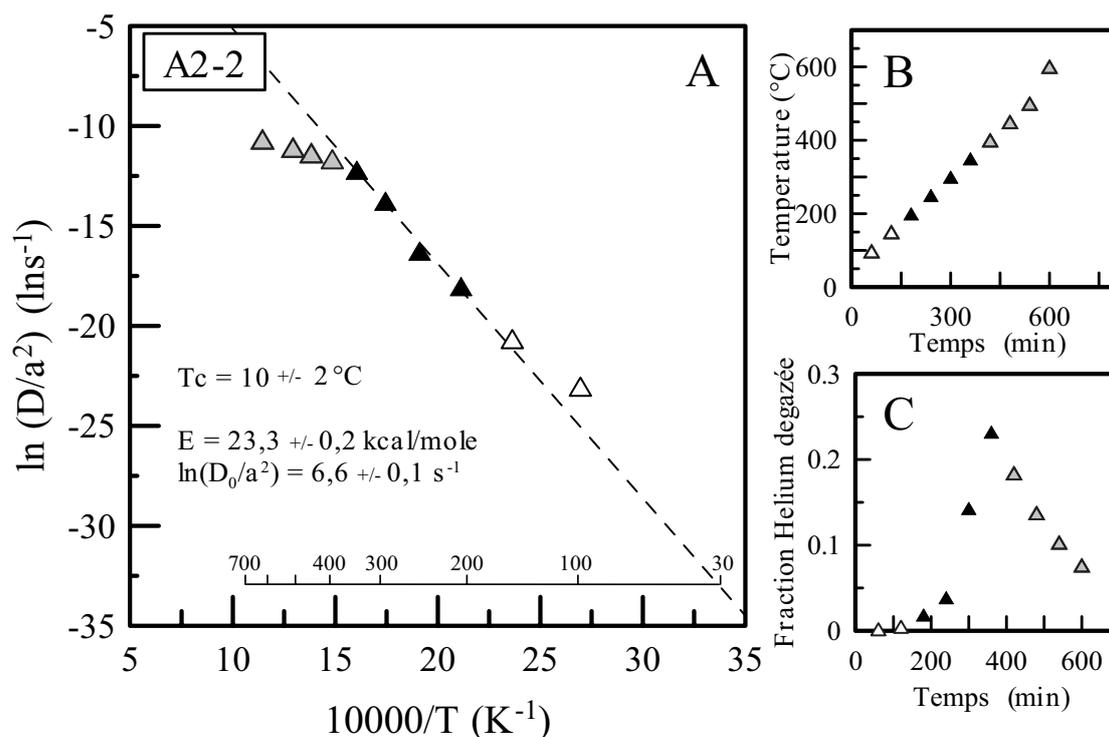


Figure IV.8 : (A) Diagramme d'Arrhenius de l'échantillon A2-2 de calcite des microfractures A2. (B) Evolution de la température en fonction du temps au cours de l'expérience de diffusion. (C) Fraction d'hélium dégazée en fonction du temps.

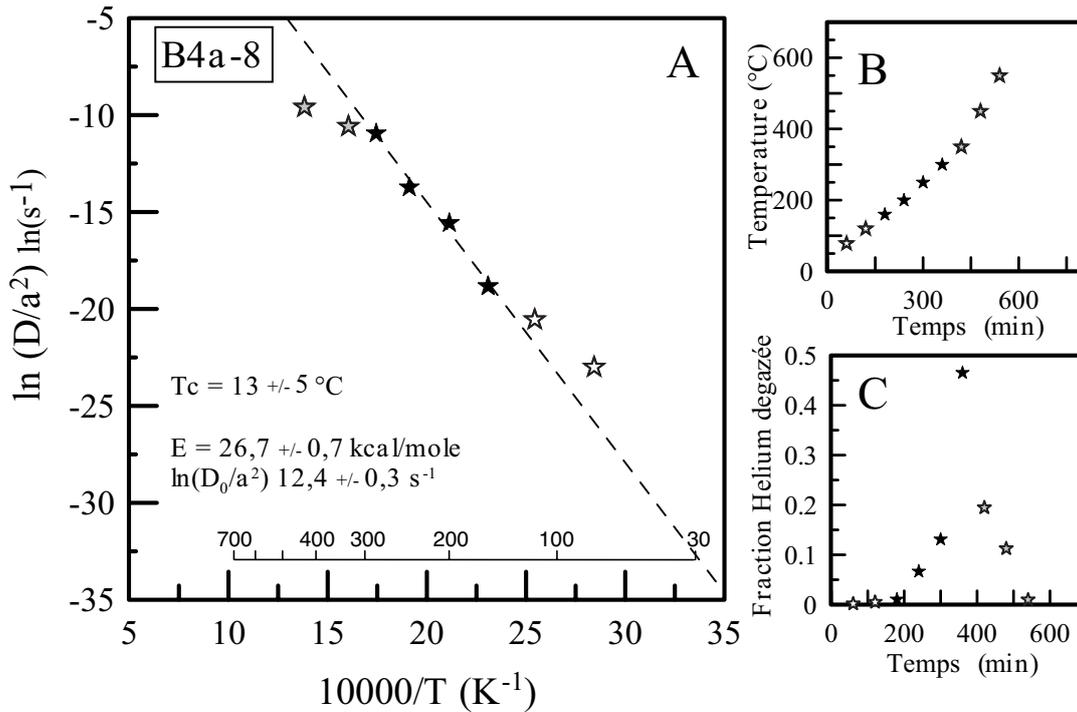


Figure IV.9 : (A) Diagramme d'Arrhenius pour l'échantillon de calcite de remplissage bréchiq B4a-8. (B) Evolution de la température en fonction du temps au cours de l'expérience de diffusion. (C) Fraction d'hélium dégazée en fonction du temps.

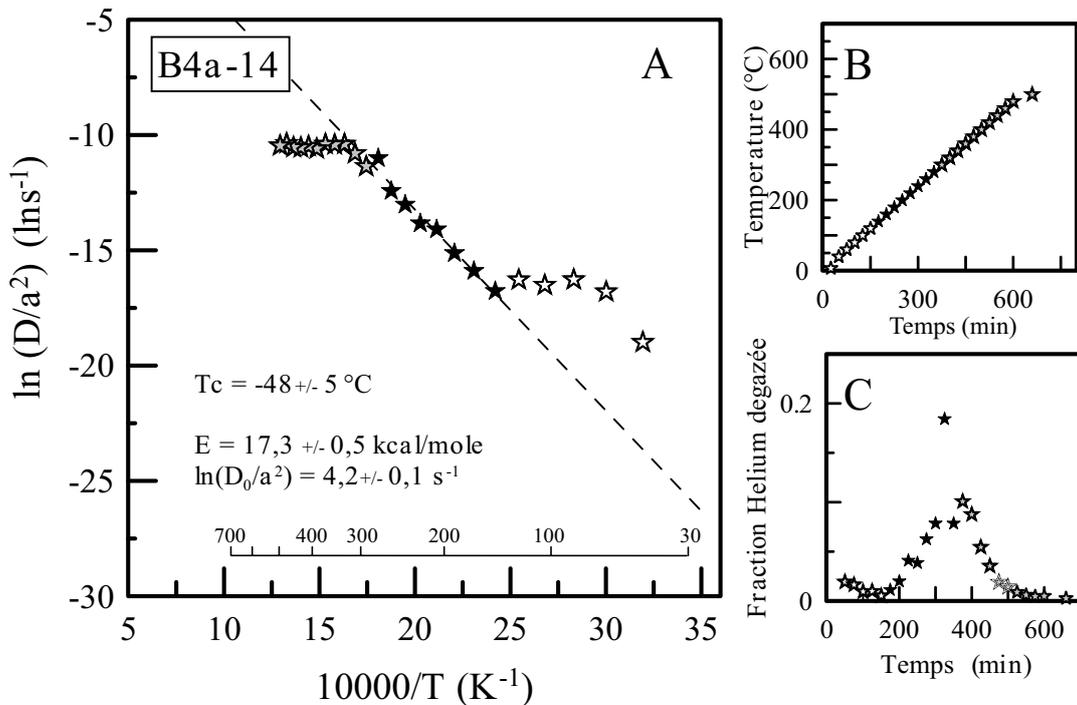


Figure IV.10 : (A) Diagramme d'Arrhenius pour l'échantillon de calcite de remplissage bréchiq B4a-14. (B) Evolution de la température en fonction du temps au cours de l'expérience de diffusion. (C) Fraction d'hélium dégazée en fonction du temps.

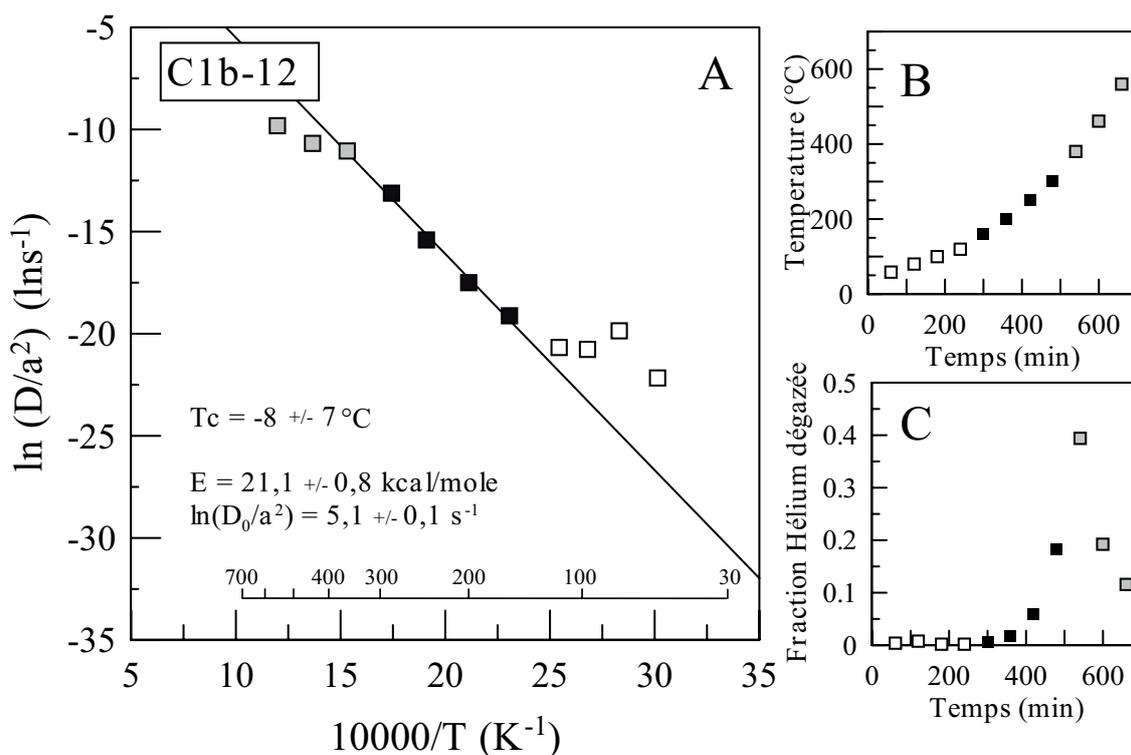


Figure IV.11 : (A) Diagramme d'Arrhenius pour l'échantillon de calcite filonienne C1. (B) Evolution de la température en fonction du temps au cours de l'expérience de diffusion. (C) Fraction d'hélium dégazée en fonction du temps.

5.2.2.2 Autres expériences de diffusion à comportement non arrhénien

Des expériences de diffusion ont également été réalisées sur les échantillons A2-4, A2-5, B4a-9, B4a-10, B4a-11 et C1b-13. Il n'a pas été possible de déterminer les énergies d'activation et le facteur préexponentiel car trop peu de paliers présentent des alignements satisfaisants. Les diagrammes pour ces échantillons sont disponibles en annexes.

5.2.3 Diffusion dans un cristal de calcite de hydrothermale

L'expérience de diffusion de l'échantillon de calcite (MVT 16) provenant d'un gisement hydrothermal type MVT a été réalisée avec une succession de paliers de dégazage de 25 minutes avec augmentation de 20°C entre chaque palier (Figure IV.12). La diffusion sur cet échantillon présente, comme pour les autres échantillons, des dégazages d'hélium à basse température ($<150^\circ\text{C}$). Des cristaux de calcite type MVT ont été analysés par Copeland et al., (2007), et les résultats présentent de fortes similitudes, comme illustrés dans la figure IV.13. Les auteurs observent également à basse température des inflexions ainsi que des bombements qui rendent impossible le calcul de l'énergie d'activation et du facteur préexponentiel.

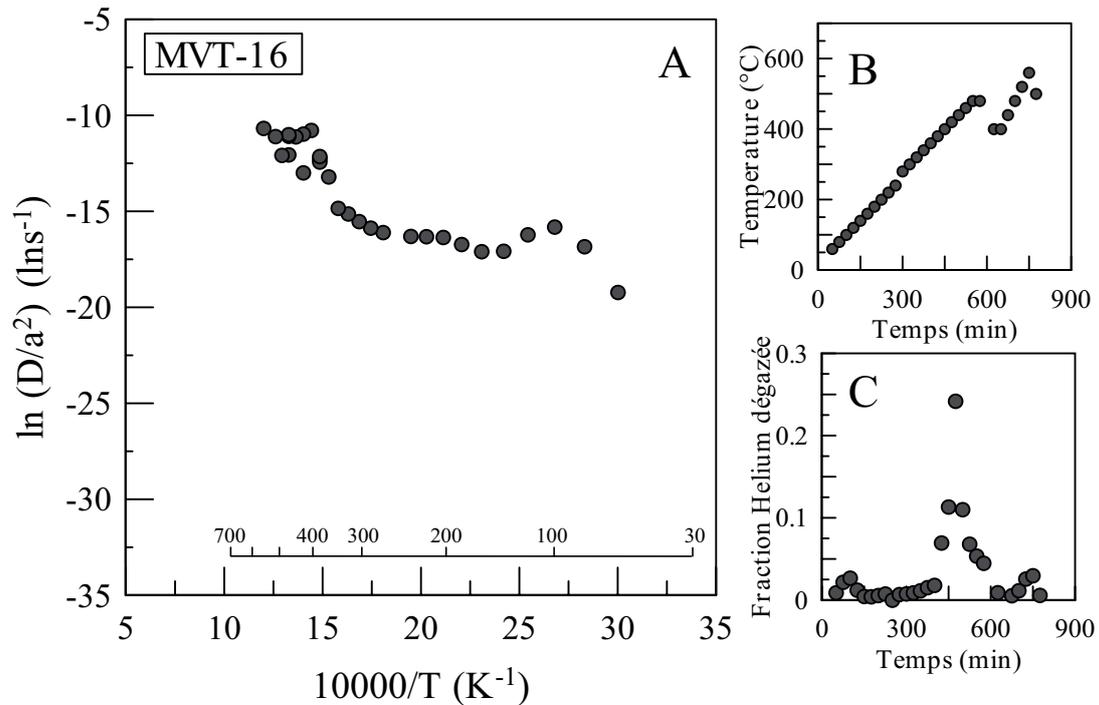


Figure IV.12 : (A) Diagramme d'Arrhenius pour un échantillon de remplissage calcitique hydrothermal MVT-16. (B) Evolution de la température en fonction du temps au cours de l'expérience de diffusion. (C) Fraction d'hélium dégazée en fonction du temps.

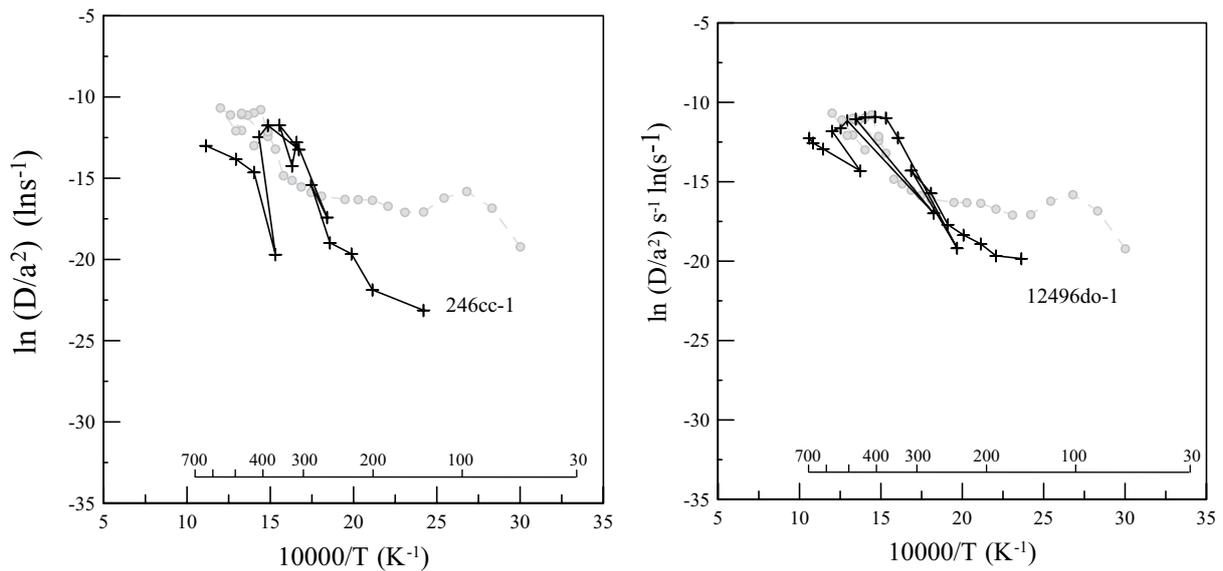


Figure IV.13 : Diagramme d'Arrhenius pour des échantillons de remplissage calcitique hydrothermal type MVT obtenus par Copeland et al. (2007) en noir et en gris pour l'échantillon MVT-16.

6. Diffusion de l'hélium dans la calcite de faille

Les valeurs des énergies d'activation et des facteurs préexponentiels obtenues dans ce travail diffèrent de celles qui ont été publiées par Copeland et al. (2007) (Tableau IV.3 et Figure IV.8 à IV.13). Dans la figure IV.14, sont reportées toutes les données de cristaux de calcite A2, B4a et C1 ainsi que celle obtenues par Copeland et al. (2007).

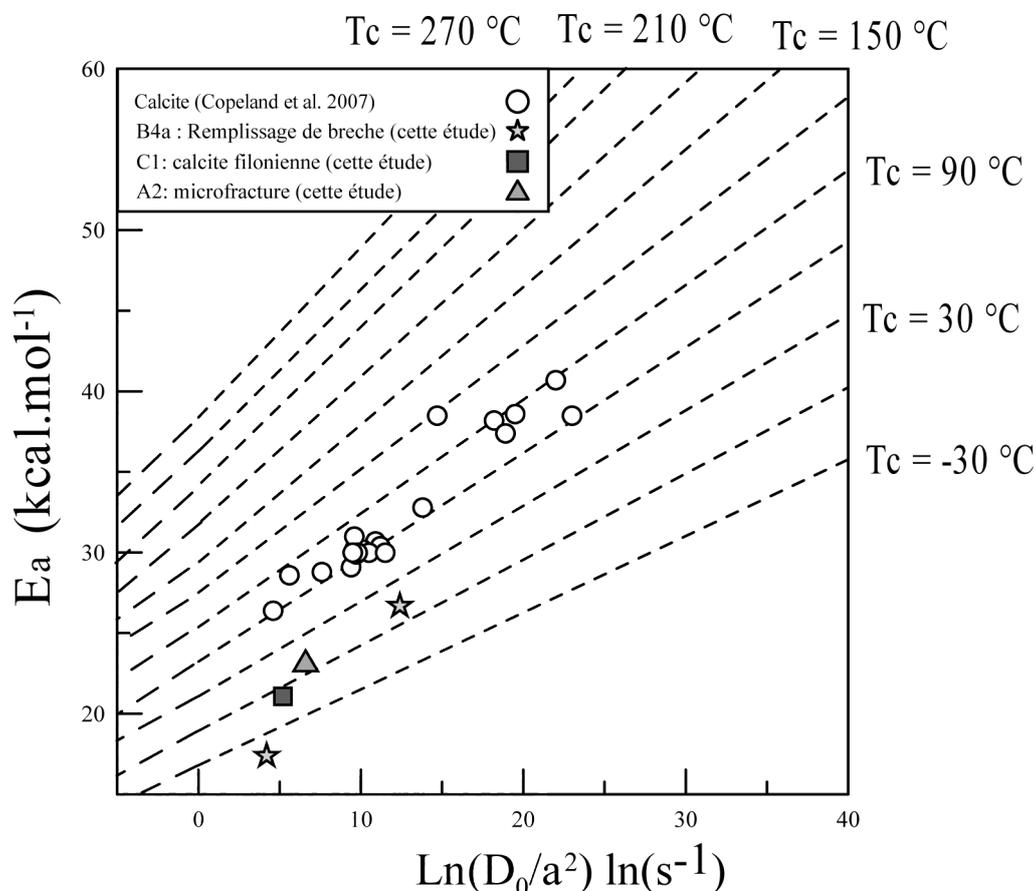


Figure IV.14 : Energies d'activation en fonction du facteur pré-exponentiel $\ln(D_0/a^2)$ obtenues dans ce travail pour les cristaux de calcite de faille et les données de Copeland et al. (2007) pour des cristaux d'origines diverse.

Afin de proposer un modèle du comportement de diffusion de l'He dans les cristaux de calcite, les trois points suivants sont développés : (1) effet de la répartition de l'hélium dans le cristal (rôle des inclusions fluide ou des microfissures), (2) évolution microstructurale des cristaux au cours de l'analyse sur le comportement de diffusion (i.e. évolution du réseau cristallin avec l'augmentation de la température lors des expériences de diffusion) et (3) des domaines multiples de diffusion.

6.1 Rôle potentiel des inclusions fluides

Dans le cas d'un processus de diffusion gouverné par un seul domaine de diffusion, à vitesse de chauffage constante, les fractions d'hélium relâchées doivent suivre une loi log-normal au cours du temps. Les résultats obtenus dans cette étude montrent des irrégularités de relâchement d'hélium au cours des étapes successives de chauffage. Par exemple dans le cas de l'échantillon B4a-14, la concentration d'He dégazée au palier à 200°C est supérieure à celle du palier à 220°C. Le dégazage d'hélium provenant des inclusions fluides peut

expliquer un tel phénomène. Des observations d'inclusions fluides ont été réalisées sur des grains de tailles équivalentes aux échantillons analysés lors des expériences de diffusion afin de documenter ce phénomène. Ces expériences ont été réalisées sur une surplatine chauffante montée sur un microscope et ont eu pour but de déterminer la gamme des températures de décrépitation des inclusions fluides. Les températures de décrépitation des inclusions fluides aqueuses monophasées surviennent de 350 à 450°C à pression externe atmosphérique (Figure IV.15).

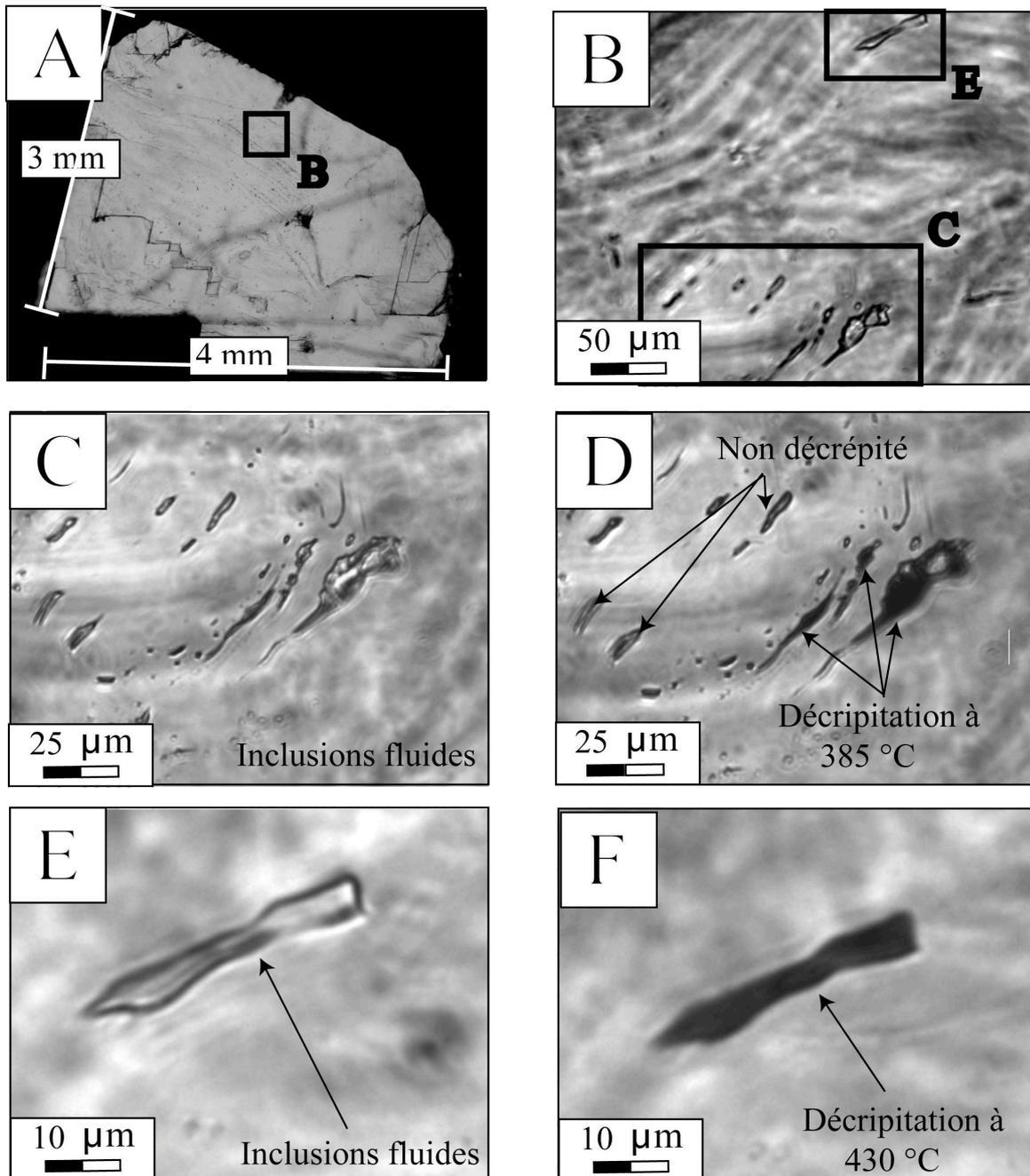


Figure IV.15 : Planche photo présentant des inclusions décrépitées lors du chauffage. (A) Echantillon analysé et la localisation des inclusions fluides. (B) zone des inclusions fluides étudiées. (C) Photo avant décrépitation des inclusions. (D) Photo après décrépitation à 385°C. (E) Photo avant décrépitation (F) photo après décrépitation à 430°C.

Dans les expériences de diffusion qui sont réalisées sous vide, la température de décrépitation sera plus basse car elle dépend de différence entre la pression interne dans l'inclusion et la pression externe. De tels relâchements ponctuels d'hélium peuvent modifier les résultats des expériences de diffusion et entraîner des anomalies dans les diagrammes d'Arrhenius pour les expériences de diffusion réalisées. Pour contraindre ces effets, des modélisations ont été réalisées afin de déterminer l'influence de tels événements ponctuels sur les diagrammes d'Arrhenius (Figure IV.16). Il s'agit de quatre modélisations réalisées sur l'échantillon B4a-14 à des températures de 160°C, 200°C et 300°C. Le principe a été d'introduire un épisode de dégazage supplémentaire d'hélium de 1%, 5%, 10% et 25% (Figure IV.16 B) calculé à partir des concentrations totales d'hélium extraites lors du dégazage de cet échantillon. Plus les ajouts d'hélium des inclusions fluides sont élevés, plus l'influence sur le diagramme d'Arrhenius est importante. Il en ressort une surrestimation de la valeur du coefficient de diffusion du palier analysé avec une légère sous-estimation des paliers précédents de quelques pourcent et une surrestimation pour les paliers suivants.

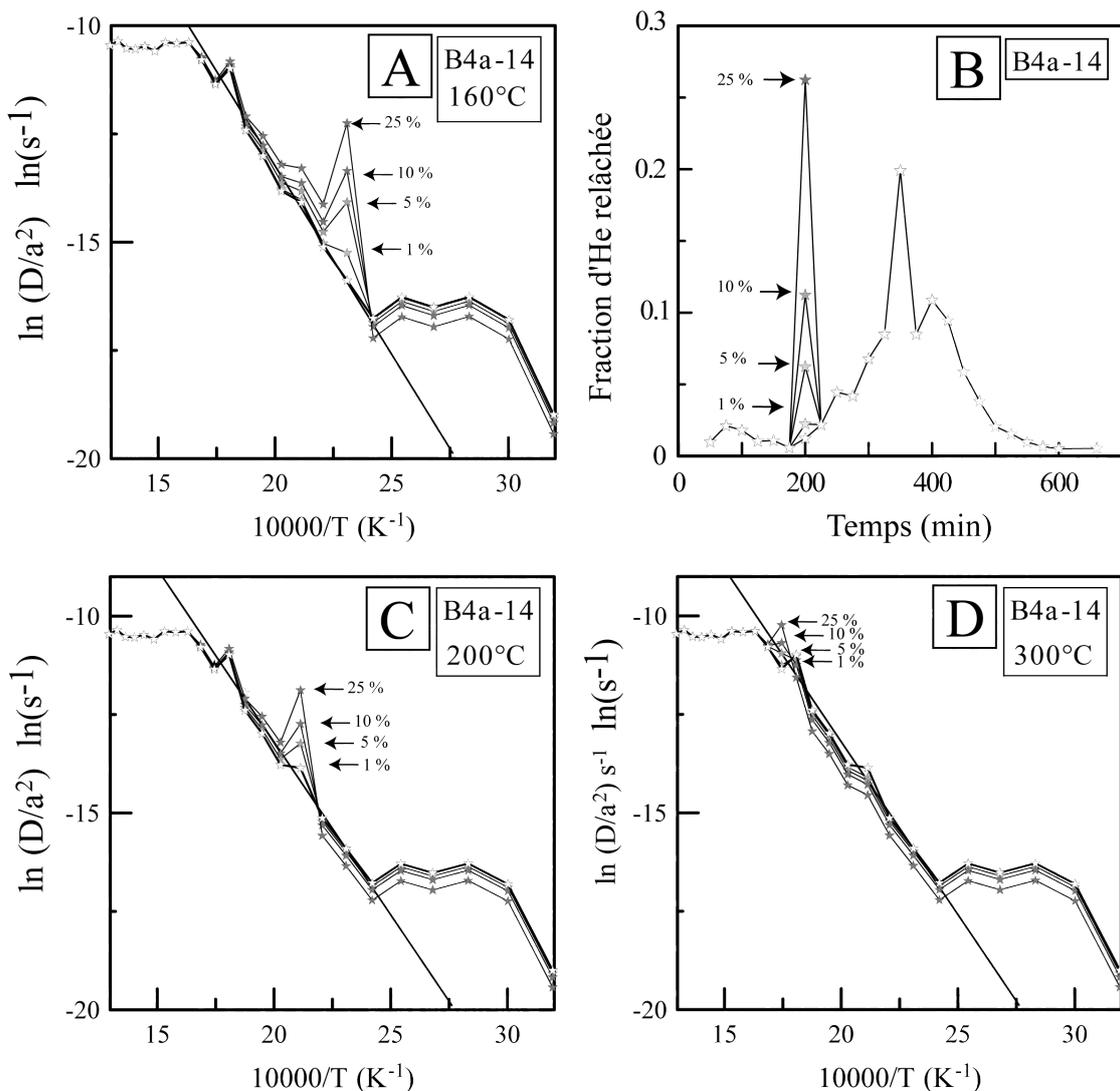


Figure IV.16 : Modélisation de l'influence de la décrépitation d'inclusions fluides aux paliers de 160°C, 200°C et 300°C sur la représentation d'Arrhenius et sur le diagramme de la fraction d'hélium libérée en fonction du temps pour l'échantillon B4a-14. Les inclusions contiennent des fractions variables d'hélium. De 1% à 50% du volume total d'hélium de l'échantillon.

Des modélisations ont été également réalisées à des températures de 200°C et 300°C (Figure IV.16 C et D). À plus haute température, les effets sont plus importants. Néanmoins les perturbations sur les paliers précédents ou suivants sont identiques quelque soit le palier de température « contaminé » pour une même quantité d'hélium introduite (Figure IV.16). Cet écart est illustré par le rapport au paramètre de diffusion mesuré $\ln(D_0/a^2)_m$ sur celui simulé $\ln(D_0/a^2)_{if}$ (Figure IV.17).

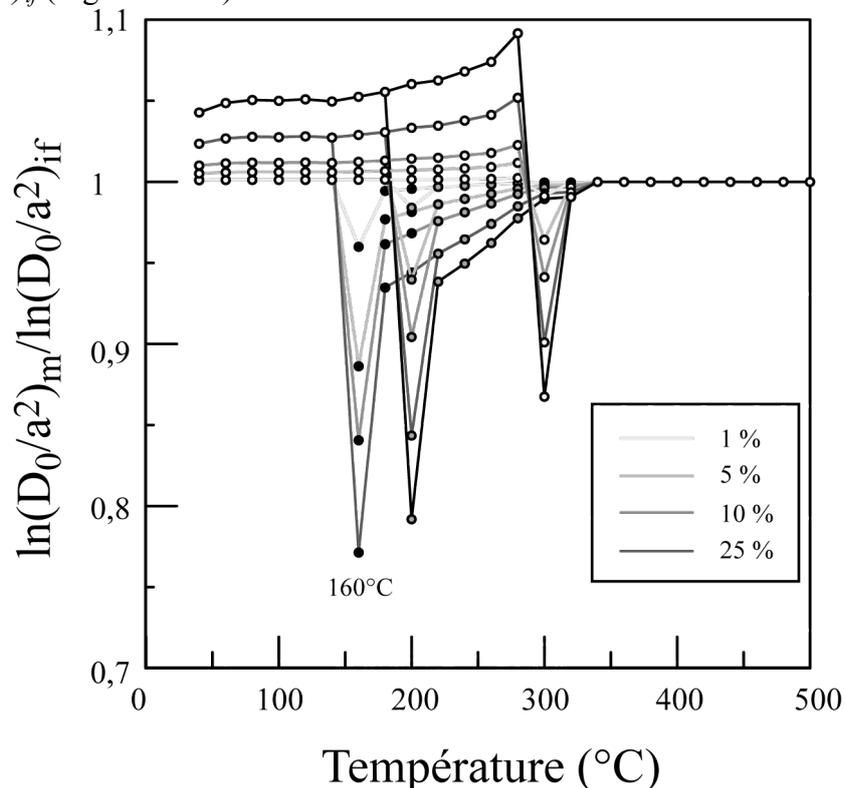


Figure IV.17 : Diagramme présentant les rapports des valeurs mesurées de $\ln(D/a^2)_m$ avec les valeurs de $\ln(D/a^2)_{if}$. $\ln(D/a^2)_{if}$ correspond à la contamination ponctuelle par la décrépitation d'une inclusion fluide contenant différentes fractions d'hélium. Ces fractions d'hélium varient de 1 à 50 % du contenu total en hélium de l'échantillon. L'effet diminue pour des températures élevées. Les écarts sont similaires pour les autres paliers que ce soit pour une décrépitation à 160°C, 200°C ou à 300°C.

Il est possible de corriger cet effet sur les données mesurées, en lissant la courbe de dégazage. Pour cela, l'idéal est de réaliser des paliers de températures avec un gradient de température constant. La modélisation de cette correction a été réalisée sur l'échantillon B4a-14 (Figure IV.18). Cet échantillon présente des résultats qui pour certains paliers, peuvent être interprétés par un événement ponctuel de libération d'hélium, via la décrépitation d'inclusions fluides (paliers à 220, 300, 340 et 360 °C). Dans cette hypothèse, la quantité l'hélium provenant des inclusions fluides est de 17,7 % (somme des 4 paliers), soit 0,05 pmol/g de la quantité d'hélium de l'échantillon. Les valeurs de l'énergies d'activation résultantes sont plus faibles que les valeurs sans correction et passent de $17,3 \pm 0,5$ à $14,7 \pm 0,5$ kcal/mole, et de $4,2 \pm 0,1$ à $1,4 \pm 0,1$ s⁻¹. La température de fermeture, après correction est de -68 °C au lieu de -48°C.

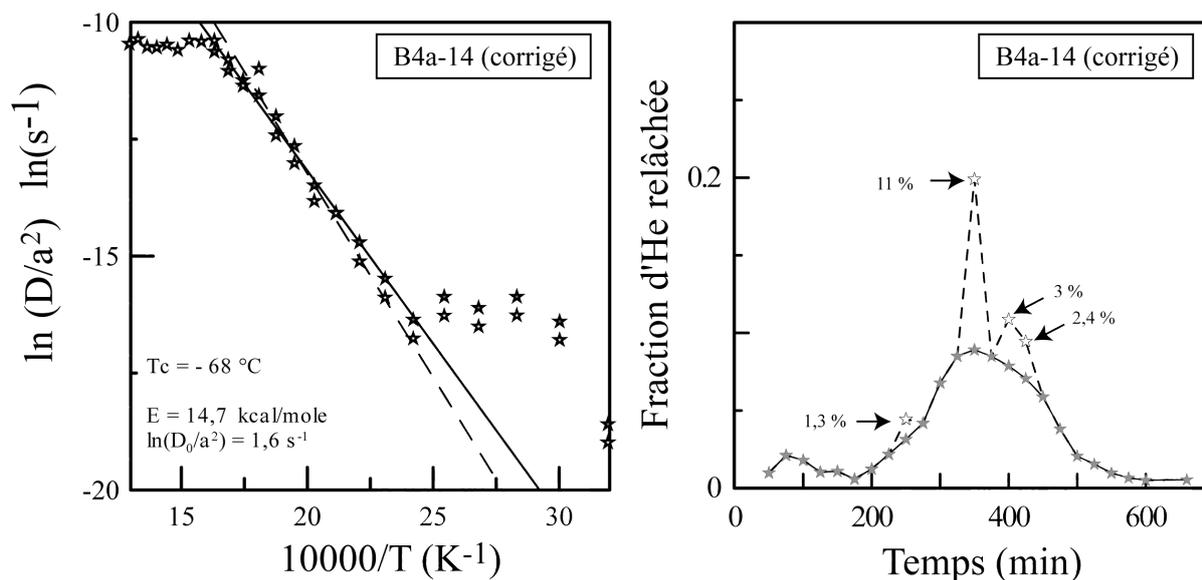


Figure IV.18 : Modélisation des données de diffusion corrigées de possibles décrépitations d'inclusions fluides aux paliers 220, 300, 340 et 360 °C. La courbe d'hélium « relâchée » est la courbe avec des étoiles blanches la courbe « corrigée » est la courbe d'étoiles grises.

Bien que les températures de décrépitation des inclusions fluides surviennent aux alentours de 400 °C à pression ambiante, sous ultra vide, où il existe un fort contraste entre la pression de l'inclusion dans le minéral et l'environnement la décrépitation peut survenir à plus basse température. Des études quantitatives seraient nécessaires pour déterminer la gamme de température où les inclusions décrépitent sous vide. En conclusion, la décrépitation d'inclusions fluides peut apporter une source ponctuelle d'hélium et avoir un effet sur les profils de diffusion, dépendante de cette quantité. Cependant, la décrépitation d'inclusions fluides n'est qu'un effet ponctuel, mais ne peut expliquer la forme générale des tendances obtenues dans le diagramme d'Arrhenius.

6.2 Influence des effets de surface sur la diffusion de l'He

L'hélium relâché dans les premiers paliers de chauffage des expériences de diffusion provient essentiellement de zones proches de la surface. La rugosité de cette dernière peut avoir une influence sur la fraction d'He pour chaque palier. La figure IV.19, illustre la notion de surface et de morphologie. Si les motifs de rugosité de surface sont très inférieurs aux distances de déplacement de l'hélium, ces effets seront négligeables et seront similaires à une surface plane (Figure IV.19). Dans le cas opposé, et pour un même temps et une même température, la concentration d'hélium relâchée est plus conséquente. L'effet de surface est important et augmente les $\ln(D/a^2)$ des premiers paliers qui sont sujets à cet effet.

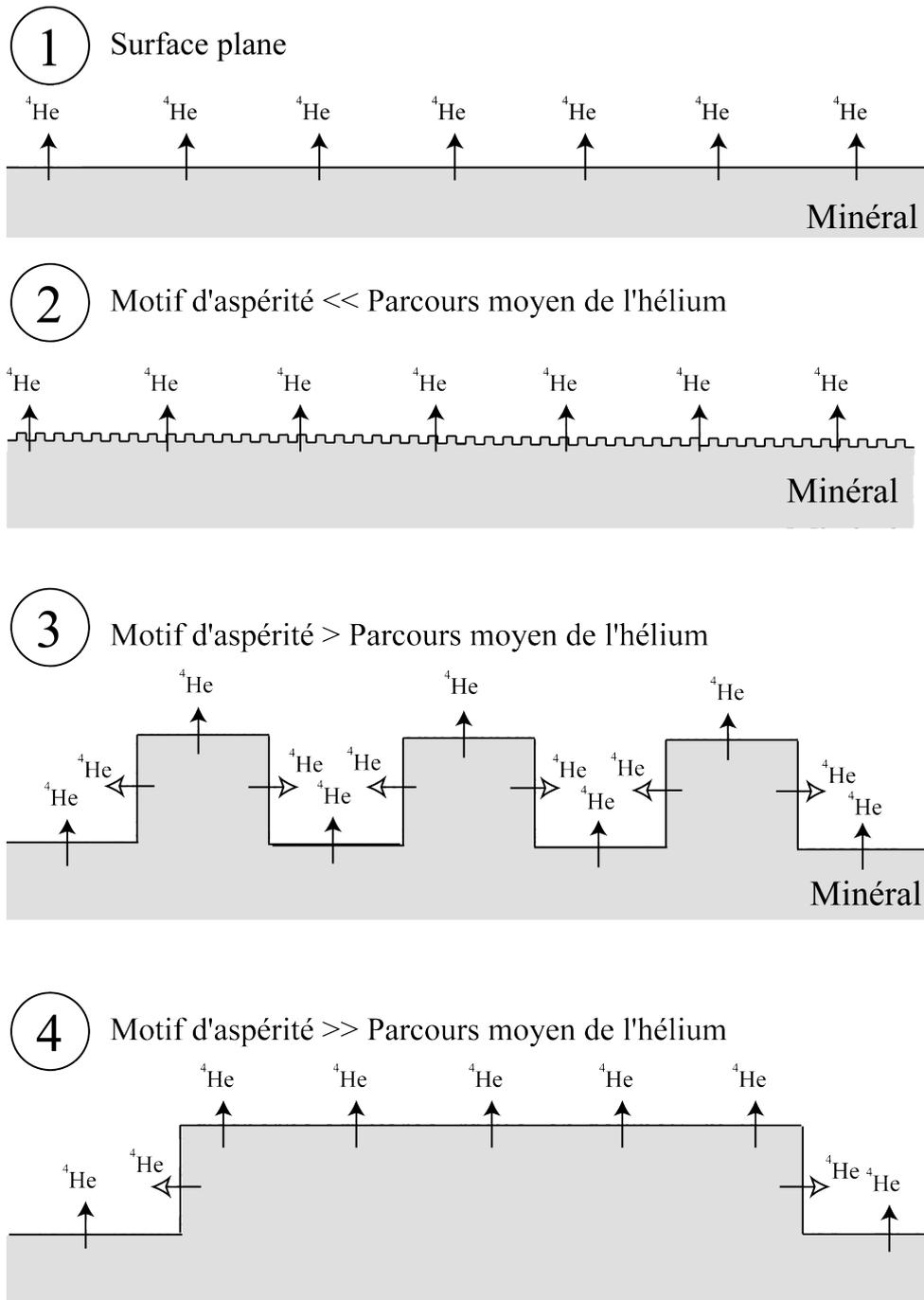


Figure IV.19 : Schéma présentant l'influence de la morphologie de surface par rapport à la distance de déplacement de l'hélium sous l'effet de la température dans le cas d'une surface lisse jusqu'à des surfaces plus irrégulières.

L'étude pétrographique menée sur les échantillons de calcite de cette étude (paragraphe 4.2), révèle l'irrégularité de la surface des grains. Cela va engendrer une fraction d'He plus élevée que dans le cas d'une surface lisse lors du dégazage des premiers paliers. Les premiers paliers de dégazage ($<140\text{ }^\circ\text{C}$) pourraient correspondre en partie à cet effet (Fig. IV.8 à IV.13) mais il faut également envisager d'autres processus qui peuvent subvenir à plus grande échelle.

6.3 Effets des multiples domaines de diffusion

La présence de plusieurs domaines de diffusion dans un même cristal influe sur le dégazage de l'hélium (section IV.2.2 pour plus de détails). Cette notion a d'abord été formulée pour la thermochronologie Ar/Ar, afin d'expliquer les comportements non arrheniens des profils de diffusion de l'Ar (Lovera et al., 1989, McDougall et Harrison, 1999). La vitesse de diffusion des atomes d'hélium dépendra du domaine de diffusion. Ces différents domaines se modélisent comme des cristaux indépendants avec des paramètres de taille et/ou des paramètres de diffusion différents. Le gaz va diffuser dans l'ensemble de ces domaines simultanément (McDougall et Harrison, 1999; Fulda et Lippolt, 2000; Farley et al., 2010). Ainsi la fraction d'hélium mesurée intègre la contribution de chaque domaine pour un palier de température. Fulda et Lippolt (2000) modélisent le comportement de diffusion dans le cas de plusieurs tailles de domaine de diffusion présentant des énergies d'activation identiques, ainsi que des coefficients de diffusion D identiques. Les résultats dépendent de l'évolution de la température choisie par l'expérimentateur (Fulda et Lippolt, 2000). Graphiquement les valeurs des paramètres de diffusion mesurées correspondront à une valeur intermédiaire entre les valeurs des domaines. La figure IV.20 illustre la notion de taille de grain et l'influence des multiples domaines de diffusion.

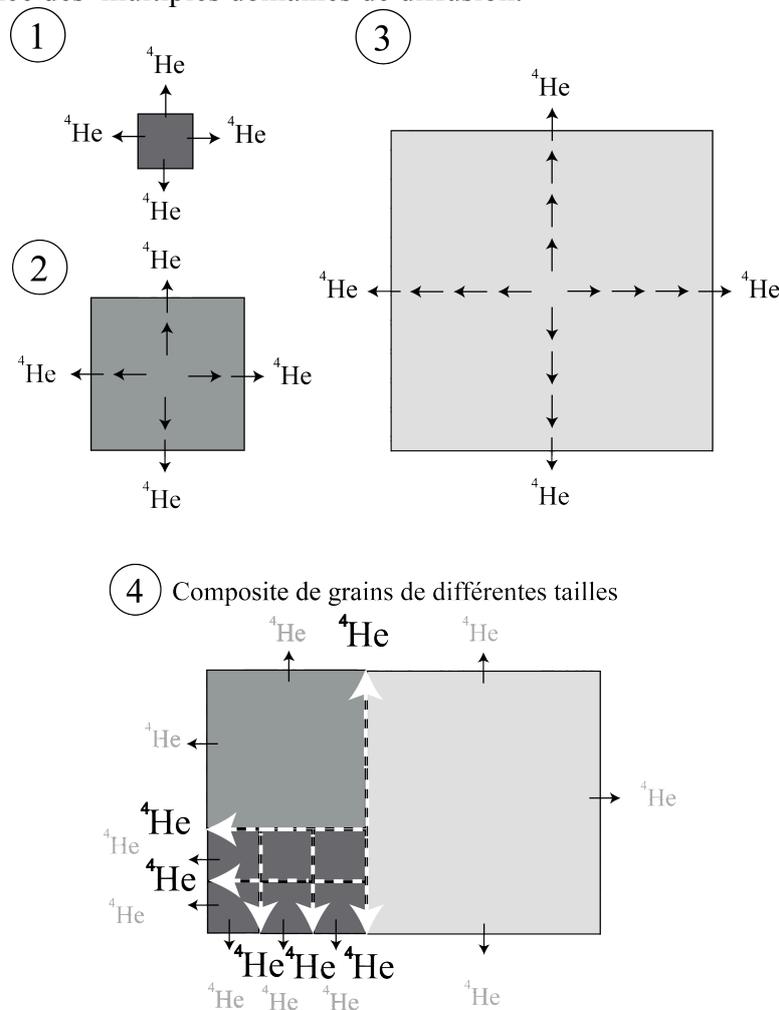


Figure IV.20 : Schémas présentant l'influence de l'effet de la diffusion des domaines de diffusion de tailles différentes par rapport à un vecteur de déplacement constant. (1), (2) et (3). Les grains les plus petits relâchent plus rapidement leur hélium que les domaines les plus gros. (4) L'effet est présenté pour un grain composite.

Dans le cas où l'énergie d'activation et le paramètre de diffusion D sont homogènes sur l'ensemble d'un cristal, la seule variable qui peut produire des comportements non arrhéniens est la taille des domaines (a^2). La structure des cristaux de calcite est propice à la présence de multiples domaines de diffusion (macles et clivages). Dans le modèle de multiples domaines de diffusion, les domaines les plus petits relâchent plus rapidement l'hélium que les domaines les plus larges et correspond à une fraction de 1 à 7 % de la fraction totale du minéral dans le cas de cette étude (Figure IV.20). Les premiers paliers à basse température correspondent à une faible énergie d'activation apparente. Cette énergie apparente est le résultat du dégazage simultané de plusieurs domaines de tailles différentes. (Figures IV.8 à IV.13). Cet effet est maximal par exemple sur l'échantillon B4a-14 et MVT-16 avec un maximum d'intensité sur l'expérience de dégazage d'hélium menée sur des cristaux de calcite de type MVT. L'ensemble des données de Copeland et al. (2007) présente des valeurs homogènes de diffusion pour les carbonates. Mais certains diagrammes montrent les mêmes tendances à multiples domaines de diffusion. Dans le cas de Copeland et al. (2007), les premiers paliers d'extraction de 100 à 200°C, durent de plusieurs jours à plusieurs semaines. La différence des comportements de diffusion pour les échantillons les plus linéaires (Copeland et al., 2007) et pour notre étude peuvent s'expliquer par ces différences expérimentales. Dans certaines expériences de Copeland et al. (2007), lors du chauffage des paliers à basses températures, les plus petits domaines de diffusion ont pu relâcher la majorité de leur hélium. Ce qui entraîne que le relâchement des paliers suivant reflète la diffusion des domaines les plus larges. D'autre part, toutes les expériences de Copeland et al. (2007) ont été réalisées sur des échantillons qui ont subi des histoires géologiques et thermiques complexes. Il se peut que ces échantillons possèdent des configurations microstructurales moins rétentives qui rendraient les plus petits domaines encore plus diffusifs. Ces domaines ne contiendraient que très peu d'hélium et ne seraient que très peu exprimés lors des expériences de diffusion.

6.4. Influence des microstructures héritées ou produites lors des expériences de diffusion sur les domaines de diffusion

Lors de l'étude cristallographique (chapitre III), il a été démontré que des évolutions microstructurales surviennent au cours du chauffage d'un échantillon de calcite. Cela implique que, lors du dégazage des cristaux de calcite, des microstructures sont apparues. Ainsi, les multiples chemins de diffusion évoluent en même temps que l'analyse. Étant donné que les microstructures sont dépendantes du traitement thermique de l'échantillon les relâchements irréguliers peuvent survenir à différents moments au cours des expériences de diffusion. La figure IV.21 illustre ce processus. Lorsqu'un atome d'He rencontre une microfissure, la diffusion de ce dernier se retrouve facilitée. Si les microfissures s'interconnectent, cela crée des chemins de diffusion plus rapides dans le grain. L'interconnexion des microfissures à terme génère de multiples domaines de diffusion.

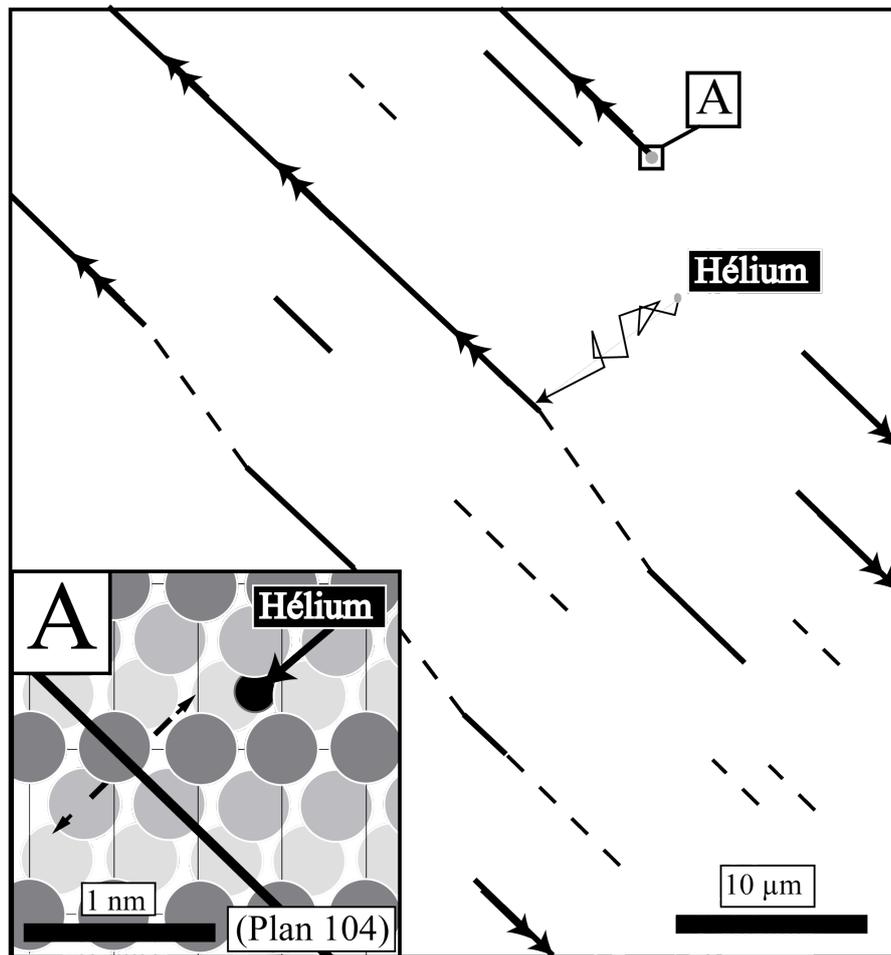


Figure IV.21 : Schéma conceptuel sur les chemins de diffusion de l'hélium dans un cristal de calcite présentant des microfractures (trait noir). Le schéma est dans le plan (001) perpendiculaire au plan de clivage du réseau cristallin de la calcite. Lorsqu'un atome d'hélium rencontre une microfissure, il aura tendance à être extrait plus rapidement du minéral. Les pointillés représentent la formation de microfractures dans le cristal lors du chauffage d'un échantillon de calcite. Les microfractures vont s'interconnecter et favoriser des chemins de diffusion plus rapides.

7. Modèle de diffusion de l'He dans la calcite

Le dégazage de l'hélium a été réalisé sur la calcite de faille de Gondrecourt et sur un échantillon de remplissage calcitique dans un gisement de type MVT, avec des paliers de chauffage courts (25 et 60 minutes) pour des temps totaux de dégazage de l'ordre 12 heures et sur une large gamme de température (40-700°C). Ce protocole expérimental est le meilleur compromis afin de limiter un effet de modification de la phase minérale au cours du temps et pour identifier les mécanismes de diffusion de l'He dans les cristaux de calcite. Malgré cela, les résultats présentent une grande variabilité dans la cinétique de dégazage de l'hélium. Ces résultats ne permettent pas de déterminer des paramètres généraux de diffusion de l'hélium dans la calcite de faille mais ils permettent de comprendre les mécanismes qui la gouvernent.

La calcite de faille présente plusieurs domaines de diffusion. Ces domaines dépendent de l'état microstructural du cristal. Les tendances linéaires dans les diagrammes d'Arrhenius

sont représentatives des domaines les plus rétentifs (taille des domaines les plus importants). L'expression des petits domaines (en taille) entraîne une augmentation du paramètre de diffusion à basse température.

La décrépitation des inclusions fluide, l'irrégularité de la surface, la présence de clivage, de micro-fissures, l'évolution microstructurale des cristaux de calcite au cours des expériences expliquent l'hétérogénéité des paramètres de diffusion de l'He. Ces hypothèses ne permettent pas de proposer des valeurs générales de coefficients de diffusion dans les cristaux de calcite de faille.

Un modèle du comportement de diffusion de l'He dans des cristaux de calcite est établi et la figure IV.22 illustre et commente les évolutions du coefficient de diffusion $\ln(D/a^2)$ sur le diagramme d'Arrhenius.

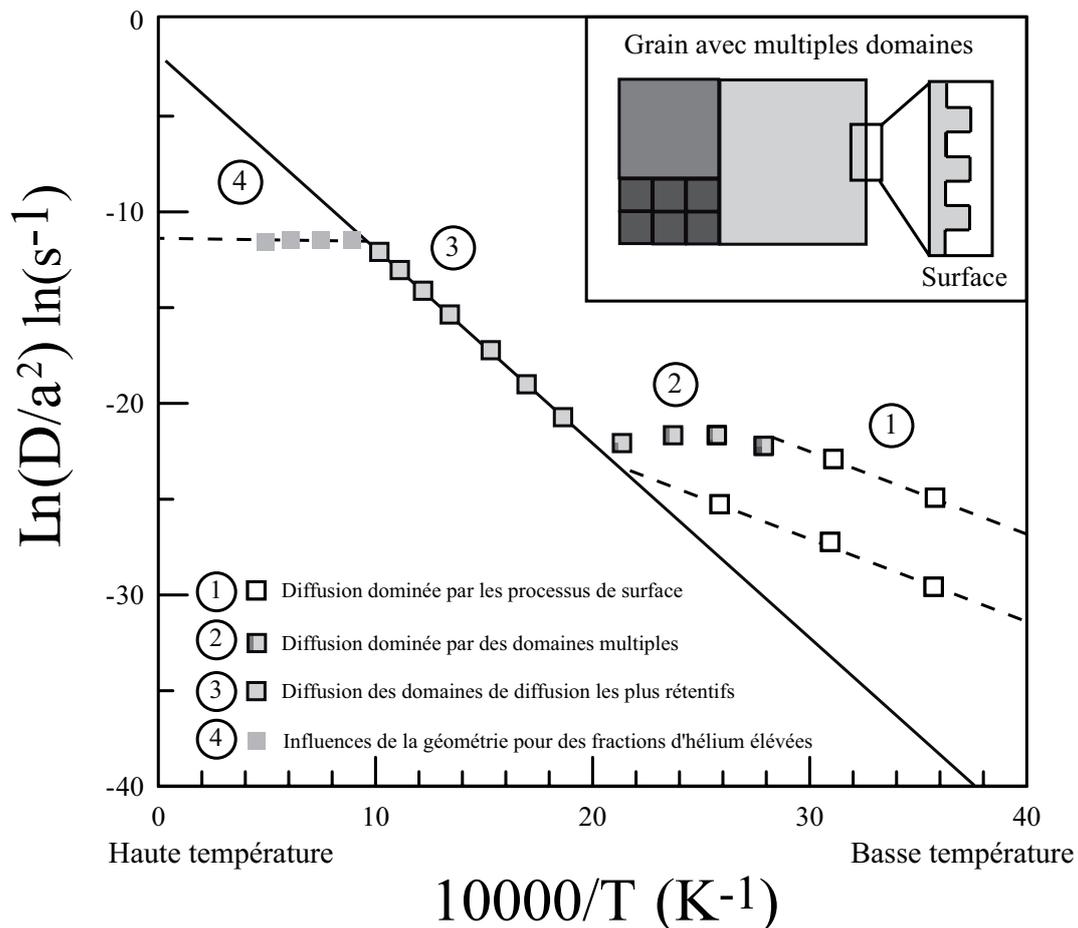


Figure IV.22 : Diagramme d'Arrhenius conceptuel présentant les différents mécanismes de diffusion dans les cristaux de calcite de faille.

La connaissance de ces mécanismes de diffusion de l'hélium pour les cristaux de calcite de faille est primordiale pour discuter de la pertinence de l'utilisation de ce minéral en tant que chronomètre ou thermochronomètre, ce qui est l'objet du chapitre suivant.