

CENTRE DE GEOCHIMIE DE LA SURFACE (UMR 7517)



<u>THÈSE</u>

Présentée en vue de l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ LOUIS PASTEUR

Sciences de la Terre et de l'Univers

Mention Géochimie

par

Mathieu Granet

Constantes de temps des processus d'érosion et d'altération dans le système himalayen :

Approche géochimique élémentaire et isotopique par les séries de l'Uranium

soutenue publiquement le 21 juin 2007

M. F. Chabaux M. M. Condomines M. Ch. France-Lanord M. J. Gaillardet M. K. Schulmann Professeur, EOST, Strasbourg I Professeur, LDL, Montpellier II Directeur de Recherches, CRPG Nancy Professeur, IPGP, Paris VII Professeur, EOST, Strasbourg I

Directeur de thèse Rapporteur externe Examinateur Rapporteur externe Rapporteur interne





CENTRE DE GEOCHIMIE DE LA SURFACE (UMR 7517)



<u>THÈSE</u>

Présentée en vue de l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ LOUIS PASTEUR

Sciences de la Terre et de l'Univers

Mention Géochimie

par

Mathieu Granet

Constantes de temps des processus d'érosion et d'altération dans le système himalayen :

Approche géochimique élémentaire et isotopique par les séries de l'Uranium

soutenue publiquement le 21 juin 2007

M. F. Chabaux M. M. Condomines M. Ch. France-Lanord M. J. Gaillardet M. K. Schulmann Professeur, EOST, Strasbourg I Professeur, LDL, Montpellier II Directeur de Recherches, CRPG Nancy Professeur, IPGP, Paris VII Professeur, EOST, Strasbourg I

Directeur de thèse Rapporteur externe Examinateur Rapporteur externe Rapporteur interne

Remerciements

Au terme de ce travail, je souhaite exprimer toute ma gratitude à François Chabaux, mon directeur de thèse, sans qui ce travail n'existerait pas. Je le remercie pour son soutien, sa patience et la qualité de son encadrement scientifique qui m'ont permis de mener ce travail à son terme.

Je tiens également à remercier chaleureusement Christian France-Lanord, pour sa confiance et sa collaboration. L'aboutissement de ce travail doit beaucoup à sa disponibilité et aux nombreuses discussions scientifiques que nous avons partagées durant ces quelques années.

Je remercie vivement les membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont témoigné envers mon travail en acceptant de le juger : Michel Condomines, Christian France-Lanord, Jérôme Gaillardet, et Karel Schulmann.

Je dois beaucoup pour la partie analytique aux ingénieurs et techniciens qui ont réalisé des analyses et qui m'ont initié au travail en salle blanche : Thierry Perrone, Bernard Kiefel, René Boutin, Daniel Million, Jean Samuel, et Robert Rouault. Un grand merci à l'ensemble des personnes qui ont su, de part leur patience et leur gentillesse, apporter des solutions à mes petits tracas administratifs quotidiens et à mes recherches d'articles demeurées infructueuses : Yves Armando, Annette Braun, Danièle Zill, Cathy Nothisen, Betty Kieffer, et Joëlle Bückenmeier.

Je souhaite saluer mes compagnons de mission, avec qui j'ai partagé de si bons souvenirs et quelques pépins en Himalaya : Eric Pelt, et Valier Galy. Les excellents souvenirs de ce voyage doivent beaucoup à l'organisation et le soutien de Christian France-Lanord et à Ananta Gajurel dont l'accueil fut si chaleureux.

Un grand merci aux enseignants que j'ai pu côtoyer pour tout ce qu'ils m'ont transmis sur les plans humain et pédagogique : Yves Cailleux, Yves Géraud, Marc Munschy, José Honnorez, Marie-Claire Pierret, François Chabaux et Karel Schulmann.

Ces années passées au Centre de Géochimie de la Surface n'auraient pas été aussi belles sans la présence de bon nombre de personnes et amis qui, de près ou de loin, ont vécu ce travail et avec qui j'ai pu partager bien des soirées inoubliables. Je tiens à citer simplement mes compagnons étudiants, thésards ou post-docs : Nico, Nico, Eric, Jonathan, Damien, Marie-Laure, Manu, Bruno, Karim, Julien, Delphine, Sophie, Laurence, Jérémie, Georges, Majdi, Julia, ... ; mes collègues : Thierry, Bernard, Daniel, René, Peter, François, François, Damien, Sophie, Marie-Claire, Jean, Olivier, Anne-Désirée ainsi que Philippe, véritable ami qui se reconnaîtra...

Un coup de chapeau à tout mon entourage, amis et membres de la famille, qui a su m'encourager sans toujours comprendre ce que je réalisais, avec une mention toute particulière à Madeleine qui a enduré des humeurs changeantes et bon nombre de loisirs sacrifiés...

Table des matières

LISTE DES FIGURES	9
LISTE DES TABLEAUX	16
1 INTRODUCTION	19
2 LE TRANSFERT SEDIMENTAIRE : PRINCIPE ET CONTRAINTE	
TEMPORELLE	25
2.1. La dynamique des reliefs	26
2.2. Approches géomorphologique et géochimique	29
2.2.1. Apport de la géomorphologie	29
2.2.2. Apport de la géochimie	31
3 LES DESEOUILIBRES ²³⁸ U- ²³⁴ U- ²³⁰ Th- ²²⁶ Ra : PRINCIPE ET APPLICATION	Α
L'ETUDE DES PROCESSUS D'EROSION ET D'ALTERATION	35
3.1. Les chaînes de décroissance radioactive	36
3.1.1. Equilibre séculaire	36
3.1.2. Déséquilibres radioactifs	36
3.1.3. Retour à l'équilibre	36
3.1.3.1. Cas d'un système clos	38
3.1.3.2. Cas d'un système ouvert	38
3.2. Origine des fractionnements ²³⁸ U- ²³⁴ U- ²³⁰ Th- ²²⁶ Ra	39
3.2.1. Effet de recul	39
3.2.2. Fractionnement chimique	40
3.2.2.1. Thermodynamique des nucléides des séries de l'uranium	40
3.2.2.2. Interactions avec les phases minérales	44
3.2.2.3. Rôle de la matière organique, des micro-organismes et des colloïdes	46
3.3. Contrainte sur les processus d'érosion physique et d'altération chimique	par les
séries de l'uranium	49
3.3.1. Les sols	49

3.3.2.	Les	rivières

4 LES METHODES ANALYTIQUES

4.1. Spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS)	54
4.1.1. Principe de la thermo-ionisation	54
4.1.2. Appareillage	54
4.1.2.1. La source	54
4.1.2.2. Le système analyseur	56
4.1.2.3. Le détecteur	56
4.2. Prélèvement et stockage des échantillons	58
4.3. Mesure des concentrations en U, Th et Ra	58
4.3.1. Dilution isotopique	58
4.3.2. Dissolution des échantillons	60
4.3.3. Séparation de U, Th et Ra	61
4.3.4. Analyse par spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS)	62
4.4. Mesure des compositions isotopiques	63
4.4.1. Préparation des échantillons	63
4.4.2. Séparation de U et Th	64
4.4.3. Séparation du Sr et du Nd	66
4.4.4. Analyse par spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS)	66
4.5. Blancs de procédure et réactifs	68
4.6. Analyse des éléments majeurs et traces	69
5 LE SITE ETUDIE : LES RIVIERES HIMALAYENNES	73
5.1. Genèse de l'Himalaya	74
5.2. La chaîne himalayenne	78
5.3. Les bassins du Gange et du Brahmapoutre	81
5.3.1. Le bassin du Gange	81
5.3.2. Le bassin du Brahmapoutre	82
6 RESULTATS	87

6.1. Time-scales of sedimentary transfer and weathering processes from U	J-series
nuclides: Clues from the Himalayan rivers	89
1. Introduction	94
2. Geological and sedimentological context	95
3. Sampling location and analytical procedures	97
4. Results	100
4.1. Water samples	100
4.2. Sediment samples	101
5. Discussion	104
5.1. Origin and time implications of U-series disequilibria in river sediments	104
a. The case of the Ghaghara and Gandak rivers	104
b. The case of the Kali Gandaki river	107
5.2. Signification of the time-scales of weathering and transfer	109
5.3. Origin of the dissolved U in the Himalayan rivers	112
6. Conclusion	115

6.2. Residence times of river bank sediments in the Ganges and Brahr	naputra
basins inferred from U-series disequilibria	145
1. Introduction	149
2. The Ganges and Brahmaputra basins	150
3. Analytical methods	152
4. Results	154
5. Time-scales of erosion and of weathering	156
5.1. Himalayan tributaries of the Brahmaputra	156
5.1.1. Origin of the U-Th fractionation	156
5.1.2. Interpretation of the chemical variations in terms of time	157
5.2. Brahmaputra main channel	158
5.2.1. Origin of the U-Th fractionation	158
5.2.2. Interpretation of the chemical variations in terms of time	161
5.3. Ganges main channel	162
5.3.1. Origin of the U-Th fractionation	162
5.3.2. Interpretation of the chemical variations in terms of time	163
5.4. Signification of the time-scales	164
6. Conclusions	167

6.3. Déséquilibres ²³⁸ U- ²³⁴ U- ²³⁰ Th- ²²⁶ Ra dans les matières en suspensio	on du basin
du Gange	189
1. Introduction	191
2. Site étudié et échantillonnage	193
3. Procédures analytiques	196
4. Résultats	198
4.1. Eléments majeurs	198
4.2. Concentrations et dédéquilibres ²³⁸ U- ²³⁴ U- ²³⁰ Th- ²²⁶ Ra	200
4.2.1. Variations dans les profils de matières en suspension en	fonction de la
profondeur	202
4.2.2. Variations géographiques	206
a. Cas de la Narayani-Gandak	206
b. Cas du Gange	206
c. Cas de la Kosi et de la Ghaghara	207
5. Discussion	210
5.1. Apport des éléments majeurs	210
5.2. Déséquilibres ²³⁸ U- ²³⁴ U- ²³⁰ Th	212
5.2.1. Cas de la Narayani-Gandak	213
5.2.2. Cas du Gange	219
5.2.3. Le cas particulier de la Ghaghara	223
5.3. Origine des matières fines des différents pôles et temps de transfert	des MES 225
5.4. Implications sur les bilans de masse	230
6. Conclusion	233
7 CONCLUSION GENERALE	239
8 BIBLIOGRAPHIE	243
9 ANNEXE	261
²³⁸ U- ²³⁴ U- ²³⁰ Th disequilibria and timescale of sedimentary transfer	s in rivers:
Clues from the Gangetic plain rivers	262
1. Introduction	262
2. Sample locations and analytical techniques	262
3. Results and Interpretations	263

Liste des figures

Figure 1.1 : Le Brahmapoutre illustre l'influence de la tectonique sur le trajet suivi par les rivières. Il effectue une boucle de plus de 1000 km vers l'Est, en suivant la zone de suture du Tsangpo, et replonge vers l'Ouest et le Golfe du Bengale.

Figure 1.2 : Schéma idéal d'un système sédimentaire montagne-rivière-delta montrant les trois sous-systèmesélémentaires : érosion, transfert et sédimentation (Castelltort and Van Den Driessche, 2003).21

Figure 1.3 : Variation d'un facteur externe, ici la tectonique, et réponse du système en termes de flux sédimentaire (Beaumont et al., 2000). t_t est la périodicité du forçage, et τ est le temps d'équilibre du système. (a) le système est en équilibre avec le signal tectonique (b) la réponse est retardée et atténuée (c) le système est dominé par une approche vers des conditions moyennes et les variations rapides sont lissées (d) le flux sédimentaire augmente brusquement puis décroît exponentiellement avec un temps caractéristique τ . 21

Figure 2.1 : Kali Gandaki, rivière de la chaîne himalayenne, au niveau du Main Central Thrust.27Figure 2.2 : Kali Gandaki en amont du Main Central Thrust.28

Figure 3.1 : Schémas des chaînes de décroissance radioactives naturelles. Les désintégrations s'accompagnent de l'émission de particules α (flèches verticales) et β^- (flèches diagonales). Les périodes des radionucléides sont également mentionnées. 37

Figure 3.2 : Evolution en système clos de couples de nucléides de périodes différentes, à partir d'un rapportinitial (t=0) fixé arbitrairement (modifié d'après Chabaux, 1993).38

Figure 3.3 : Déséquilibres (²³⁴U/²³⁸U) des phases dissoutes et résiduelles (matières en suspension) du bassin de la Mackenzie (Vigier et al., 2001). 39

Figure 3.4 : Distribution des complexes du thorium en fonction du pH, à 25°C, en présence de ligands inorganiques classiques des eaux de surface et profondes (Th = 0.01 µg/L, $\Sigma F = 0.3$ ppm, $\Sigma Cl = 10$ ppm, $\Sigma PO_4 = 0.1$ ppm, $\Sigma SO_4 = 100$ ppm). Les espèces dominantes sont Th(SO₄)₂⁰, ThF₂²⁺, et Th (HPO₄)₂⁰ à pH < 4-5; Th(HPO₄)₃²⁻ à pH compris entre 4.5 et 7.5, et Th(OH)₄⁰ à pH > 7.5 (Langmuir et Herman, 1980). 41

Figure 3.5 : Solubilité de la thorianite en fonction du pH, à 25°C, et en présence de ligands organiques et inorganiques ($\Sigma F = 0.3 \text{ ppm}$, $\Sigma Cl = 10 \text{ ppm}$, $\Sigma PO_4 = 0.1 \text{ ppm}$, $\Sigma SO_4 = 100 \text{ ppm}$, $\Sigma NO_3 = 2.5 \text{ ppm}$, $\Sigma oxalate = 1 \text{ ppm}$, $\Sigma citrate = 0.1 \text{ ppm}$, $\Sigma EDTA = 0.1 \text{ ppm}$). La thorianite est relativement insoluble dans l'eau pure, sauf à bas pH. Sa solubilité est affectée par les ligands inorganiques à pH < 6, et organiques à pH < 8 (Langmuir et Herman, 1980).

Figure 3.6 : Diagramme Eh – pH du système U-C-H-O, à 25°C et 1 atm, où $\Sigma U = 1 \mu \text{mol/L}$ et PCO₂ = 10⁻² atm (Langmuir, 1978).

Figure 3.7 : Solubilité de l'uraninite en fonction du pH, à 25°C, pour différentes concentrations de fluorures.La solubilité de l'U est améliorée à pH < 3-4 par la formation de complexes avec les fluorures, et à pH élevés par</td>la formation de complexes avec les ions hydroxyles (Langmuir, 1978).43

Figure 3.8 : Distribution des complexes uranyl en fonction du pH, à 25°C, et en présence de ligands classiques des eaux de surface et profondes (PCO₂ = $10^{-2.5}$ atm, $\Sigma F = 0.3$ ppm, $\Sigma Cl = 10$ ppm, $\Sigma SO_4 = 100$ ppm, $\Sigma PO_4 = 0.1$ ppm, $\Sigma SiO_2 = 30$ ppm). Les espèces dominantes sont UO₂²⁺ et les complexes avec les fluorures à pH < 4-5 ; UO₂(HPO₄)₂²⁻ à pH compris entre 4.5 et 7.5, et les complexes avec les carbonates à pH > 7.5 (Langmuir, 1978).

Figure 3.9 : Adsorption de U(VI) sur la muscovite (a, Schmeide et al., 2000) et l'hématite (b, Lenhart et Honeyman, 1999) en l'absence (U) et en présence d'acide humique (U+HA). a : $[UO_2^+] = 1 \mu mol/L$, [HA] = 5 mg/L, 1.2 g/L de muscovite. L'adsorption d'uranium est facilitée en présence d'acide humique à bas pH. b : $[U] = 1 \mu mol/L$, [HA] = 10 mg/L, 0.9-9 g/L d'hématite. L'adsorption d'uranium est facilitée en présence d'hématite à bas pH. 45

Figure 3.10 : Taille et nature des colloïdes et particules dans les systèmes aqueux (Buffle et Van Leewen, 1992).

Figure 3.11 : Variations des teneurs en U et Th dans les filtrats de différents échantillons, en fonction de la taille de filtration et des teneurs en COD (Viers et al., 1997⁽¹⁾; Dupré et al., 1999⁽²⁾; Porcelli et al., 1997, 2001⁽³⁾; Riotte et al., 2003⁽⁴⁾). Les résultats suggèrent le rôle des réactions de complexation et/ou des colloïdes, organiques et/ou inorganiques, sur le transport de l'uranium et du thorium. 48

Figure 4.1 : Schémas simplifiés des spectromètres VG Sector (1) et Finnigan Triton (2).	55
Figure 4.2 : Schéma simplifié du Daly, convertissant le faisceau d'ions en électrons puis en photo	ons et
permettant le positionnement du détecteur final à pression atmosphérique, et non plus sous vide.	57
Figure 4.3 : Courbe d'amplification d'erreur sur la mesure d'une concentration.	59
Figure 4.4 : Procédure de séparation de l'uranium et du thorium en vue de l'analyse des concentration	ns pai
dilution isotopique.	61
Figure 4.5 : Procédure de séparation du radium en vue de l'analyse de la concentration en ²²⁶ Ra par di	lution
isotopique.	62
Figure 4.6 : Concentrations en U et Th de la roche AthO déterminées au cours de l'étude.	62
Figure 4.7 : Procédure de séparation de l'U des eaux en vue de l'analyse des compositions isotopiques.	64
Figure 4.8 : Procédure de séparation de l'uranium et du thorium des échantillons solides en vue de l'ar	nalyse
des compositions isotopiques.	65
Figure 4.9 : Rapports ²³⁴ U/ ²³⁵ U mesurés dans le standard HU1 au cours de l'étude. La valeur moyenne	est de
$0.007568 \pm 0.000016 \text{ (n} = 61, 2\sigma).$	66
Figure 4.10 : Rapports ²³² Th/ ²³⁰ Th mesurés dans le standard Th105 au cours de l'étude. La valeur moy	yenne
est de 217279 ± 411 (n = 31, 2 σ).	67
Figure 4.11 : Rapports ⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr mesurées dans le standard SRM 987 au cours de l'étude. La valeur moy	yenne
est de 0.710266 ± 0.000005 (n = 50, 2 σ).	67
Figure 4.12 : Rapports ¹⁴³ Nd/ ¹⁴⁴ Nd mesurés dans le standard AMES au cours de l'étude. La valeur mo	yenne
est de 0.511963 ± 0.000005 (n = 14, 2 σ).	68

Figure 5.1 : La Terre au Permien Inférieur (290 Ma). L'Inde fait partie du Gondwana et est bordée au Nordpar les terrains du Cimmérien. La reconstruction paléo-géographique provient de Dèzes (1999), d'après Stampfliet Borel (2002), et Patriat et Achache (1984).74

70

86

Figure 5.2 : La Terre à la limite Permien – Trias (249 Ma). L'ouverture de la Neo-Tethys sépare les terrains Cimmérien du Gondwana. La reconstruction paléo-géographique provient de Dèzes (1999), d'après Stampfli et Borel (2002), et Patriat et Achache (1984). 75

Figure 5.3 : La Terre au Crétacé (100 Ma). L'accrétion des terrains du Cimmérien vers la Laurasie est effective. La croûte océanique de la Neo-Tethys est subductée vers le nord le long de l'arc volcanique du Dras, tandis que l'océan Shigatze s'ouvre. L'Inde est séparée de l'Afrique et du Gondwana Est, tandis que l'océan Indien s'ouvre. La reconstruction paléo-géographique provient de Dèzes (1999), d'après Stampfli et Borel (2002), et Patriat et Achache (1984).

Figure 5.4 : Migration de l'Inde (71 Ma – actuel) associée à une rotation anti-horaire. La collision du continent Indien avec l'Eurasie est effective à 55 Ma. La reconstruction paléo-géographique provient de Dèzes (1999), d'après Stampfli et Mosar (1998), et Patriat et Achache (1984). 77

Figure 5.5 : Coupe synthétique de la chaîne himalayenne, d'après la cartographie (France-Lanord et Le Fort, 1988) et les profils sismiques (Nelson et al., 1996). THB : batholite du Trans-Himalaya ; ITS : Ophiolite de la zone Indus-Tsangpo ; TSS : Séries Sédimentaires Téthysiennes ; HHC : formations du Haut Himalaya Cristallin ; LH : formations du Moyen Pays ; Siwaliks : sédiments Néogène du bassin d'avant chaîne. STDZ : détachement sud tibétain ; MHT : chevauchement principal himalayen ; MCT : chevauchement central himalayen ; MBT : chevauchement basal himalayen et MFT : chevauchement frontal himalayen. (1) : sédiments Holocène de la plaine du Gange. (2) : Siwaliks. (3) : croûte indienne. (4) : croûte inférieure litée. (5) : LH. (6) : HHC. (7) : Leucogranite himalayen. (8) : TSS. (9) : zone de la croûte partiellement fondue. (10) THB+ITS. (11) : croûte du bloc de Lhassa.

Figure 5.6: (a) Carte de la chaîne Himalayenne, qui s'étend du 72°E au 96°E parallèle, et formant deux arcs, l'un étant orienté nord ouest - sud est à l'ouest, et l'autre ouest sud ouest - est nord est à l'est (d'après Galy, 1999). (b) Carte du bassin du Gange. (c) Carte du bassin du Brahmapoutre. (d) Carte du bassin de l'Indus. Les abréviations correspondent à : Batholithe du Trans-Himalaya (THB), Séries Sédimentaires Téthysiennes (TSS), Haut Himalaya Cristallin (HHC), Moyen Pays (LH), Faisceau de plis du Pakistan Ouest (WPFB). 81

Figure 5.7 : Carte représentative du bassin du Gange. Les abréviations correspondent à : Main Central Thrust(MCT), Main Frontal Thrust (MFT).85

Figure 5.8 : Carte représentative du bassin du Brahmapoutre.

Figure 6.1.1. a. Map of the Ganges basin and location of river samples. Rectangle indicates map area of the Narayani watershed (1b), modified from Riotte (2001), and Galy et al. (1999a). MCT = Main Central Thrust. MFT = Main Frontal Thrust. b. Geological map and location of river samples of Narayani watershed, modified from Riotte (2001), and Galy et al. (1999a). TSS = Tethian Sedimentary Series. HHC = High Himalaya

Crystalline. LH = Lesser Himalaya. HHL = High Himalaya Leucogranite. LHN = Lesser Himalaya Nappe. Location numbers are those given in the table of results (position on the map).

Figure 6.1.2. Plot of the sediment data points in (²³⁰Th/²³²Th) versus (²³⁸U/²³²Th) diagram for the sediments of the Kali Gandaki in the LH-HHC (black squares), Narayani (grey square), Gandak (white squares), Ghaghara (white circles), and Gomti (grey triangles) rivers. 136

Figure 6.1.3. Downstream evolution of the U/Th (squares for the Gandak and circles for the Ghaghara rivers) and Na/Al (triangles) ratios for the sediments of the Ghaghara (a) and Gandak (b) rivers. Numbers below the data points are the position number given in Table 2.

Figure 6.1.4. Time interpretation for the variations of Gandak (a) and Ghaghara (b) river sediments in the $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$ versus $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$ diagram. Horizontal dashed lines and vertical arrows correspond to a closed-system evolution with an instantaneous U-Th weathering fractionation followed by ^{230}Th radioactive decay. The grey curve corresponds to a model of gain and loss of uranium, (see text for explanation). The values are given in ky.

Figure 6.1.5. ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr versus Ba/Sr for both the dissolved (grey diamonds) and solid phases (black squares) of the Kali Gandaki river samples in the LH-HHC. The trends observed for the dissolved and particular phases emphasize the mixing between two different sources which have suffered different degrees of weathering (details on the chemical characteristics of the end-members are given in Galy, 1999). On the figure, both end-members obtained by intense weathering of LH-HHC are considered to have constant ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr that would be likely not the case if weathering were incongruent.

Figure 6.1.6. Time interpretation for the U-Th variations of the Kali Gandaki river sediments in the LH-HHC from an integrative model where each sample is considered independently from the others and represents the average of all weathering products originated from the drained watershed. Figure 6a illustrates the closed-system evolution. Such a scenario would imply that the weathering age of the bedrocks at the outlet of the Kali Gandaki watershed would be about 180 ky old. Figure 6b corresponds to an uranium gain and loss model. Time-scales of weathering range between about 30 ky and 350 ky (refer to the text for details).

Figure 6.1.7. (²³⁴U/²³⁸U) versus ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr of dissolved phases (grey triangles), sediments (black squares) and monsoon waters (white circles) of the Kali Gandaki in the LH-HHC. The superimposed trends of monsoon waters and associated sediments suggest that uranium of the dissolved phase could have a colloidal nature of sedimentary origin.

Figure 6.2.1. (a) Map of the Himalayan chain, which extends between the 72°E and 96°E parallel, forming two arcs, one oriented north west - sud east in the west, and another oriented west sud west - east north east in the east, after Galy (1999c). (b) Map of the Brahmaputra watershed (see also Fig. 2). (c) Map of the Ganges watershed (see also Fig. 3). (d) Map of the Indus watershed. The abbreviations in the caption correspond to: Trans Himalayan Batholith (THB), Tethyan Sedimentary Series (TSS), High Himalaya Cristalline (HHC), Lesser Himalaya (LH), West Pakistan Fold Belt (WPFB).

Figure 6.2.2. Map of the Brahmaputra basin and location of river samples, modified from Singh and France-Lanord (2002).

Figure 6.2.3. Map of the Ganges basin and location of river samples, modified from Chabaux et al. (2001), Riotte (2001), and Galy et al. (1999a,b). MCT = Main Central Thrust. MFT = Main Frontal Thrust. 184

Figure 6.2.4. Plot of the sediment data points from the Himalayan tributaries of the Brahmaputra in Nd/Na (a), Sm/Na (b) and Ti/Na (c) versus (²³⁰Th/²³⁸U) diagrams. The positive correlation exhibited in the diagrams would suggest that weathering process is responsible for the U-Th fractionation, inducing preferential remobilization of U and Na relatively to immobile elements like Nd, Sm and Ti. 185

Figure 6.2.5. Plot of the sediment data points from the Himalayan tributaries of the Brahmaputra in Al/Na versus (²³⁰Th/²³⁸U) diagram. Composition of the HHC is also plotted for reference (black square). Data confirm the role of weathering processes in controlling the U-Th fractionation of the sediments since beginning of alteration.

Figure 6.2.6. Calculation of chemical and activity ratios of the Brahmaputra sediments by applying correction of mixing processes from the tributaries : example of the upper part of the Brahmaputra, considering that sediments from the Brahmaputra at Dibrugarh (black squares) are consistent with a mixing between sediments from the eastern tributaries (star symbol) which are added to the sedimentary input from the Siang (grey square). Evolution of the U-Th systematics highlights in this case a decrease of Na/Th ratio (b), and of (238 U/ 232 Th) and (230 Th/ 232 Th) activity ratios (a), attributed to the occurrence of weathering process. 187

Figure 6.2.7. Calculation of chemical and activity ratios of the Ganges sediments by applying correction of mixing processes from the tributaries : example of the upper part of the Ganges, considering that sediments from the Ganges at Patna (black squares) are consistent with a mixing between sediments from the Ghaghara (star symbol) which are added to the sedimentary input from the Ganges at Benares (grey square). As for the Brahmaputra, evolution of the U-Th systematics highlights a decrease of Na/Th ratio (b), and of $(^{238}U/^{232}Th)$ and $(^{230}Th/^{232}Th)$ activity ratios (a), which is explained by the role of weathering during the transfer of sediments.188

Figure 6.3.1 : Carte du bassin du Gange et des lieux de prélèvement des matières en suspension et des sédiments argileux. Pour les matières en suspension, les carrés gris correspondent à des échantillonnages de type transects, à savoir sur l'ensemble de la colonne d'eau, tandis que les carrés bruns correspondent à une seule profondeur d'échantillonnage plus ou moins profonde.

Figure 6.3.2 : Variation de la teneur en SiO₂, exprimée en poids d'oxyde, analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari.

Figure 6.3.3 : Variation de la teneur en Al₂O₃, exprimée en poids d'oxyde, analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari.

Figure 6.3.4 : Comparaison de la minéralogie et du degré d'altération de l'ensemble des sédiments desrivières du bassin du Gange. Les données des sédiments de la Gomti sont d'après Singh et al. (2005).200Figure 6.3.5 : Variation de la teneur en U analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes

profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari. 202

Figure 6.3.6 : Variation de la teneur en Th analysée dans les matières en suspension prélevées à différentesprofondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari.203

Figure 6.3.7 : Variation de la teneur en ²²⁶Ra analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari. 203

Figure 6.3.8 : Variation des déséquilibres (230 Th/ 238 U), (234 U/ 238 U) et (226 Ra/ 230 Th) des matières en suspensionprélevées en sortie de chaîne, à différentes profondeurs, au niveau de la Narayani.204

Figure 6.3.9 : Variation du rapport (²³⁰Th/²³²Th) des matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau du Gange à Benares, Patna et Manihari. 204

Figure 6.3.10 : Variation du rapport (230 Th/238 U) des matières en suspension prélevées à différentesprofondeurs au niveau du Gange à Benares, Patna et Manihari.205

Figure 6.3.11 : Variation du rapport (226 Ra/230 Th) des matières en suspension prélevées à différentesprofondeurs au niveau du Gange à Benares, Patna et Manihari.205

Figure 6.3.12 : Variation du rapport (230 Th/ 232 Th) avec le rapport Al₂O₃/SiO₂ dans le cas des sédiments etmatières en suspension de la Narayani-Gandak.208

Figure 6.3.13 : Variation du rapport (230 Th/ 232 Th) avec le rapport Al₂O₃/SiO₂ dans le cas des sédiments du Gange. 208

Figure 6.3.14 : Représentation des données U-Th-Ra des matières en suspension du Gange dans lediagramme (226 Ra/ 230 Th) vs (238 U/ 230 Th). Le domaine théorique des sédiments grossiers du Gange est égalementreprésenté sur la base des données connues et discutées par ailleurs (Chapitre 6).209

Figure 6.3.15 : Relation entre le rapport Al_2O_3/SiO_2 et la taille des particules (µm) pour les sédiments des rivières du bassin du Gange. 210

Figure 6.3.16 : Comparaison de la minéralogie et du degré d'altération de l'ensemble des sédiments desrivières du bassin du Gange. Les données des sédiments de la Gomti sont d'après Singh et al. (2005).211

 Figure 6.3.17 : Comparaison des données U-Th des différents types de sédiments transportés par la

 Narayani-Gandak dans le diagramme isochrone.
 214

Figure 6.3.18 : Comparaison des données U-Th des différents types de sédiments transportés par laNarayani-Gandak dans le diagramme Concordia.215

Figure 6.3.19 : Détermination du rapport ($^{238}U/^{232}Th$) du pôle amont et du pôle aval, basée sur l'hypothèse que les tendances sont des droites de mélange et que le rapport Al₂O₃/SiO₂ de ce pôle est la valeur moyenne des matières en suspension de la Gomti : 0.293. 216

Figure 6.3.20 : Détermination du rapport (230 Th/ 232 Th) du pôle amont et du pôle aval, basée sur l'hypothèse que les tendances sont des droites de mélange et que le rapport Al₂O₃/SiO₂ de ce pôle est la valeur moyenne des matières en suspension de la Gomti : 0.293. 217

Figure 6.3.21 : Représentation des pôles de mélange dans le diagramme Concordia. 218

Figure 6.3.22 : Représentation des données U-Th des matières en suspension du Gange dans le cadre d'unscénario de mélange local entre le sédiment grossier et les matières en suspension associées.220

Figure 6.3.23 : Représentation des données U-Th des matières en suspension du Gange dans le cadre d'unscénario de mélange local entre le sédiment grossier et les matières en suspension associées.221

Figure 6.3.24 : Détermination du rapport ($^{238}U/^{232}Th$) du pôle spécifique des matières en suspension de surface du Gange, basée sur l'hypothèse que les tendances sont des droites de mélange et que le rapport Al₂O₃/SiO₂ de ce pôle est la valeur moyenne des matières en suspension de la Gomti : 0.293. 222

Figure 6.3.25 : Détermination du rapport (230 Th/ 232 Th) du pôle spécifique des matières en suspension de surface du Gange, basée sur l'hypothèse que les tendances sont des droites de mélange et que le rapport Al₂O₃/SiO₂ de ce pôle est la valeur moyenne des matières en suspension de la Gomti : 0.293. 222

 Figure 6.3.26 : Représentation des données U-Th dans le diagramme isochrone pour l'ensemble des phases

 solides transportées par la Ghaghara.
 224

Figure 6.3.27 : Scénario de maturation croissante des phases fines constituant les différents pôles.226

227

Figure 6.3.28 : Schéma d'enrichissement ancien en U.

Figure 6.3.29 : Relation entre l'augmentation du (²³⁰Th/²³²Th) et de la teneur en éléments biogènes. Cas du K. 229

Figure 6.3.30 : Relation entre l'augmentation du (²³⁰Th/²³²Th) et de la teneur en éléments biogènes. Cas du Rb. 229

Figure 6.3.31 : Relation entre l'augmentation du (²³⁰Th/²³²Th) et de la teneur en éléments biogènes. Cas du Ba. 230

Figure 6.3.32 : Comparaison entre les quantités de matières en suspension observées et calculées à l'aided'un modèle d'état stationnaire pour les rivières des Andes. Modifiée d'après Dosseto et al. (2006a).231

 Figure 6.3.33 : Comparaison entre les quantités de matières en suspension observées et calculées à l'aide

 d'un modèle d'état stationnaire pour les rivières des Andes. Les pourcentages indiquent la correction apportée

 sur le déséquilibre (²³⁰Th/²³⁸U) pour être à l'état stationnaire (carrés gris).

 232

Fig. 9.1. Map of the Ganges and the Brahmaputra basins and location of the sediment samples studied in this work (MCT = Main Central Thrust and MFT = Main Frontal Thrust). 263

Fig. 9.2. Variation of $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$ activity ratios against $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$ activity ratios in the bank river sediments of three plain rivers. The data interpretation using the common uranium leaching model proposed by Vigier et al. (2001) allows us to estimate transfer times of the sediments (given in ka) for each river. 263

Liste des tableaux

Tableau 4.1 : Caractéristiques U, Th et Ra de la roche AthO (Peate et al., 2001 ; Rubin et al., 2001).60Tableau 4.2 : Blancs de procédure des différents types de phases solides étudiées.68Tableau 4.3 : Blancs de réactifs.68

Table 6.1.1. U-Sr concentrations and isotopic compositions in the dissolved load. $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ activity ratios are calculated from measured $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ ratios assuming that $^{238}\text{U}/^{235}\text{U} = 137.88$ and using the following decay constants: $\lambda_{238} = 1.551.10^{-10} \text{ y}^{-1}$ and $\lambda_{234} = 2.823.10^{-6} \text{ y}^{-1}$ (Akovali, 1994; Cheng et al., 2000). Analytical uncertainties are 0.005 and always lower than 15.10^{-6} for $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ activity ratio and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ respectively (2σ error). (1) Sr isotopic composition from Galy et al. (1999b). (2) Sr isotopic composition from Chabaux et al. (2001). (3) U activity ratios from Chabaux et al. (2001). (4) U-Sr concentrations from Chabaux et al. (2001). 129 **Table 6.1.2.** Sr-Nd isotopic compositions and U-series data for the sediments of Himalayan rivers. The ε_{Nd} CHUR values are chondrite normalized $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ ratios and calculated using : $\varepsilon_{Nd} = 10000 * ((^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd} - 0.512638)/0.512638)$. ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) activity ratios are determined from $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ ratios (see Tab. 1 for details). ($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$) activity ratios are calculated from measured $^{232}\text{Th}/^{230}\text{Th}$ ratios using $\lambda_{232} = 4.948.10^{-11} \text{ y}^{-1}$ and $\lambda_{230} = 9.158.10^{-6} \text{ y}^{-1}$ (Cheng et al., 2000). Analytical uncertainties on the ε_{Nd} , $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) and ($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$) activity ratios respectively (2σ error), and yield 1% and 2 % for the calculated ($^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$) and ($^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$) activity ratios respectively. Na/AI ratios are also given. (1) Sr isotopic composition from Galy (1999). (2) Nd isotopic composition from Galy (1999).

Table 6.2.1. U-series data for the sediments of the Ganges and Brahmaputra basins. $({}^{234}U/{}^{238}U)$ activity ratios are calculated from measured ${}^{234}U/{}^{235}U$ ratios assuming that ${}^{238}U/{}^{235}U = 137.88$ and using the following decay constants: $\lambda_{238} = 1.551.10^{-10} \text{ y}^{-1}$ and $\lambda_{234} = 2.823.10^{-6} \text{ y}^{-1}$ (Akovali, 1994; Cheng et al., 2000). $({}^{230}\text{Th}/{}^{232}\text{Th})$ activity ratios are calculated from measured ${}^{232}\text{Th}/{}^{230}\text{Th}$ ratios using $\lambda_{232} = 4.948.10^{-11} \text{ y}^{-1}$ and $\lambda_{230} = 9.158.10^{-6} \text{ y}^{-1}$ (Cheng et al., 2000). Analytical uncertainties on the $({}^{234}U/{}^{238}U)$ and $({}^{230}\text{Th}/{}^{232}\text{Th})$ ratios are 0.005 and 1% respectively (2σ error), and yield 1% and 2 % for the calculated (${}^{238}U/{}^{232}\text{Th}$) and $({}^{230}\text{Th}/{}^{238}\text{U})$ activity ratios respectively.

Table 6.2.2. Results of the model for the Himalayan tributaries of the Brahmaputra. Ages are given from amodel of both gain and loss of uranium, and expressed in ky. Only uranium leaching coefficients are given: k_8 for 238 U, and k_4 for 234 U. They are expressed in y⁻¹.178

Tableau 6.3.1. : Valeurs des concentrations en U-Th-Ra des matières en suspension et des sédimentsargileux. Pour le système Narayani-Gandak, les échantillons 1 à 3 représentent la Narayani, les autres (4 et 5) laGandak.201

Tableau 6.3.2. : Valeurs des rapports d'activités de la systématique U-Th-Ra des matières en suspension etdes sédiments argileux. Pour le système Narayani-Gandak, les échantillons 1 à 3 représentent la Narayani, lesautres (4 et 5) la Gandak.201

1 Introduction

La genèse des reliefs dépend des interactions entre les processus d'érosion, la tectonique et le climat.

La tectonique influence l'érosion par le contrôle qu'elle exerce sur la localisation des rivières et des chemins de transfert de sédiments (Figure 1), tandis que l'érosion limite l'extension latérale et verticale de la zone orogénique et, couplée à la sédimentation, induit une réponse isostatique de la lithosphère comme une conséquence de l'ajout ou du retrait de matières en surface.







Le climat influence l'altération chimique des roches, leur érosion physique et le transport de sédiments associé par le biais des précipitations, de la température, du vent, de la végétation, et des variations à long terme du niveau marin.

En ce qui concerne la tectonique et climat, le couplage est indirect car leur interaction ne résulte que de leurs couplages avec l'érosion. Une des questions débattues actuellement est de comprendre le rôle de l'un sur l'autre, débat qui est basé sur les événements de la fin du Cénozoïque dont il est généralement admis qu'ils sont caractérisés par un refroidissement global du climat, une augmentation des flux sédimentaires et par conséquent de l'érosion, et une surrection accélérée des domaines orogéniques. Deux explications ont été avancées : soit l'augmentation de l'activité tectonique induit une augmentation de l'altération chimique et une consommation accrue de CO₂ atmosphérique ayant pour conséquence un refroidissement global du climat (Raymo and Ruddiman, 1992 ; Raymo et al., 1988), soit l'augmentation de l'érosion engendre une réponse isostatique des reliefs expliquant l'accélération apparente de l'áctivité tectonique (Molnar and England, 1990 ; Montgomery, 1994). La meilleure compréhension du couplage entre tectonique et climat repose sur l'étude des processus d'érosion et de leur réponse aux perturbations tectonique et climatique.

Une des difficultés majeures est de prendre en considération la variabilité temporelle sur laquelle le climat et la tectonique sont actifs (par exemple Wolman and Miller, 1960). Ainsi, le climat s'exprime à l'échelle de la saison, mais également des cycles de glaciation et déglaciation contrôlés par les variations de l'excentricité de l'orbite terrestre, de l'inclinaison de l'axe de rotation de la Terre et de sa précession, et enfin des grandes périodes géologiques. De la même manière, concernant la tectonique, l'échelle de temps s'échelonne de la durée d'un séisme, entraînant la déviation d'un cours d'eau ou des glissements de terrain, à l'échelle de temps de la réponse isostatique ou du fluage de la croûte inférieure changeant la forme des reliefs à grande échelle. La variabilité des échelles temporelles est responsable par conséquent du caractère aléatoire des flux sédimentaires (Benda and Dunne, 1997a, b ; Hovius et al., 2000 ; Tucker and Bras, 2000). Or, l'importance du flux sédimentaire en tant que facteur de contrôle majeur de l'enregistrement stratigraphique a été clairement mise en évidence (par exemple Galloway, 1989 ; Lawrence, 1993 ; Schlager, 1993) mais les échelles de temps sur lesquelles ce flux est variable reste encore mal connue et mal comprise.

Le flux sédimentaire est produit en grande majorité par les versants et dans une moindre mesure par l'incision fluviatile (Hovius, 1998). Il est ensuite transmis par les rivières (zone de transfert) jusqu'aux bassins où il se dépose (Figure 2).



Figure 2 : Schéma idéal d'un système sédimentaire montagne-rivière-delta montrant les trois sous-systèmes élémentaires : érosion, transfert et sédimentation (De : Castelltort and Van Den Driessche, 2003).

Une notion commune à la géomorphologie et à la stratigraphie est la notion d'équilibre. Pourtant, la notion de temps d'équilibre ou de temps de réponse (temps nécessaire au système pour qu'il retrouve l'équilibre après une perturbation, Beaumont et al., 2000 ; étudié par Métivier and Gaudemer, 1999 ; Castelltort and Van Den Driessche, 2003) est généralement négligée par les stratigraphes. Or, dans la perspective du système sédimentaire, il apparaît que le temps d'équilibre est un paramètre crucial des différentes entités qui produisent et transportent le flux sédimentaire. En effet, selon la valeur du temps d'équilibre de ces différentes entités, des changements des facteurs externes avec une périodicité donnée vont donner lieu, ou non, à une réponse en termes de flux sédimentaire (Figure 3).



Figure 3 : Variation d'un facteur externe, ici la tectonique, et réponse d'un système donné en termes de flux sédimentaire (Beaumont et al., 2000). t_t est la périodicité du forçage et τ est le temps d'équilibre du système. (a) le système est en équilibre avec le signal tectonique (b) la réponse est retardée et atténuée (c) le système est dominé par une approche vers des conditions moyennes et les variations rapides sont lissées (d) le flux sédimentaire augmente brusquement puis décroît exponentiellement avec un temps caractéristique τ.

Si les temps d'équilibre peuvent être bien contraints pour une zone en érosion à partir des récents développements en géomorphologie (par exemple Burns et al., 1997 ; Lopez-Blanco et al., 2000 ; Marzo and Steel, 2000 ; Perlmutter and Matthews, 1989 ; Perlmutter et al., 1998 ; Van der Zwan, 2002 ; Weltje and DeBoer, 1993 ; Weltje et al., 1996), beaucoup moins d'études sont concentrées sur la zone en transfert. Pourtant, il est crucial de se focaliser sur le comportement de cette zone pour comprendre les variations du flux sédimentaire et la signification de l'enregistrement stratigraphique.

Par ailleurs, l'importance de déterminer les constantes de temps sur lesquelles les processus d'érosion et d'altération agissent repose sur le contrôle que ces processus exercent sur les grands réservoirs de la surface : l'hydrosphère, l'atmosphère et la biosphère. En outre, au niveau continental, l'érosion continentale est un des principaux processus régulant la teneur en CO₂ atmosphérique et, par conséquent, la température à la surface de la Terre (Berner et al., 1983 ; Gaillardet et al., 1999). En effet, le CO₂ atmosphérique dissous dans les eaux constituant une des sources majeures de protons nécessaires à la dissolution de minéraux (en plus de l'oxydation de la matière organique), l'érosion chimique peut réduire à grande échelle la quantité de CO₂ atmosphérique. De manière générale, lorsque les échelles de temps considérées sont supérieures à 100 ka, la dissolution des carbonates est tamponnée par la précipitation de calcite CaCO₃ dans les océans (Berner et al., 1983), et seule l'altération des silicates représente une consommation nette de CO₂. Au niveau océanique, la composition chimique des océans peut être contrôlée par l'apport des produits d'érosion transportés sous forme de charge dissoute, et à terme influencer l'activité biologique et la biodiversité des océans. Du fait des échanges potentiels entre océans et atmosphère, l'érosion participerait ainsi de manière indirecte au contrôle des teneurs en CO2 atmosphérique (Broecker and Peng, 1994).

Les processus influençant l'érosion sont bien connus (Milliman et Syvitsky, 1992) mais leurs échelles de temps mal contraintes. Il est proposé dans ce travail d'approcher le problème pour le cas du système himalayen, l'une des régions les plus érosives au monde, en se focalisant sur l'analyse des rivières qui constituent des objets idéaux compte tenu de leur potentiel érosif important et parce qu'elles transportent les sédiments. Ainsi, la phase dissoute, filtrée à 0.22 ou 0.45 µm, et la phase particulaire, composée de sédiments de berge, de fond et de matières en suspension, ont été étudiées pour les bassins du Gange et du Brahmapoutre.

Ce travail est composé de plusieurs chapitres. Le premier présente les notions fondamentales sur le transfert ainsi que les méthodes actuellement utilisées pour y apporter une contrainte temporelle. Il est suivi d'une partie consacrée aux nucléides des séries de l'uranium et à leur potentiel pour approcher la problématique posée. Les méthodes analytiques employées et le site d'étude seront présentés par la suite. Le dernier chapitre est axé sur la présentation des principaux résultats obtenus par l'étude des sédiments grossiers dans la chaîne himalayenne, l'avant-pays et la plaine proximale de la chaîne d'une part, puis au niveau du Gange et du bassin du Brahmapoutre d'autre part. Enfin, l'étude des matières en suspension fines des rivières du bassin du Gange est présentée et comparée à celle menée sur les phases plus grossières.

2 Le transfert sédimentaire : principe et contrainte temporelle

Ce chapitre présente les notions de transfert de matière ainsi que les différentes équations qui permettent de le décrire. Les méthodes actuellement utilisées pour y apporter une contrainte temporelle seront également présentées selon différentes approches : une approche géomorphologique, couplée selon les cas à de la modélisation, et une approche géochimique.

2.1. La dynamique des reliefs

Les transferts de matière dominés par l'érosion fluviale résultent des processus de versants et de rivières.

Dans le cas d'un système soumis à la surrection tectonique, les rivières incisent le substratum rocheux et transportent le matériel érodé. Le taux d'incision fluviale est défini par une relation de forme générale (Howard, 1994) :

$$I = K.A^m.S^n$$

où I est le taux d'incision, K une constante, A l'aire draînée, S la pente locale, m et n des exposants.

Les sédiments sont transportés suivant deux modes (Yalin, 1980), le transport de fond, par saltation (déplacement par sauts) sur le fond du lit, et le transport en suspension. Le mode de transport dépend des conditions hydrauliques de la rivière (Julien, 1994 ; Yalin, 1980). Lorsque la force de cisaillement à la base de l'écoulement d'eau dépasse le seuil critique de cisaillement τ_c , les particules commencent à se déplacer sur le fond de la rivière par roulement, glissement ou petits bonds. Par contre, lorsque les conditions deviennent turbulentes et que les fluctuations de vitesse verticale sont importantes, les particules peuvent être maintenues en suspension. La capacité de transport se définit suivant la relation (Howard, 1994) :

$$q_{c} = K_{h.}(\tau^{*} - \tau_{c}^{*})^{\varsigma}$$
$$\tau^{*} = \frac{\tau}{(\rho_{s} - \rho).g.D_{g}}$$

où q_c est la capacité de transport, K_h le coefficient de transport, ς un exposant positif, $\tau \approx \rho$.g.h.S est le cisaillement à la base, g l'accélération de la gravité, h la hauteur de l'écoulement, S la pente de l'écoulement, D_g la taille caractéristique des grains, ρ_s la densité des grains, ρ la densité du fluide, et τ_c^* défini suivant la relation :

$$\tau_c^* = \frac{\tau_c}{(\rho_s - \rho) g . D_g}$$

Lorsque la capacité de transport est supérieure à la quantité de matière à transporter, les rivières sont dites à substratum rocheux et l'écoulement est fortement contraint par des murs et un lit difficilement érodable. Dans ce cas, l'épaisseur réduite de sédiments permet au socle d'être directement exposé à l'écoulement (Figure 1) :



Figure 1 : Kali Gandaki, rivière de la chaîne himalayenne, au niveau du Main Central Thrust.

Dans le cas contraire, c'est-à-dire quand la quantité de matière à transporter par la rivière dépasse sa capacité de transport, les rivières sont dites alluviales, le trop plein de sédiments constituant alors la charge de fond qui masque le substratum rocheux. Dans ce cas, le lit mobile est constitué d'une forte épaisseur de sédiments non consolidés (Figure 2) :



Figure 2 : Kali Gandaki en amont du Main Central Thrust.

L'évolution des rivières est décrite par différents modèles. Dans le cas des rivières alluviales, où le flux sédimentaire de la rivière est égal à la capacité de transport, les modèles sont dits limités par le transport (Howard and Kerby, 1983 ; Kirkby, 1971 ; Smith and Bretherton, 1972 ; Willgoose et al., 1991b). Un bilan de masse conduit à la relation :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\nabla . q_c + U$$

où t est le temps, q_c la capacité de transport par unité de largeur de la rivière, U le taux de surrection local, et h la hauteur de la couche limite à l'interface entre sédiments et eau.

Dans le cas des rivières à substratum rocheux, où le taux d'incision local est inférieur à la capacité de transport, les modèles sont dits limités par l'incision ou le détachement (Howard and Kerby, 1983 ; Whipple and Tucker, 1999). Un bilan de masse conduit à la relation :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -I + U$$

où I est le taux d'incision, et h la hauteur de la couche limite à l'interface entre substratum rocheux et eau.

Dans le cas le plus général où aucune relation n'est supposée entre le flux de sédiments transportés et la capacité de transport (Howard, 1994 ; Kooi and Beaumont, 1994 ; Tucker and Slingerland, 1994 ; Crave and Davy, 2001), un bilan de masse conduit à une relation valable quelque soit le type de rivière :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -E + D + U$$

où E est le taux d'érosion du lit de la rivière, D le taux de dépôt de sédiments sur le fond de la rivière, h la hauteur de la couche limite, et U le taux de surrection tectonique.

A l'échelle des temps géologiques, la dynamique des versants est peu étudiée. Leurs formes sont façonnées par les processus gravitaires comme les avalanches et les coulées de débris, et par les processus liés aux écoulements d'eau comme le ruissellement de surface, l'impact des gouttes de pluie ou érosion et transport dans des rigoles. L'évolution des versants est décrite suivant différents modèles. Dans le cas d'un modèle à diffusion linéaire (Culling, 1960 ; Fernandes and Dietrich, 1997), le bilan de masse conduit à la relation :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = K_d \cdot \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + U$$

où K_d est le coefficient de diffusion.

2.2. Approches géomorphologique et géochimique

2.2.1. Apport de la géomorphologie

Les approches initialement proposées pour apporter une information temporelle aux mouvements de masses solides sont essentiellement basées sur des références historiques mais la question du temps de transit au sein même du chenal n'est que rarement le centre des publications. Les exemples ont essentiellement porté sur le petit âge glaciaire, les méthodes utilisées étant axées sur la comparaison de cartes anciennes et de photographies aériennes (Brunsden and Jones, 1976). L'approche fut rapidement limitée par le manque de données historiques et remplacée par des méthodes comme la lichenométrie et la dendrochronologie.

Quelques études ont été axées sur la lichenométrie, méthode qui consiste à déterminer des vitesses à partir de la distance entre deux rochers sur lesquels des mesures sont effectuées et le temps écoulé entre la colonisation par les lichens de ces deux rochers (Porter and Orombelli, 1981 ; Rapp and Nyberg, 1981 ; Innes, 1983 ; Gob et al., 2003). Cette méthode a été appliquée à des mouvements de masse soudains comme les éboulements, les avalanches et les coulées de débris. L'inconvénient majeur est qu'elle ne s'applique qu'à des phénomènes très locaux et pour un certain type de roches, en général siliceuse.

La dendrochronologie a également été utilisée pour déterminer l'année du transfert de masse, en général un glissement de terrain, à partir de l'analyse des cernes de croissance des arbres (Shroder, 1978 ; Osterkamp and Hupp, 1987 ; Braam et al., 1987a,b). Le principe consiste à identifier la réponse des arbres à une perturbation, liée à un glissement de terrain, pouvant provoquer l'inclinaison des tiges et un processus de corrasion qui correspond au façonnage des arbres par les grains transportés (Clague and Souther, 1982). Cependant, une telle méthode impose non seulement d'étudier des arbres parfaitement préservés, mais elle néglige le fait que la taille des cernes résulte également de l'influence de processus plus complexes comme le climat, la compétition entre les arbres, ou encore les catastrophes naturelles.

L'ensemble des investigations scientifiques réalisées en modélisation a largement contribué à caractériser les mécanismes qui contrôlent les processus d'érosion et à proposer des lois qui les décrivent, mais dans une moindre mesure à en définir les constantes de temps. En effet, la dynamique des systèmes fluviatiles présente une grande complexité liée à leur forte sensibilité aux paramètres climatiques et tectoniques, d'une part, et à leur propre dynamique interne, d'autre part. Néanmoins, en simplifiant un système sédimentaire naturel en trois sous-systèmes où dominent respectivement d'amont en aval l'érosion, le transfert et la sédimentation, il a été montré qu'il est possible d'évaluer les temps de réponse des rivières en émettant l'hypothèse que le transfert sédimentaire agit de manière diffusive (Métivier et Gaudemer, 1999; Castelltort et Van Den Driessche, 2003). Le temps de réponse correspondant au temps pour lequel une perturbation initiée en entrée de système sera transférée en sortie de système, le vecteur de transport du signal étant le flux sédimentaire, il peut être assimilé au premier ordre à un temps de transfert de sédiments. Cependant, cette approche repose sur la forte hypothèse suivant laquelle le transport agit selon un modèle

diffusif à long terme, hypothèse qui a été simulée à l'aide du modèle numérique €ros (Crave and Davy, 2001) par un transport advectif (Castelltort et al., 2003).

2.2.2. Apport de la géochimie

La datation au radiocarbone est particulièrement pertinente lorsque les transferts de masse, matérialisés par des glissements de terrain, s'effectuent de manière très localisée et rapide (Matthews et al., 1997). Lorsque ces transferts de masse sont plus périodiques, les résultats sont cohérents pour des mouvements de type coulées de boues ou de débris ponctuant de longues périodes d'inactivité au cours desquelles sols et végétations ont pu se développer. Cependant, les incertitudes restent élevées à cause des problèmes inhérents à la contamination des échantillons par les acides humiques récents ou les inclusions de sédiments organiques remaniés dans les dépôts de débris (Aitken, 1990).

La datation au radiocarbone ainsi que les autres méthodes dites classiques ont rapidement atteint leurs limites, et relayées par de nouvelles méthodes de datation développées grâce à la mise au point de nouveaux instruments analytiques.

Ainsi, le développement récent de la spectrométrie de masse par accélérateur permet l'analyse des nucléides cosmogéniques pour approcher les problématiques liées aux processus d'érosion et d'altération. Les cosmonucléides, tels ³He, ¹⁰Be, ¹⁴C, ²¹Ne, ²⁶Al, ou encore ³⁶Cl, sont produits lorsque les rayons cosmiques interagissent avec les atomes de l'atmosphère, et de la surface terrestre sur une échelle de profondeur caractéristique de quelques mètres. Cette méthode, qui permet de dater des événements s'échelonnant de quelques centaines d'années à plusieurs millions d'années (Lal, 1988; Bierman, 1995), est essentiellement appliquée à la datation d'éboulements (Nishiizumi et al., 1993), de dépôts glaciaires (Phillips et al., 1990 ; Brook et al., 1995; Clark et al., 1995; Ivy-Ochs et al., 1995; Zreda and Phillips, 1995; Jackson et al., 1997), de cratères d'impacts (Phillips et al., 1991), de coulées de basaltes et autres structures volcaniques (Kurz et al., 1990; Staudacher and Allègre, 1993; Shepard et al., 1995). Une partie des études est également focalisée sur la détermination des taux d'érosion (Dockhorn et al., 1991 ; Strack et al., 1994 ; Brown et al., 1995 ; Bierman and Steig, 1996). Ainsi, l'étude des sédiments de rivières permet la détermination des taux de dénudation moyens par la mesure des cosmonucléides produits in situ, par exemple le ¹⁰Be et le ²⁶Al, majoritairement dans les quartz des sédiments (Von Blanckenburg, 2005). En conséquence, les concentrations mesurées ne vont permettre d'enregistrer que l'histoire de l'érosion d'un matériel ayant été stocké dans l'intervalle de profondeur où la production est effective. Même

si peu de travaux ont été axés sur l'étude des principales zones orogéniques, les résultats les plus prometteurs sont obtenus à partir d'une approche basée non pas sur les sédiments prélevés dans le lit de la rivière, mais sur les terrasses alluviales qui constituent en effet d'excellents marqueurs de l'évolution temporelle d'une rivière (Lavé and Avouac, 2000). Ainsi, le réajustement du lit de la rivière lié à la surrection et/ou l'érosion des reliefs permet quelquefois la conservation de ces niveaux repères. Le calcul du temps d'exposition de ces objets décalés par la mesure des nucléides cosmogéniques produit in-situ permet alors de reconstruire les différentes étapes de structuration de la rivière. Cette démarche peut constituer alors d'excellents marqueurs de la géodynamique régionale (Lavé et Avouac, 2001) permettant in fine de proposer une constante de temps de résidence moyenne des sédiments dans un bassin versant. Néanmoins, non seulement les incertitudes demeurent élevées, de l'ordre de 10 à 20%, mais elles reposent également sur plusieurs hypothèses relativement contraignantes. En effet, l'histoire de l'exposition de la surface est mal connue ; la surface exposée a déjà pu subir l'érosion ; les taux de production des isotopes sont estimés à partir d'hypothèses ; les lithologies érodées doivent être homogènes, le cas idéal étant le bassin versant monolithologique; l'érosion doit être uniforme de manière à obtenir un état stationnaire isotopique où la production de cosmonucléides est alors égale à son exportation ; les constantes de temps d'érosion doivent être inférieures à la décroissance radioactive des nucléides étudiés.

Parallèlement à l'utilisation des cosmonucléides, d'autres approches géochimiques comme la datation Ar-Ar ou à l'aide des nucléides des séries de l'uranium sont développées, en particulier pour la datation de la mise en place de tephras (par exemple Buettner et al., 2003) ou de carbonates secondaires situés directement au-dessus ou en-dessous du glissement de terrain comme la calcite en remplissage de fissures (Dorale et al., 1992; Ludwig et al., 1992).

La datation de type OSL (Optically-Stimulated-Luminescence) exploite le fait que la radioactivité naturelle et la radiation cosmique induisent des défauts dans les réseaux cristallins. L'intensité du signal de la luminescence est proportionnel au nombre de défauts et donc à l'âge du minéral. Cette méthode est appliquée aux dépôts éoliens, fluviatiles, littoraux. Elle est particulièrement efficace pour les colluvions puisque, dans ce cas, les âges OSL sont en accord avec les âges ¹⁴C et les données archéologiques (Land and Wagner, 1996, 1997).

Enfin, la technique ART (α -recoil-track), qui repose sur l'étude des traces formées par le recul d'un noyau au cours de l'émission d'une particule α (Huang and Walker, 1967;

Hashemi-Nezhad and Durrani, 1981; Wagner, 1995), permet notamment d'approcher la datation des tephras.

En résumé, la quantification des constantes de temps caractéristiques des processus d'érosion et d'altération est relativement complexe et repose sur un certain nombre d'hypothèses qui sont souvent non vérifiées dans le milieu naturel. Néanmoins, des travaux récents focalisés sur différents bassins mondiaux, en particulier celui de la MacKenzie (Vigier et al., 2001), de la Narmada-Tapti (Vigier et al., 2005), de l'Amazone (Dosseto et al., 2006), du Murray (Dosseto et al., 2006), et de rivières d'Islande (Vigier et al., 2006), ont mis en évidence le potentiel des nucléides radioactifs des séries de l'uranium pour contraindre les constantes de temps caractéristiques de ces processus à partir de l'analyse des phases dissoutes et particulaires des rivières. Le potentiel de ces outils ainsi que des exemples d'application sont présentés dans le prochain chapitre.
3 Les déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra : principe et application à l'étude des processus d'érosion et d'altération

Le présent chapitre présente les déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra. Les chaînes de désintégrations radioactives sont définies dans un premier temps, ainsi que les notions d'équilibre séculaire et de déséquilibre radioactif. Après une description des propriétés des différents nucléides au cours de l'interaction eau-roche, leurs applications à l'étude des processus d'érosion, d'altération et de leurs constantes de temps caractéristiques sont également présentées. Pour de plus amples détails, le lecteur se réfèrera à un article de synthèse récent, par Chabaux, F., Riotte, J., and Dequincey, O., 2003.

3.1. Les chaînes de décroissance radioactive

A l'état naturel, il existe 3 chaînes de décroissance radioactive dont les nucléides pères sont des isotopes de l'uranium, ²³⁸U et ²³⁵U, et du thorium, ²³²Th. Ces chaînes aboutissent toutes à un isotope stable du plomb, respectivement ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb et ²⁰⁸Pb (Figure 1).

3.1.1. Equilibre séculaire

Lors d'une évolution en système clos, les nucléides des séries de l'uranium atteignent un état dit d'équilibre séculaire pour un temps suffisamment long. Dans pareil cas, les équations qui régissent l'évolution des nucléides au cours du temps démontrent que leurs activités sont égales entre elles (Bateman, 1910). Par exemple, dans le cas de la chaîne de décroissance radioactive de ²³⁸U, ce dernier présente la période radioactive la plus importante et impose son taux de décroissance à l'ensemble des nucléides de la série. On obtient ainsi la relation suivante :

$$(^{238}\text{U}) = (^{234}\text{Th}) = (^{234}\text{Pa}) = (^{234}\text{U}) = (^{230}\text{Th}) = \dots = (^{210}\text{Po})$$

3.1.2. Déséquilibres radioactifs

L'état d'équilibre séculaire est rompu au cours des processus géologiques car les nucléides des chaînes radioactives y répondent de manière différente du fait de leurs propriétés physico-chimiques variables d'un élément à l'autre. Le déséquilibre induit se traduit par la relation suivante :

$$(^{238}\text{U}) \neq (^{234}\text{Th}) \neq (^{234}\text{Pa}) \neq (^{234}\text{U}) \neq (^{230}\text{Th}) \neq \ldots \neq (^{210}\text{Po})$$

3.1.3. Retour à l'équilibre

Une fois en déséquilibre, le système tend à revenir vers l'état d'équilibre séculaire par désintégration radioactive. Cette propriété propre aux nucléides des séries de l'uranium implique un facteur temps et souligne ainsi leur potentiel non seulement en tant que traceurs des processus d'altération, mais également en tant que chronomètres de ces phénomènes.



Figure 1 : Schémas des chaînes de décroissance radioactives naturelles. Les désintégrations s'accompagnent de l'émission de particules α (flèches verticales) et β^- (flèches diagonales). Les périodes des radionucléides sont également mentionnées.

Lorsque le système évolue en système clos au cours du temps (t), le processus induit pour revenir à l'état d'équilibre est la désintégration radioactive des isotopes père (P) et fils (F) :

$$dF/dt = \lambda_P P - \lambda_F F$$

où λ_P et λ_F sont les constantes de désintégration radioactive des isotopes père et fils.

Le retour à l'équilibre séculaire s'effectue sur une durée équivalente à environ 5 fois la période du nucléide fils (Figure 2) :



Figure 2 : Evolution en système clos de couples de nucléides de périodes différentes, à partir d'un rapport initial (t=0) fixé arbitrairement (modifié d'après Chabaux, 1993).

3.1.3.2. Cas d'un système ouvert

Le système n'évolue plus en système clos dès lors que les apports et pertes de nucléides ne sont plus uniquement contrôlés par la décroissance radioactive. Pareille situation a notamment été évoqué par Latham et Schwarcz (1987) dans le cas d'une roche soumise à l'altération :

$$dF/dt = \lambda_P P - (\lambda_F + k_F)F$$

où k_F représente le coefficient de lessivage du nucléide fils, soit la proportion de nucléide mis en solution par unité de temps.

3.2. Origine des fractionnements ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra

3.2.1. Effet de recul

Les isotopes lourds sont en théorie faiblement fractionnés. Cependant, des excès et des déficits de ²³⁴U par rapport au ²³⁸U induisant respectivement des déséquilibres (²³⁴U/²³⁸U) supérieurs à 1 dans les eaux et inférieurs à 1 dans les phases solides résiduelles (sédiments, matières en suspension et sols), ont été largement observés lors de travaux précurseurs (par exemple Cherdyntsev, 1955 ; Thurber, 1962 ; Koide et Goldberg, 1964 ; Rosholt et al., 1966 ; Osmond and Cowart, 1976 ; Moreira-Nordemann, 1980) et plus récents (Figure 3).



Figure 3 : Déséquilibres (²³⁴U/²³⁸U) des phases dissoutes et résiduelles (matières en suspension) du bassin de la Mackenzie, Canada (Vigier et al., 2001).

Ce fractionnement est lié à l'existence d'un processus appelé effet de recul. Mis en évidence par Cherdyntzev et collaborateurs (1955), il traduit le recul d'un isotope fils hors de son site, de 40 nm environ (Harvey, 1962). Ce phénomène, encore appelé recul α , est lié à la décroissance radioactive de l'isotope père. Au cours de ce processus, l'émission de l'isotope fils et d'un noyau d'hélium s'accompagne d'une énergie cinétique suffisamment importante pour éjecter l'isotope fils directement en solution ou tout du moins pour endommager la matrice cristalline et le rendre ainsi plus facilement mobilisable (Rosholt et al., 1963 ; Kigoshi, 1971 ; Fleischer, 1980). L'éjection directe de l'isotope fils en solution dépend de la longueur de son déplacement lors de la désintégration de l'isotope père et de l'angle avec lequel il est émis par rapport à la surface de la particule (Fleischer and Raabe, 1978). Les effets de recul peuvent également favoriser la redistribution des isotopes entre différentes phases minérales. Ainsi, des déséquilibres ($^{234}U/^{238}U$) élevés observés dans un minéral peuvent s'expliquer par le recul de ^{234}U d'une phase riche en uranium vers une phase pauvre (Sheng and Kuroda, 1986a,b).

3.2.2. Fractionnement chimique

3.2.2.1. Thermodynamique des nucléides des séries de l'uranium

Le Thorium

En élément trace dans les minéraux silicatés ou encore adsorbé sur les phases argileuses et colloïdales (Hansen, 1970), le thorium est également présent en tant qu'élément majeur dans des minéraux comme la thorianite, ThO₂, ou la thorite, ThSiO₄. Sous forme de cation tétravalent Th⁴⁺ à l'état naturel, la majeure partie du thorium crustal est incorporé dans la structure des zircons, minéraux peu altérables, et ainsi longtemps considéré comme immobile au cours des processus d'altération. Les concentrations mesurées dans les eaux souterraines et de surface sont faibles, de l'ordre de 0.1 à 10 ppb, et généralement supérieures à celles estimées à partir de la constante de solubilité de la thorianite (10^{-5} ppb à pH supérieur à 5). D'après Langmuir et Herman (1980), la mobilité du thorium est en réalité favorisée par la formation de complexes avec d'autres ions de nature inorganique (Figure 4), les fluorures, phosphates et hydroxydes (Anderson et al., 1982 ; Lin et al., 1996), ou organique (acides humique et fulvique, Figure 5).



Figure 4 : Distribution des complexes du thorium en fonction du pH, à 25°C, en présence de ligands inorganiques classiques des eaux de surface et profondes (Th = 0.01 µg/L, $\Sigma F = 0.3$ ppm, $\Sigma Cl = 10$ ppm, $\Sigma PO_4 = 0.1$ ppm, $\Sigma SO_4 = 100$ ppm). Les espèces dominantes sont Th(SO₄)₂⁰, ThF₂²⁺, et Th (HPO₄)₂⁰ à pH < 4-5 ; Th(HPO₄)₃²⁻ à pH compris entre 4.5 et 7.5, et Th(OH)₄⁰ à pH > 7.5 (Langmuir et Herman, 1980 ; in Chabaux et al., 2003).



Figure 5 : Solubilité de la thorianite en fonction du pH, à 25°C, et en présence de ligands organiques et inorganiques ($\Sigma F = 0.3 \text{ ppm}$, $\Sigma Cl = 10 \text{ ppm}$, $\Sigma PO_4 = 0.1 \text{ ppm}$, $\Sigma SO_4 = 100 \text{ ppm}$, $\Sigma NO_3 = 2.5 \text{ ppm}$, $\Sigma oxalate = 1 \text{ ppm}$, $\Sigma citrate = 0.1 \text{ ppm}$, $\Sigma EDTA = 0.1 \text{ ppm}$). La thorianite est relativement insoluble dans l'eau pure, sauf à bas pH. Sa solubilité est affectée par les ligands inorganiques à pH < 6, et organiques à pH < 8 (Langmuir et Herman, 1980 ; in Chabaux et al., 2003).

L'Uranium

D'après Langmuir (1978), l'uranium en milieu naturel présente principalement deux états d'oxydation, U (IV) et U (VI) (Figure 6) :



Figure 6 : Diagramme Eh – pH du système U-C-H-O, à 25°C et 1 atm, où $\Sigma U = 1 \mu mol/L$ et PCO₂ = 10^{-2} atm (Langmuir, 1978 ; in Chabaux et al., 2003).

Enrichi dans certains minéraux accessoires comme l'apatite ou le sphène, l'uranium mis en solution (U^{4+}) est insoluble et tend ainsi à précipiter en uraninite insoluble (UO_2) . Sa mise en solution est favorisée par complexation avec des fluorures à faible pH, ou des groupements hydroxyles à pH supérieur à 7-8 (Figure 7) :



Figure 7 : Solubilité de l'uraninite en fonction du pH, à 25°C, pour différentes concentrations de fluorures. La solubilité de l'U est améliorée à pH < 3-4 par la formation de complexes avec les fluorures, et à pH élevés par la formation de complexes avec les ions hydroxyles (Langmuir, 1978 ; in Chabaux et al., 2003).

L'uranium peut également s'oxyder en U^{6+} , soluble et stable sous sa forme uranyl (UO_2^{2+}) en conditions oxydantes (cas des eaux de surface par exemple). Il est facilement complexé avec les hydroxydes et les fluorures, mais surtout avec les carbonates et les phosphates où sa mobilité est favorisée (Figure 8) :



Figure 8 : Distribution des complexes uranyl en fonction du pH, à 25°C, et en présence de ligands classiques des eaux de surface et profondes (PCO₂ = $10^{-2.5}$ atm, $\Sigma F = 0.3$ ppm, $\Sigma Cl = 10$ ppm, $\Sigma SO_4 = 100$ ppm, $\Sigma PO_4 = 0.1$ ppm, $\Sigma SiO_2 = 30$ ppm). Les espèces dominantes sont UO₂²⁺ et les complexes avec les fluorures à pH < 4-5 ; UO₂(HPO₄)₂²⁻ à pH compris entre 4.5 et 7.5, et les complexes avec les carbonates à pH > 7.5 (Langmuir, 1978 ; in Chabaux et al., 2003).

Le transport d'uranium est également influencé par les ligands organiques (Gayscone, 1992 ; Lenhart et al., 2000 ; Montavon et al., 2000). Par contre, dans les aquifères, l'uranium peut être indifféremment présent sous forme U^{4+} et U^{6+} (Porcelli and Swarzenski, 2003).

Le Radium

Elément faiblement soluble, le radium se trouve sous forme Ra²⁺ ou Ra(SO₄) dans les eaux naturelles (Benes, 1983). Même si des précipités insolubles peuvent se former avec les carbonates et les sulfates dans les eaux, le radium reste soluble en conditions réductrices et dans des eaux salines (Dickson, 1985 ; Langmuir and Melchior, 1985 ; Ivanovich et Harmon, 1992 ; Sturchio et al., 1993). Les teneurs en Ra dans les eaux de rivière varient entre 1.8 et 900 fg/L, les valeurs plus élevées que la moyenne des rivières mondiales correspondant à des rivières s'écoulant en milieu aride, drainant des lithologies riches en uranium ou des dépôts de phosphates (Burnett et al., 1990), et des carbonates riches en HCO₃⁻ (Plater et al., 1995). D'après Chabaux et al. (2003), elles sont principalement contrôlées par les concentrations en uranium et thorium de la roche mère, les réactions d'adsorption-désorption, l'apport de Ra par dissolution ou décroissance radioactive, la précipitation de phases insolubles et le mélange de masses d'eau (Krishnaswami et al., 1982 ; Scott, 1982 ; Rama and Moore, 1984 ; Sarin et al., 1990 ; Plater et al., 1995).

3.2.2.2. Interactions avec les phases minérales

La mobilisation des radionucléides est influencée par les processus d'adsorption. Ces processus sont contrôlés par des paramètres physiques comme la température, la capacité d'échange cationique et la surface spécifique des minéraux (Borovec, 1981 ; Prikryl et al., 2001), et des paramètres chimiques comme le pH, la force ionique et les teneurs en ligands organique et inorganique dans la solution.

A des pH proches des eaux naturelles, de 4 à 9, l'adsorption d'uranium est favorisée par l'occurrence d'oxyhydroxydes de fer, manganèse ou titane, gels de silice, argiles et micas (Ames et al., 1983a, c, d ; Allard et al., 1999), mais inhibée par la présence de carbonates. Les principales argiles concernées sont la kaolinite, l'illite, la montmorillonite et la bentonite (Borovec, 1981 ; Shirvington, 1983 ; Giaquinta et al., 1997). Les oxydes et hydroxydes de fer capables de retenir l'uranium sont les oxyhydroxydes de fer amorphes, la goethite et

l'hématite (Hsi and Langmuir, 1985 ; Murphy et al., 1999). La présence de carbonates inhibe la rétention d'uranium, en particulier sur la biotite ou les oxyhydroxydes de fer (Ames et al., 1983a, c, d ; Hsi and Langmuir, 1985 ; Duff et Amrhein, 1996). A l'inverse, la présence d'acides humiques favorise la rétention d'uranium par des phases comme l'hématite et les argiles à pH acide (Figure 9 et Geickes et al., 1999 ; Lenhart et Honeyman, 1999 ; Murphy et al., 1999 ; Schmeide et al., 2000) :



Figure 9, in Chabaux et al., 2003 : Adsorption de U(VI) sur la muscovite (a, Schmeide et al., 2000) et l'hématite (b, Lenhart et Honeyman, 1999) en l'absence (U) et en présence d'acide humique (U+HA). a : [UO₂⁺] = 1 μmol/L, [HA] = 5 mg/L, 1.2 g/L de muscovite. L'adsorption d'uranium est facilitée en présence d'acide humique à bas pH. b : [U] = 1 μmol/L, [HA] = 10 mg/L, 0.9-9 g/L d'hématite. L'adsorption d'uranium est facilitée en présence d'hématite à bas pH.

Les argiles et les oxyhydroxydes de fer jouent un rôle prépondérant sur l'adsorption de thorium, en particulier à des pH inférieurs à 2 pour ces derniers. A pH acide, la rétention de thorium est favorisée par la matière organique (Cromières et al., 1998 ; Geickes et al., 1999 ; Murphy et al., 1999).

A l'image de l'uranium et du thorium, la mobilité du radium est fortement réduite par les processus d'adsorption sur des hydroxydes de fer, micas et argiles secondaires (Ames et al., 1983a, c, d), ou encore les oxydes de manganèse (Herczeg et al., 1988) et les zéolites (Sturchio et al., 1989). L'adsorption de radium diminue significativement lorsque la salinité de l'eau augmente (Kraemer and Reid, 1984) et à haute température.

3.2.2.3. Rôle de la matière organique, des micro-organismes et des colloïdes

La matière organique constitue un ligand pour l'uranium et le thorium, en particulier les acides citrique, fulvique et humique des sols (Halbach et al., 1980 ; Nagy et al., 1991 ; Czerwinski et al., 1994 ; Zuyi and Huanxin, 1994 ; Zuyi et al., 1996 ; Lenhart et al., 2000 ; Schmeide et al., 2000).

L'impact des micro-organismes sur le cycle du thorium et du radium reste peu étudié et requiert des investigations futures. Néanmoins, le rôle de l'activité microbiologique sur l'uranium est relativement bien connu (Suzuki and Banfield, 1999). Ainsi, le degré d'oxydation de l'uranium peut être modifié par la présence de bactéries réductrices dans le milieu (Fe et SO₄), la réduction de U(VI) en U(IV) par ces bactéries affectant sa mobilité (Fredrikson et al., 2000 ; Lovley et al., 1991 ; Lovley and Phillips, 1992 ; Spear et al., 2000). D'autres mécanismes d'accumulation d'uranium par les microbes sont recensés (Suzuki and Banfield, 1999) : les mécanismes dépendants du métabolisme, comme la précipitation enzymatique d'uranyl phosphate, la réduction enzymatique de U(VI) ou la complexation d'uranium par les molécules chélatrices (rendant l'uranium plus mobile), et les mécanismes indépendants du métabolisme traduisant les interactions physico-chimiques entre les formes cationiques d'uranium et les sites microbiens chargés négativement.

Une proportion significative de l'uranium est transporté sous forme de particules en suspension. Ainsi, 40 à 60% de l'uranium des rivières du bassin du Congo est associé à des particules en suspension (Dupré et al., 1996), proportion variant de 20 à 50% dans la Kalix River (Andersson et al., 1998). L'immobilité du thorium se traduit par un transport dans les eaux sous forme particulaire (> 0.1-0.45 microns) à plus de 95% (Vigier et al., 2001 ;

Andersson et al., 1995 ; Porcelli et al., 2001), la majeure partie du thorium étant incluse dans des phases détritiques (Plater et al., 1992) plutôt que non-détritiques (Porcelli et al., 2001). Ces proportions négligent cependant le rôle des colloïdes, particules de taille comprise entre 1 et 1000 nm, qui ont un rôle non négligeable sur le fractionnement des nucléides des séries de l'uranium. Ils présentent diverses origines, organique ou inorganique (Figure 10) :



Figure 10 : Taille et nature des colloïdes et particules dans les systèmes aqueux (adapté de Buffle et Van Leeuwen, 1992, par Riotte, 2001).

Dans les eaux naturelles, la mobilité des radionucléides est influencée par les colloïdes (Dearlove et al., 1991 ; Moulin and Ouzounian, 1992).

L'uranium est complexé préférentiellement par les colloïdes organiques (Short et al., 1988 ; Porcelli et al., 1997 ; Viers et al., 1997 ; Riotte et al., 2003), particulièrement à des pH inférieurs à 6-7 (Read et al., 1993 ; Lienert et al., 1994). Ainsi, la fraction d'uranium dissous fixé sur les colloïdes organiques (Figure 11) peut atteindre 80% dans le cas des eaux de nappes (Dearlove et al., 1991), peut varier de 75 à 90% dans les rivières du Mont Cameroun (Viers et al., 1997 ; Dupré et al., 1999) et de 30 à 90% dans la Kalix River (Porcelli et al., 1997). Des expériences d'ultra-filtration (Viers et al., 1997 ; Dupré et al., 1999 ; Porcelli et al., 1997).

al., 2001) et des observations géochimiques (Allègre et al., 1996) ont également suggéré l'influence des colloïdes organiques sur la mobilité du thorium dissous (Figure 11) :



Figure 11 : Variations des teneurs en U et Th dans les filtrats de différents échantillons, en fonction de la taille de filtration et des teneurs en COD (Viers et al., 1997⁽¹⁾; Dupré et al., 1999⁽²⁾; Porcelli et al., 1997, 2001⁽³⁾; Riotte et al., 2003⁽⁴⁾; in Chabaux et al., 2003). Les résultats suggèrent le rôle des réactions de complexation et/ou des colloïdes, organiques et/ou inorganiques, sur le transport de l'uranium et du thorium.

Bien qu'étant un phénomène encore peu étudié, une partie de l'uranium dissous peut également être fixé sur les colloïdes inorganiques mais en proportions moindres (Lienert et al., 1994 ; Andersson et al., 1998 ; Riotte et al., 2003). Dans le cas du thorium, le rôle des colloïdes inorganiques reste encore à étudier même si les expériences de fixation du Th sur

des phases minérales supporteraient la possibilité de complexation ou d'adsorption du thorium sur des colloïdes de type oxyhydroxydes de fer. La majeure partie du thorium dissous semblerait ainsi colloïdal, comme l'atteste les fortes concentrations de thorium mesurées dans des eaux riches en COD et donc en colloïdes organiques, par rapport aux valeurs obtenues en l'absence de colloïdes (Dupré et al., 1996).

Même si la complexation du radium par les colloïdes est largement sous-contrainte, les études effectuées sur le baryum, dont le comportement géochimique est voisin de celui du radium, suggèrent qu'une fraction significative de radium peut être complexée par les colloïdes, mais en proportions moindres que pour l'uranium et le thorium (Viers et al., 1997 ; Porcelli et al., 2001).

3.3. Contrainte sur les processus d'érosion physique et d'altération chimique par les séries de l'uranium

L'utilisation des nucléides des séries de l'uranium dans les thématiques d'érosion et d'altération a surtout été focalisée sur l'étude des sols, afin de contraindre les mécanismes d'altération et la mobilité des différents éléments, et des rivières, pour caractériser le transport des produits d'érosion par les rivières et établir des bilans de transfert de matière des continents jusqu'aux océans. Une synthèse récente de ces travaux est présentée dans Chabaux et al. (2003), mais seuls seront présentés ici les principaux résultats obtenus en y intégrant les études les plus récentes.

3.3.1. Les sols

Depuis les travaux pionniers (Rosholt et al., 1966 ; Hansen and Stout, 1968), l'étude des sols a mis en évidence la complexité du comportement des radionucléides au cours de l'altération. Ainsi, les études se sont axées sur l'estimation des échelles de temps de l'érosion, dans les sols, en modélisant les variations des déséquilibres avec la profondeur (Rosholt, 1982 ; Osmond and Ivanovich, 1992 ; Mathieu et al., 1995 ; Dequincey et al. 1999, 2002). Cependant, les déséquilibres observés peuvent être fondamentalement différents des valeurs attendues d'un processus théorique d'altération, c'est-à-dire une perte d'uranium par rapport au thorium dans les profils d'altération profonds et un enrichissement dans les horizons superficiels et/ou certaines zones d'accumulation (Pliler and Adams, 1962 ; Rosholt et al., 1966 ; Hansen and Stout, 1968). En effet, l'évolution peut être complètement opposée et nécessiter d'invoquer des pertes et des gains d'uranium instantanés ou continus (Thiel et al., 1983 ; Scott et al., 1992). La modélisation de ce double processus permet de caractériser des vitesses d'altération et de redistribution d'éléments (Ghaleb et al., 1990 ; Goetz, 1990 ; Hillaire-Marcel et al., 1990 ; Dequincey et al., 2002). Enfin, l'étude des sols par les radionucléides peut être rendue encore plus complexe dans la mesure où les paramètres contrôlant la mobilité d'uranium peuvent également varier dans le temps et dans l'espace. Ainsi, un même niveau peut être caractérisé par des alternances de gain et de perte d'uranium au cours du temps (Chabaux et al., 2004).

3.3.2. Les rivières

Les premiers travaux réalisés sur les déséquilibres dans les rivières ont permis de caractériser le bilan de masse de l'uranium dans les océans par l'analyse du couple ²³⁴U-²³⁸U (Ku et al., 1977 ; Martin et al., 1978 ; Mangini et al., 1979 ; Borole et al., 1982 ; McKee et al., 1987 ; Caroll and Moore, 1993). Par la suite, les études se sont consacrées à l'identification de la source des radionucléides dans les rivières (Sarin et al., 1990 ; Pande et al., 1994 ; Riotte and Chabaux, 1999 ; Chabaux et al. 2001), et la caractérisation de leur spéciation au cours du transport avec une large partie des travaux consacrés à l'uranium plutôt qu'au thorium et au radium (Andersson et al., 1995 ; Porcelli et al., 1997 ; Andersson et al., 1998 ; Porcelli et al., 2001 ; Riotte et al., 2003).

Ainsi, dans les rivières, la source majeure d'uranium est la dissolution des carbonates et, dans une moindre mesure, des silicates (Palmer and Edmond, 1993), l'apport des pluies étant négligeable (Chabaux et al., 2001, 2005 ; Riotte et al., 2003). Les autres sources possibles sont des cas particuliers, comme les black shales (in Chabaux et al., 2001), ou les engrais (Palmer and Edmond, 1993), ces derniers ne constituant qu'une source mineure (Mangini et al., 1979 ; Riotte and Chabaux, 1999) à moins que l'agriculture ne soit vraiment intensive (Zielinski et al., 2000). Par ailleurs, le déséquilibre (²³⁴U/²³⁸U) dépend de la lithologie, la dissolution incongruente des silicates induisant un déséquilibre (²³⁴U/²³⁸U) par effet de recul, ce dernier étant faible dans le cas de la dissolution congruente des carbonates (Sarin et al., 1990 ; Plater et al., 1992). Toutefois, des études récentes ont montré des exceptions à cette observation, avec des déséquilibres faibles dans des eaux silicatées et forts dans le cas d'eaux carbonatées (Riotte and Chabaux, 1999 ; Chabaux et al., 2001). Enfin, le déséquilibre (²³⁴U/²³⁸U) permet de caractériser l'apport d'eaux souterraines, les aquifères

ayant en général des déséquilibres particulièrement élevés (Riotte and Chabaux, 1999; Porcelli and Swarzenski, 2003; Durand et al., 2005). En ce qui concerne la spéciation des radionucléides au cours du transport, l'étude la plus complète est celle de la Kalix (Suède), rivière atypique au faible débit, transportant peu de matières en suspension et riche en matière organique. Ces études ont notamment mis en évidence le rôle des échanges entre les phases, le rôle des colloïdes et des processus d'adsorption (Andersson et al., 1995; Porcelli et al., 1997; Andersson et al., 1998; Porcelli et al., 2001).

Finalement, peu de travaux ont été consacrées jusqu'à présent à l'étude des constantes de temps des processus d'érosion et d'altération (Osmond and Cowart, 1976; Moreira-Nordemann, 1980). En domaine océanique, une étude récente de sédiments siliciclastiques d'Atlantique Nord (forage ODP, site 984) par les nucléides des séries de l'uranium a proposé des constantes de temps de transfert et stockage de ces sédiments comprises entre 10 et 300-400 milliers d'années (DePaolo et al., 2006). Cette variabilité serait attribuée à la prépondérance de différentes sources au cours du temps, à l'origine de temps courts pour une source de type Islande et de temps longs pour une source plus distale reflétant l'alternance de stockage dans les sols, les plateaux continentaux et les planchers océaniques. En milieu continental, l'étude des nucléides ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra dans les phases dissoutes et particulaires des rivières du bassin de la Mackenzie a permis de proposer des temps caractéristiques d'érosion en considérant que les matières en suspension sont altérées de manière continue, chaque nucléide étant lessivé selon une cinétique de premier ordre et caractérisé par une constante de lessivage (Vigier et al., 2001). Cette approche a depuis été reprise pour des rivières indiennes (Vigier et al., 2005), islandaises (Vigier et al., 2006) et australiennes (Dosseto et al., 2006c). Parmi les zones où l'érosion est la plus intense, seul le bassin de l'Amazone a été étudié (Dosseto et al., 2006a, 2006b), mettant en évidence des constantes de temps de production, stockage et transport de sédiments courtes, inférieures à quelques dizaines de milliers d'années, et que l'érosion n'agit pas à l'état stationnaire, le taux d'érosion physique étant bien supérieur au taux de production des sols. Ces études ont essentiellement mis en évidence le potentiel des nucléides des séries de l'uranium pour proposer des constantes de temps de résidence moyennes dans un bassin versant, mais n'ont pas permis de contraindre la part de temps passée par les particules dans les profils d'altération de la roche mère de celle passée ensuite dans les rivières à être transportées.

4 Les méthodes analytiques

Ce chapitre présente les méthodes employées pour prélever les différents échantillons de rivières étudiés, les eaux, les sédiments de berge et de fond, et les matières en suspension. La mesure des concentrations en éléments majeurs et traces est discutée, ainsi que de manière plus détaillée les techniques utilisées pour déterminer les compositions isotopiques par spectrométrie de masse à thermo-ionisation ou encore les concentrations par dilution isotopique.

4.1. Spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS)

4.1.1. Principe de la thermo-ionisation

Une des méthodes couramment employées pour mesurer avec précision les abondances isotopiques des éléments est la spectrométrie de masse à thermo-ionisation. Elle repose sur le principe qu'une molécule placée au contact d'une surface métallique chauffée, un filament, s'évapore avec une certaine probabilité d'être partiellement ionisée (environ 0.1%). Les ions produits peuvent être négatifs, mais ils sont essentiellement positifs. Le processus théorique de formation des ions est défini par l'équation simplifiée de Langmuir-Saha qui s'écrit :

$$\frac{n^+}{n^0} = e^{\frac{E-I}{kT}}$$

où n⁺ est le nombre d'ions positifs émis, n⁰ le nombre d'atomes initialement déposés, E la fonction de travail de la surface du filament, I le potentiel d'ionisation de l'espèce évaporée, k la constante de Boltzmann ($0.86184.10^{-4}$ eV.K⁻¹), et T la température du filament (K).

Il faut noter que cette formule est difficilement applicable car des phénomènes complexes se produisent dans une source d'ions. En effet, l'élément à analyser n'est pas à l'état atomique, car il est déposé sous la forme d'un oxyde ou d'un sel plus ou moins dissocié par l'action de la température. D'autre part, l'énergie d'extraction de la surface est modifiée par la présence de l'élément à analyser et l'équilibre thermique entre les molécules et la surface métallique n'est qu'imparfaitement réalisé.

4.1.2. Appareillage

4.1.2.1. La source

Tout spectromètre de masse est composé d'une source, d'un système analyseur et d'un détecteur (Figure 1) :



Figure 1 : Schémas simplifiés des spectromètres VG Sector (1) et Finnigan Triton (2)

La source, enfermée dans une enceinte maintenue sous vide, est composée d'une partie fixe, qui comprend la chambre d'ionisation ainsi que les plaques d'extraction et de focalisation, et d'une partie mobile, l'assemblage de filaments, qui constitue le dispositif d'émission. La haute tension est appliquée à l'ensemble chambre d'ionisation-filaments. Les potentiels appliqués sont réglables de manière à corriger les distorsions du faisceau d'ions que provoquerait un défaut de position des filaments ou du dépôt. Une source d'ions à émission thermo-ionique doit présenter les caractéristiques suivantes : la tension d'accélération doit être suffisamment élevée pour rendre négligeable la dispersion d'énergie lors de la formation des ions ; l'alignement des filaments et des fentes doit être aussi reproductible que possible et la source doit être aisément démontable pour faciliter le nettoyage des isolants que les produits volatilisés rendent conducteurs en cours d'analyse. Le dispositif d'émission employé est l'assemblage à filament simple, double ou triple. Dans le cas de l'uranium, par exemple, le produit est déposé sur le filament, puis décomposé en oxyde soit par un chauffage préalable du filament à l'air avant l'introduction dans le spectromètre, soit à l'intérieur de la source au cours de la montée en température du filament qui précède l'analyse. Dans ce cas, l'ionisation et la volatilisation se produisent simultanément. Il est rappelé que le métal utilisé doit être très pur, avoir une énergie d'extraction élevée et une faible tension de vapeur. Le Ta et la Re sont les métaux les plus couramment employés, car en général obtenus plus purs que le W. Dans tous les cas, un dégazage avant analyse permet d'éliminer les impuretés résiduelles des filaments en les chauffant sous vide à une température supérieure à celle utilisée pendant l'analyse. L'assemblage est constitué d'un support isolant traversé par des tiges métalliques sur lesquelles sont soudés les filaments. Il faut introduire un assemblage de filaments dans la source pour chaque échantillon, et sans que le vide ne soit modifié dans le tube analyseur.

Pour ce faire, l'enceinte contenant la source est mise à la pression atmosphérique après obturation du tube analyseur par une vanne d'isolement. Ce système présente l'avantage de faciliter l'accès à la chambre d'ionisation, ce qui permet des changements d'échantillons et des nettoyages plus rapides.

4.1.2.2. Le système analyseur

La faible dispersion en énergie des ions émis permet de n'utiliser qu'un secteur magnétique pour sélectionner et focaliser les ions de même quantité de mouvement et de même énergie. L'analyseur le plus couramment employé est un prisme magnétique à simple focalisation, d'angle 60° ou 90°, et de rayon de courbure en général compris entre 20 et 35 cm. Un grand rayon de courbure autorise une tension d'accélération plus élevée sans que la valeur correspondante du champ magnétique n'impose un électro-aimant de dimension prohibitive. Les ions produits sont donc accélérés, puis déviés par un champ magnétique produit par un électro-aimant. La déviation de chaque ion de charge q dépend de sa masse m et de l'intensité du champ magnétique B :

$$R_C = \frac{1}{B} \sqrt{\frac{2mV}{q}}$$

où V est le potentiel d'accélération des ions à l'entrée du champ magnétique, et R_C la rayon de courbure de la trajectoire de l'isotope dans le champ magnétique.

4.1.2.3. Le détecteur

Après leur passage à travers une fente image fixe, les courants d'ions sont reçus par le système de détection qui comprend des cages de Faraday, lesquelles permettent une mesure simultanée de plusieurs isotopes d'un même élément. Plusieurs méthodes d'analyse sont possibles. La première est la monocollection simple, où tous les isotopes sont mesurés avec un seul détecteur. Le temps d'analyse est multiplié par le nombre d'isotopes à analyser et les fluctuations d'émission ne sont pas corrigées. La seconde est la multicollection statique, où chaque isotope est mesuré sur un détecteur différent. Dans ce cas, il est nécessaire de connaître avec précision le gain de chaque chaîne de collection (paramètre intrinsèque à chaque détecteur ; c'est le rapport entre le signal "vrai" et le signal lu par le détecteur), ce qui

impose plusieurs types de corrections (calibrations électrique, ionique,...). Cette méthode est plus rapide que la première et permet de s'affranchir des fluctuations d'émission. La dernière méthode est la multicollection dynamique, compromis des deux précédentes, qui ne s'applique qu'aux éléments dont on peut corriger le fractionnement, les isotopes étant mesurés par paires. Un ou deux isotopes sont mesurés successivement sur plusieurs collecteurs, plusieurs cycles de mesure étant ainsi effectués. La méthode permet de s'affranchir des fluctuations éventuelles du gain des chaînes de collection et, en partie, des fluctuations d'émission. Les mesures sont effectuées sur des collecteurs de type cage de Faraday pour des faisceaux ioniques importants.

Dans le cas de faibles signaux, la mesure nécessite un autre type de collecteur capable d'amplifier le signal : un détecteur Daly ou un compteur d'ions. Par exemple, le détecteur Daly (Figure 2), monté en dérivation du collecteur central, est composé d'une électrode, d'un scintillateur et d'un photomultiplicateur d'électrons :



Figure 2 : Schéma simplifié du Daly, convertissant le faisceau d'ions en électrons puis en photons et permettant le positionnement du détecteur final à pression atmosphérique, et non plus sous vide.

Le taux d'amplification (gain) est variable entre 10^2 et 10^7 . Après être amplifié et après correction du temps de descente (constante de temps RC), le signal est mesuré sur un voltmètre digital. Le bruit de fond du détecteur augmentant avec le gain, un compromis est nécessaire entre une détection précise et un faible bruit de fond. Le détecteur Daly amplifie mais ne possède pas néanmoins la sensibilité ni le faible bruit de fond d'un compteur d'ions.

La mesure des faibles signaux est également dépendante de la sensibilité en abondance du spectromètre, c'est-à-dire la contribution d'un pic sur les pics voisins. Une partie des ions peut choquer des molécules de gaz résiduel et ainsi perdre une partie de son énergie. En conséquence de ce processus, il se produit un étalement de la base des pics qui tend à contribuer au signal des pics voisins. La sensibilité en abondance est classiquement de 10⁻⁶ (à une unité de masse du ²³⁸U), ce qui permet l'analyse des isotopes de l'uranium et du radium, mais pas du thorium. En particulier, lorsque le rapport ²³²Th/²³⁰Th est de l'ordre de 5.10⁻⁶, cela équivaut à une contribution du pic ²³²Th sur celui du ²³⁰Th de 20% lorsque la sensibilité en abondance vaut 10⁻⁶. Un vide extrême permet d'améliorer cette contribution, car il limite le nombre des chocs, mais le système le plus approprié consiste à placer devant le détecteur un filtre en énergie, ou RPQ (Retarding Potential Quadrupole). La sensibilité en abondance est alors améliorée d'un facteur 100 (2.10⁻⁹), soit une contribution du pic ²³²Th sur le pic ²³⁰Th négligeable par rapport à l'incertitude analytique.

4.2. Prélèvement et stockage des échantillons

Les échantillons ont été prélevés au cours de différentes missions effectuées depuis 1993 au Népal, en Inde et au Bengladesh. La filtration frontale des eaux est effectuée sur des membranes de 0.22 ou 0.45 µm, sous pression, sur le lieu de prélèvement ou dans les heures ayant suivi. Une fraction de 1 L, destinée à l'analyse des éléments traces, est stockée dans des bouteilles en polypropylène, initialement lavées en HCl concentré, puis acidifiée à pH 1 avec HNO₃ bidistillé. Une seconde fraction de 250 mL, destinée à l'analyse des espèces majeures, de la conductivité et du carbone organique dissous, est conditionnée dans des bouteilles en polyéthylène mais non acidifiée. Les échantillons solides, matières en suspension et sédiments de berge ou de fond, ont été prélevés au bord ou au milieu de la rivière. Après prélèvement, ils sont séchés pour éviter notamment l'évolution de la matière organique.

4.3. Mesure des concentrations en U, Th et Ra

4.3.1. Dilution isotopique

Les concentrations en U, Th et Ra des sédiments de rivières et matières en suspension ont été déterminées par dilution isotopique. Cette méthode consiste à ajouter à l'échantillon une quantité connue d'une solution appelée "spike", enrichie en un isotope peu abondant à l'état naturel de l'élément à analyser et dont la concentration ainsi que la composition isotopique sont connues avec précision. Les spikes utilisés au cours de la thèse sont des solutions enrichies en ²³⁵U, ²³⁰Th et ²²⁸Ra.

L'équation de la dilution isotopique permettant de calculer l'abondance d'un isotope d'un élément à partir d'un mélange, m, entre le spike, S, et l'échantillon, E, est la suivante :

$$\begin{split} \begin{bmatrix} U \end{bmatrix}_{E} &= \begin{bmatrix} ^{235}U \end{bmatrix}_{S} \cdot \frac{m_{S}}{m_{E}} \cdot \frac{M_{U_{E}}}{M_{235}} \cdot \frac{R_{m} - R_{S}}{1 - R_{m}/R_{E}} \cdot \left(1 + \frac{1}{R_{E}}\right), \\ &\text{où } R = ^{238}U/^{235}U \text{ et } R_{E} = 137.88. \\ \begin{bmatrix} Th \end{bmatrix}_{E} &= \begin{bmatrix} ^{230}Th \end{bmatrix}_{S} \cdot \frac{m_{S}}{m_{E}} \cdot \frac{M_{Th_{E}}}{M_{230}} \cdot \frac{R_{m} - R_{S}}{1 - R_{m}/R_{E}} \cdot \left(1 + \frac{1}{R_{E}}\right) \cong \begin{bmatrix} ^{230}Th \end{bmatrix}_{S} \cdot \frac{m_{S}}{m_{E}} \cdot \frac{M_{232}}{M_{230}} \cdot (R_{m} - R_{S}), \\ &\text{où } R = ^{232}Th/^{230}Th. \\ \begin{bmatrix} ^{226}Ra \end{bmatrix}_{E} &= \begin{bmatrix} ^{228}Ra \end{bmatrix}_{S} \cdot \frac{m_{S}}{m_{E}} \cdot \frac{M_{226}}{M_{228}} \cdot \frac{R_{m} - R_{S}}{1 - R_{m}/R_{E}}, \\ &\text{où } R = ^{226}Ra/^{228}Ra. \end{split}$$

De nombreux facteurs contribuent à l'incertitude sur la concentration : la précision des pesées de l'échantillon et du spike, les concentrations et la pureté du spike, les erreurs statistiques des rapports isotopiques mesurés et, plus particulièrement, la qualité de la dilution.

La courbe suivante (Figure 3), appliquée au cas de l'uranium, représente le facteur d'amplification d'erreur γ en fonction de la fraction molaire de spike. L'erreur sur la mesure est multipliée par γ (Webster, 1960) :



Figure 3 : Courbe d'amplification d'erreur sur la mesure d'une concentration.

Si trop ou pas assez de spike est ajouté à l'échantillon, le rapport mesuré devient trop proche de celui du spike ou de l'échantillon, d'où une amplification de l'erreur maximale. L'erreur sur la mesure devant être multipliée par γ , elle doit donc être minimisée en ajoutant une juste quantité de spike afin que la fraction molaire de spike dans l'échantillon soit optimale. Ce rapport optimal peut être déterminé par la relation suivante :

$$\left(\frac{{}^{a}X}{{}^{b}X}\right)_{m\ell l}^{optimal} \approx \sqrt{\left(\frac{{}^{a}X}{{}^{b}X}\right)_{\ell ch}} \times \left(\frac{{}^{a}X}{{}^{b}X}\right)_{spike}$$

Les calibrations des spikes ont été effectuées en mélangeant les solutions enrichies à une roche dont les concentrations et les compositions isotopiques en U, Th et Ra sont connues avec précision. La roche utilisée est l'AThO, une rhyolite obsidienne d'Islande, dont les caractéristiques U-Th-Ra ont été déterminées par comptage α et spectrométrie de masse (Tableau 1) :

AThO		
	Concentration	Rapport isotopique
Uranium	[U] = 2,24 ppm	²³⁸ U/ ²³⁵ U = 137,88
Thorium	[Th] = 7,48 ppm	²³² Th/ ²³⁰ Th = 182470
Radium	[Ra] = 845 fg/g	²²⁶ Ra/ ²²⁸ Ra = 283

Tableau 1 : Caractéristiques U, Th et Ra de la roche AthO (Peate et al., 2001 ; Rubin et al., 2001).

Les concentrations retenues suite à la calibration des solutions enrichies en ²³⁵U et ²³⁰Th sont les suivantes : $[^{235}U]_{spike} = 0,2242 \pm 0,0005$ (n = 11, 2 σ) et $[^{230}Th]_{spike} = 0,9114 \pm 0,0020$ (n = 11, 2 σ).

Le spike utilisé pour déterminer la concentration en ²²⁶Ra est une solution enrichie en ²²⁸Ra. Ce dernier se désintégrant au cours du temps, le rapport ²²⁶Ra/²²⁸Ra du mélange spikeéchantillon ainsi que la concentration en ²²⁸Ra de la solution enrichie doivent être corrigés en étant recalculés pour le jour de la mesure à partir des valeurs initialement calibrées.

4.3.2. Dissolution des échantillons

Puisque les solutions sont enrichies en ²³⁵U et ²³⁰Th, il n'est pas possible de déterminer simultanément le rapport ²³⁴U/²³⁵U, permettant de recalculer le rapport d'activités (²³⁴U/²³⁸U),

et la concentration en uranium, ni même le rapport ²³²Th/²³⁰Th, permettant de recalculer le rapport d'activités (²³⁰Th/²³²Th) et la concentration en thorium. La mesure des concentrations en U et Th s'est donc effectuée sur une analyse séparée de celle des compositions isotopiques, à partir de 50 mg d'échantillon finement broyé et dissous à chaud par combinaison de HF, HNO₃ et HClO₄. L'analyse des concentrations en Ra suit le même protocole à la seule différence que la quantité de matière requise est approximativement de 100 mg.

4.3.3. Séparation de U, Th et Ra

La procédure de séparation et de purification de l'uranium et du thorium suit un protocole modifié à partir d'une méthode initialement utilisée par Chabaux et al. (1995). Les éléments sont séparés par chromatographie solide-liquide sur résine échangeuse d'ions (Figure 4) :



Figure 4 : Procédure de séparation de l'uranium et du thorium en vue de l'analyse des concentrations par dilution isotopique.

La séparation du Ra suit un protocole développé au laboratoire (Pelt et al., in prep. ; et modifié d'après Chabaux, 1993) :



Figure 5 : Procédure de séparation du radium en vue de l'analyse de la concentration en ²²⁶Ra par dilution isotopique.

4.3.4. Analyse par Spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS)

Les concentrations en uranium et thorium ont été déterminées par TIMS, sur un VG Sector, à partir de la mesure des rapports ²³⁵U/²³⁸U et ²³²Th/²³⁰Th du mélange spikeéchantillon. Ce dernier est déposé sur un mono-filament de Re et dans une matrice de graphite permettant de s'affranchir de la formation d'oxydes.

La reproductibilité des analyses a été vérifiée par analyse de la roche AThO dont les concentrations en U et Th sont connues (Figure 6). La moyenne des mesures effectuées au cours de l'étude est de 2.222 ± 0.005 (n=6, 2σ) pour l'uranium et de 7.449 ± 0.007 ppm (n=6, 2σ) pour le thorium.





Figure 6 : Concentrations en U et Th de la roche AthO déterminées au cours de l'étude.

La concentration en radium est déterminée par TIMS, sur un Thermo-Finnigan Triton, à partir de la mesure du rapport 226 Ra/ 228 Ra du mélange spike-échantillon. L'échantillon est déposé sur un mono-filament de Re, d'épaisseur 50 µm, entre deux couches d'oxyde de tantale Ta₂O₅.

4.4. Mesure des compositions isotopiques

4.4.1. Préparation des échantillons

De la même manière que pour la détermination des concentrations en U, Th et Ra, la mesure des compositions isotopiques en uranium et thorium des échantillons solides requiert une quantité approximative de 100 mg d'échantillon, dissous à chaud à l'aide d'HF, HClO₄ et HNO₃. La mesure des compositions de Sr et de Nd a été réalisée à partir d'une attaque séparée d'approximativement 100 mg d'échantillon.

Dans les eaux, les teneurs en uranium étant généralement très faibles, de l'ordre de 1 ppb, l'analyse de la composition isotopique nécessite de préconcentrer l'uranium. Le procédé le plus commun est la coprécipitation d'un élément avec plusieurs autres par la formation d'un composé, par adsorption, simple inclusion mécanique ou solution solide. Dans le cadre de cette étude, la séparation de l'uranium suit un protocole adapté de Korkisch (1969). L'uranium est coprécipité avec Fe(OH)₃. Pour cela, une solution contenant du fer dissous (0.5 mg de Fe₂O₃ dans 0.5 mL HCl 6N) est ajoutée à environ 200 mL d'échantillon (Chen et al.,

1986). Préalablement acidifiée à pH 1, l'eau a un pH suffisamment acide pour que la totalité du fer soit sous forme dissoute. Le mélange est laissé une nuit pour s'homogénéiser et se stabiliser. La coprécipitation d'hydroxyde de fer et de l'uranium est obtenue par ajout d'ammoniac distillé (5 mL NH₃ 25%), ce qui provoque une augmentation du pH vers un milieu basique (9 à 10). Une fois le précipité obtenu partiellement décanté, la solution est centrifugée. Le surnageant est éliminé et le culot d'oxyde de fer dissous dans 1 mL HCl 6N. La solution obtenue est ensuite évaporée, puis conditionnée, pour être introduite sur une résine échangeuse d'ions pour séparation et purification de l'uranium.

4.4.2. Séparation de U et Th

Dans les eaux, l'uranium est séparé et purifié par chromatographie solide-liquide sur résine échangeuse d'ions (Chabaux et al., 1995) :



Figure 7 : Procédure de séparation de l'uranium des eaux en vue de l'analyse des compositions isotopiques.

Dans les échantillons solides, l'uranium et le thorium sont séparés et purifiés suivant 4 étapes :



Figure 8 : Procédure de séparation de l'uranium et du thorium des échantillons solides en vue de l'analyse des compositions isotopiques.

4.4.3. Séparation du Sr et du Nd

La séparation du Sr et du Nd suit un protocole développé au laboratoire (Lahd Geagea et al., 2006). La fraction contenant le Sr est séparée et purifiée des autres éléments à l'aide de la résine SrSpec, tandis que la fraction contenant le Nd est séparée et purifiée à l'aide des résines TruSpec et LnSpec.

4.4.4. Analyse par Spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS)

Les compositions isotopiques en uranium et thorium ont été déterminées par TIMS, sur un Thermo-Finnigan Triton. L'uranium est déposé selon la même procédure que celle utilisée pour les concentrations. Par contre, dans le cas du thorium, les tests effectués au cours de cette étude ont montré que les meilleurs rendements d'ionisation ont été obtenus par la méthode du double-filament de Re. Le dépôt de l'échantillon, approximativement 300-400 ng de thorium, est effectué en H₃PO₄ et HNO₃ (e.g. Chabaux, 1993 ; Turner et al., 1996). Une émission stable sur 200 cycles requiert que le signal de ²³⁰Th soit au minimum de 100 coups, ce qui correspond à un courant moyen de 5200 mA sur le filament d'ionisation (soit environ 1V de Re) et de 2400 mA sur le filament d'évaporation.

La validité des mesures a été vérifiée par l'analyse de solutions standards, HU1 pour l'uranium et Th105 pour le thorium. L'ensemble des rapports mesurés au cours de l'étude est représenté :



Figure 9 : Rapports 234 U/ 235 U mesurés dans le standard HU1 durant la période de l'étude. La valeur moyenne est de 0.007568 ± 0.000016 (n = 61, 2 σ).



Figure 10 : Rapports 232 Th/ 230 Th mesurés dans le standard Th105 durant la période de l'étude. La valeur moyenne est de 217279 ± 411 (n = 31, 2 σ).

Les compositions isotopiques en strontium et neodyme ont été déterminées par TIMS, sur un VG Sector. Le strontium est déposé sur un mono filament de tungstène, l'activateur utilisé étant Ta₂O₅. Par contre, le neodyme est déposé sur un double filament de Re-Ta, l'activateur utilisé étant H_3PO_4 .

La validité des mesures a été vérifiée par l'analyse de solutions standards, SRM 987 pour le strontium et AMES pour le neodyme. L'ensemble des rapports mesurés au cours de l'étude est représenté :



Figure 11 : Rapports 87 Sr/ 86 Sr mesurées dans le standard SRM 987 durant la période de l'étude. La valeur moyenne est de 0.710266 ± 0.000005 (n = 50, 2 σ).



Figure 12 : Rapports ¹⁴³Nd/¹⁴⁴Nd mesurés dans le standard AMES durant la période de l'étude. La valeur moyenne est de 0.511963 ± 0.000005 (n = 14, 2 σ).

4.5. Blancs de procédure et réactifs

Des mesures de blancs de réactifs et de procédure ont été effectuées au cours de l'étude. Les résultats sont présentés par élément dans les tableaux 2 et 3 :

	U (pg)	Th (pg)
Sédiments de fond ou de berge	2-36	4-51
Matières en suspension	3-19	12-21

	U (pg/mL)	Th (pg/mL)
HNO ₃ bi-distillé	0,22	0,29
HCI bi-distillé	0,06	0,15
Mélange HF - HClO ₄ - HNO ₃	0,31	0,51
Eau ultra-pure	0,18	0,91

Tableau 2 : Blancs de procédure des différents types de phases solides étudiées.

Tableau 3 : Blancs de réactifs.

Les blancs de réactifs obtenus en U et Th sont négligeables par rapport aux concentrations des différents échantillons mesurés au cours de l'étude. En effet, les quantités

les plus faibles présentes dans les phases solides au cours de la séparation sont de 100 ng pour U et 450 ng pour Th, soit une contribution des réactifs largement inférieure à 0.1 %.

4.6. Analyses des éléments majeurs et traces

Les mesures des concentrations en éléments majeurs et traces ont été effectuées par ICP-AES et ICP-MS, au Service d'Analyse des Roches et Minéraux du CRPG ou au CGS. Seules les techniques utilisées à Strasbourg sont présentées.

Dans les eaux filtrées, diverses grandeurs chimiques (pH, conductivité, alcalinité) ainsi que les teneurs en espèces majeures et traces ont été mesurées.

L'alcalinité représente majoritairement les teneurs en espèces carbonatées, CO_3^{2-} et HCO_3^{-} , et, dans une moindre mesure, les anions d'acides faibles et hydroxydes. Elle est déterminée par titration à l'acide sulfurique à l'aide d'un mémotitrateur Mettler DL 40 RC. La valeur retenue est la moyenne de deux mesures, la reproductibilité analytique obtenue étant meilleure que 2%.

La conductivité est mesurée avec un conductimètre Consort K511, dont la calibration est effectuée à partir de solutions standards ayant des valeurs recoupant la gamme de variations des valeurs des échantillons : 84 et 1413 μ S/cm à 25°C. A l'image de l'alcalinité, la valeur retenue est la moyenne de deux mesures, donnée avec une reproductibilité de 10%.

Les teneurs en cations majeurs, Na⁺, K⁺, Ca²⁺ et Mg²⁺ sont déterminées par spectrophotométrie d'absorption atomique à flamme à l'aide d'un Hitachi Z-8200. Une cathode creuse émet un rayonnement photonique. L'absorption d'un rayonnement photonique, émis par une cathode creuse, par l'élément à doser ne concerne qu'une longueur d'onde précise correspondant à une raie d'absorption de cet élément à doser et qui sera sélectionnée à l'aval de la flamme par un monochromateur. Cet élément se trouve au départ dans l'eau, sous forme de combinaisons chimiques. L'eau est ensuite nébulisée, puis envoyée dans un brûleur afin d'obtenir par dissociation thermique un gaz d'atomes libres, ce qui garantit la reproductibilité des résultats. L'élément présent dans la flamme absorbe une partie de l'énergie photonique de départ I₀. On obtient une relation entre la densité optique D = log(I₀/I) (I étant l'énergie non absorbée) et la concentration. L'établissement de cette courbe à partir d'étalons permet d'obtenir par interpolation la concentration de l'élément dans les échantillons. L'appareil utilisé est muni d'un four Zeeman, qui permet une amélioration du

bruit de fond en éliminant les interférences dues à la matrice de l'échantillon. La reproductibilité analytique est de 0,002 mmol/L, et la limite de détection de 0,001 mmol/L.

Les teneurs en anions majeurs, Cl⁻, SO_4^{2-} , NO_3^{-} , PO_4^{-} et F⁻ sont mesurées par chromatographie ionique à l'aide d'un Dionex 4000i équipé d'une colonne de résine anionique AS 11. L'élution des anions s'effectue avec un gradient de NaOH de 0,5 à 38 mmol/L. La reproductibilité analytique pour cette technique est de 0,002 mmol/L et la limite de détection de 0,001 mmol/L.

Les teneurs en H_4SiO_4 et en NH_4^+ sont déterminées par colorimétrie. La complexation de H_4SiO_4 s'effectue avec du molybdate d'ammonium et du fer ferreux, la complexation de NH_4^+ avec du salicylate de chlore. La mesure est effectuée sur un Technicon Autoanalyser II, avec une reproductibilité meilleure que 0,002 mmol/L et une limite de détection de 0,001 mmol/L.

La teneur en carbone organique dissous est déterminée par combustion analytique grâce à un analyseur de carbone Shimadzu TOC 5000A. La valeur retenue est la moyenne de trois mesures. La reproductibilité analytique est de 5% et la limite de détection de 0,1 ppm.

Les teneurs en éléments traces des eaux filtrées, Rb, Sr, Ba et U, ainsi que les teneurs des éléments majeurs et traces des échantillons solides ont été mesurées par ICP-AES et ICP-MS. Le plasma dispose effectivement de caractéristiques propices à la réalisation de ces mesures : (1) le plasma est un milieu inerte chimiquement grâce à l'utilisation d'un gaz rare, l'argon, ce qui empêche la formation de composés intermédiaires stables dans le plasma ; (2) le plasma présente une forte efficacité d'atomisation car le temps de séjour des éléments y est important et la température de la décharge élevée : 7000 à 8000 K ; (3) le plasma permet un dosage multi-élémentaire car l'énergie d'ionisation de l'argon est élevée : 15,76 eV.

L'appareillage est divisé en plusieurs éléments : la source d'ions, l'interface et l'optique ionique, l'analyseur des ions, et le système de détection :



Figure 13 : Schéma représentatif d'un appareillage de type ICP.
Le plasma HF est une excellente source d'ionisation grâce à l'utilisation de l'argon et à son fonctionnement à pression atmosphérique. De plus, le confinement de l'échantillon dans la décharge est un avantage. Effectivement, le fait d'utiliser un champ haute fréquence pour créer le plasma et exciter les ions permet le confinement de l'échantillon dans un canal central. La mise en œuvre est plus délicate qu'en émission où on se contente de collecter les photons émis à l'aide d'un système de collimation. En effet, il est nécessaire de prélever les ions à l'endroit où ils existent, c'est-à-dire au centre de la décharge. Or, celle-ci est à une température elevée de 7000 à 8000K et à la pression atmosphérique, alors qu'un spectromètre de masse doit travailler à température nettement inférieure et à basse pression ($<10^{-3}$ Pa). Il faut donc instaurer une interface entre le plasma et le spectromètre de masse qui doit extraire les ions en quantité suffisante, résister à une température élevée, passer de la pression atmosphérique à une pression réduite, mettre en forme le faisceau d'ions pour qu'il pénètre colinéairement à l'axe d'un filtre quadripolaire et avec le filtrage des énergies cinétiques des ions (rôle de l'optique ionique).

Pour ce faire, un premier cône est employé pour extraire les ions du plasma. Fabriqué en nickel, il est appelé échantillonneur et est en contact avec le plasma. Derrière cette première ouverture, on établit un vide P1 de l'ordre de 10^{-2} Pa avec une pompe primaire. Il se produit alors un jet supersonique (Mach 5 à 7) en aval de l'orifice de diamètre D₀ pratiqué dans le cône. Un second cône, en nickel, prélève le centre du jet supersonique. Ce cône est appelé écorceur. L'extraction du jet s'effectue en plaçant l'écorceur face au jet sur l'axe de l'échantillonneur. Le gaz prélevé est évacué dans une deuxième chambre où l'on maintient une pression P₂<P₁ de l'ordre de 10^{-5} Pa à l'aide d'une pompe turbomoléculaire. A la sortie du second cône, les ions divergent à cause des phénomènes de diffraction. Dans notre cas où est utilisé un filtre quadripolaire, il faut refocaliser le jet, filtrer les ions en énergie et supprimer le passage éventuel de photons. C'est le rôle de l'optique ionique constituée de lentilles électrostatiques, où le vide est maintenu à l'aide d'une pompe turbomoléculaire.

Le filtre quadripolaire est l'analyseur d'ions le plus répandu. Placé sous un vide maintenu par une pompe turbomoléculaire, il est constitué de 4 barres et permet de stabiliser la trajectoire d'un ion de rapport masse sur charge donné au moyen d'une tension continue et d'une tension haute fréquence plus élevée. Ces tensions sont appliquées aux 4 barres 2 par 2, de telle sorte que les barres opposées soient de même signe et les barres adjacentes de signes opposés. Afin de modifier la masse sélectionnée, il suffit de faire varier l'une des deux tensions précitées.

Pour le système de détection, on travaille en mode comptage d'impulsions, c'est-à-dire que chaque ion de masse m qui arrive sur le détecteur provoque une impulsion. Le détecteur utilisé est maintenu sous vide par une pompe turbomoléculaire. Il s'agit d'un détecteur à multiplicateur d'électrons, qui doit répondre à quelques exigences. Il doit présenter des temps morts aussi courts que possible (sinon il peut oublier de compter une impulsion d'un ion pendant le temps mort). De plus, le détecteur doit avoir un gain important pour doser les faibles concentrations. Cependant, si l'élément est trop concentré, le détecteur peut saturer, d'où l'utilisation de l'ICP-AES.

5 Le site étudié : les rivières himalayennes

Ce chapitre décrit le site étudié dans ce travail, à savoir les rivières des bassins du Gange et du Brahmapoutre, l'échantillonnage regroupant les eaux et phases solides des cours principaux ainsi que des principaux affluents. L'histoire de la chaîne himalayenne est présentée en première partie de chapitre, puis les caractéristiques de la haute chaîne en deuxième partie, et enfin celles des bassins du Gange et du Brahmapoutre dans la dernière partie du chapitre.

5.1. Genèse de l'Himalaya

L'Himalaya, dont le nom provient du sanscrit et signifie "demeure de la neige", représente l'un des enregistrements les plus spectaculaires de la tectonique des plaques. Cette chaîne de montagnes s'étend sur plus de 2900 km de long à travers le Pakistan, l'Inde, le Népal, le Tibet et le Bhoutan. Elle résulte de la collision entre deux plaques lithosphériques continentales.

Au cours du Précambrien supérieur et du Paléozoïque, le sous-continent Indien faisait partie du Gondwana et était séparé de l'Eurasie par l'océan de la Paleo-Tethys (Dèzes, 1999 ; Figure 1).



Figure 1 : La Terre au Permien Inférieur (290 Ma). L'Inde fait partie du Gondwana et est bordée au Nord par les terrains du Cimmérien. La reconstruction paléo-géographique provient de Dèzes (1999), d'après Stampfli et Borel (2002), et Patriat et Achache (1984).

Au Carbonifère inférieur, un stage précoce de rifting est observé entre le continent Indien et les terrains Cimmérien. Au Permien inférieur, le rift Cimmérien évolue vers l'océan Neo-Tethys (Dèzes, 1999 ; Figure 2).



Figure 2 : La Terre à la limite Permien – Trias (249 Ma). L'ouverture de la Neo-Tethys sépare les terrains Cimmérien du Gondwana. La reconstruction paléo-géographique provient de Dèzes (1999), d'après Stampfli et Borel (2002), et Patriat et Achache (1984).

A partir de cette période, les terrains Cimmérien se sont éloignés du Gondwana vers le nord, et sont à l'origine de l'Iran, l'Afghanistan et du Tibet actuels.

Au Norien (210 Ma), un épisode majeur de rifting sépare le Gondwana en deux parties. Le continent Indien devient alors partie intégrante du Gondwana Est, avec l'Australie et l'Antarctique. Cependant, la séparation du Gondwana Est et du Gondwana Ouest ne devient effective qu'au Callovien (160-155 Ma). La plaque Indienne se sépare alors de l'Australie et de l'Antarctique au Crétacé inférieur (130-125 Ma), ce qui est à l'origine de l'ouverture de l'océan sud-indien (Dèzes, 1999 ; Figure 3).



Figure 3 : La Terre au Crétacé (100 Ma). L'accrétion des terrains du Cimmérien vers la Laurasie est effective. La croûte océanique de la Neo-Tethys est subductée vers le nord le long de l'arc volcanique du Dras, tandis que l'océan Shigatze s'ouvre. L'Inde est séparée de l'Afrique et du Gondwana Est, tandis que l'océan Indien s'ouvre. La reconstruction paléo-géographique provient de Dèzes (1999), d'après Stampfli et Borel (2002), et Patriat et Achache (1984).

Au Crétacé supérieur (84 Ma), la plaque Indienne commence à remonter vers le nord à la vitesse moyenne de 16 cm/an, parcourant une distance approximative de 6000 km avant que la partie nord de la marge passive Indienne ne rentre en collision avec l'Eurasie à l'Eocène inférieur (48-52 Ma), ce qui provoqua la fermeture définitive de l'océan Tethys (Dèzes, 1999).

Depuis cette période et jusqu'à aujourd'hui, le continent Indien continue de migrer vers le nord à la vitesse de 5 cm/an, indentant l'Eurasie sur une distance approximative de 2400 km et suivant une rotation anti-horaire d'environ 33° (Dèzes, 1999 ; Figure 4).



Figure 4 : Migration de l'Inde (71 Ma – actuel) associée à une rotation anti-horaire. La collision du continent Indien avec l'Eurasie est effective à 55 Ma. La reconstruction paléo-géographique provient de Dèzes (1999), d'après Stampfli et al. (1998), et Patriat et Achache (1984).

Tandis que la majeure partie de la croûte océanique fut simplement subductée sous le bloc Tibétain au cours de la remontée de l'Inde, au moins trois processus sont invoqués pour expliquer ce qu'il est advenu des 2400 km de croûte continentale manquante. Le premier mécanisme est la subduction de la croûte continentale Indienne sous le Tibet. Le second mécanisme, l'extrusion, (Molnar et Tapponier, 1975), se traduit par la compression de la plaque indienne qui éjecte le bloc Indochine sur son trajet. Le troisième et dernier mécanisme suggère qu'une large partie des 2400 km de croûte continentale (environ 1000 km d'après Dewey et al., 1989) a été accomodée par chevauchement et plissement des sédiments de la

marge passive indienne simultanément à la déformation de la croûte tibétaine. Même s'il est plus raisonnable d'argumenter que les trois processus ont pu jouer un rôle, c'est néanmoins le troisième mécanisme qui est retenu comme étant à l'origine de l'important relief topographique de l'Himalaya.

5.2. La chaîne Himalayenne

chaîne himalayenne est structurée suivant différents accidents intra-La lithosphériques (e.g. Burg et Chen, 1984 ; Gansser, 1964 ; Pêcher, 1991) dont les principaux sont : South Tibetan Detachment Zone (STDZ), Main Central Thrust (MCT), Main Boundary Thrust (MBT), Main Frontal Thrust (MFT). Le fonctionnement général des chevauchements s'apparente à une propagation vers le Sud de la localisation de la déformation au sein de la croûte continentale Indienne. De récents profils sismiques montrent en effet une convergence de ces chevauchements pour n'en former plus qu'un, le Main Himalayan Thrust (MHT) au Sud du Tibet et à une profondeur de 40 km (Nelson et al., 1996). Le fonctionnement du STDZ est contemporain à celui du MCT et interprété comme un décollement gravitaire induit par la surrection de la formation HHC (Haut Himalaya Cristallin) le long du MCT (Burg, 1983; Pêcher, 1991 ; Quidelleur et al., 1997). La flèche du MCT est de l'ordre de 200 km (Einsele et al., 1996) tandis que celles du MBT et du MFT sont de plus faible importance (20-40 km, d'après Mugnier et al., 1999; Schelling, 1992). L'initiation du MBT est plus récente (Miocène supérieur) que celle du MCT (Meigs et al., 1995). Celle du MFT est quant à elle supposée encore plus récente (Plio-Pleistocene, Mugnier et al., 1999).

L'ensemble des chevauchements délimitent différentes formations : les séries sédimentaires Téthysiennes (TSS), le Haut Himalaya cristallin ou dalle du Tibet (HHC), le Moyen Pays (LH), les Siwaliks et les sédiments de la plaine du Gange :



Figure 5 : Coupe synthétique de la chaîne himalayenne, d'après la cartographie (France-Lanord et Le Fort, 1988) et les profils sismiques (Nelson et al., 1996). THB : batholite du Trans-Himalaya ; ITS : Ophiolite de la zone Indus-Tsangpo ; TSS : Séries Sédimentaires Téthysiennes ; HHC : formations du Haut Himalaya Cristallin ; LH : formations du Moyen Pays ; Siwaliks : sédiments Néogène du bassin d'avant chaîne. STDZ : détachement sud tibétain ; MHT : chevauchement principal himalayen ; MCT : chevauchement central himalayen ; MBT : chevauchement basal himalayen et MFT : chevauchement frontal himalayen. (1) : sédiments Holocène de la plaine du Gange. (2) : Siwaliks. (3) : croûte indienne. (4) : croûte inférieure litée. (5) : LH. (6) : HHC. (7) : Leucogranite himalayen. (8) : TSS. (9) : zone de la croûte partiellement fondue. (10) THB+ITS. (11) : croûte du bloc de Lhassa.

La description de ces unités est essentiellement fondée sur les observations de Colchen et al. (1986) au Népal Central, ces dernières étant relativement similaires d'est en ouest sur l'ensemble de l'arc himalayen (Le Fort, 1989).

Les TSS sont formées d'une importante couverture sédimentaire allant du Cambrien à l'Eocène inférieur sans pratiquement aucune discontinuité. Une coupe assez complète du Paléozoïque, dressée au Népal Central (Bordet et al., 1971 ; Colchen et al., 1986), met en évidence une forte proportion de carbonates (49%), un faible pourcentage de dolomite parmi

les carbonates (11%), et la présence de schistes noirs. Au Népal Central, les formations Mésozoïques présentent les mêmes caractéristiques (Bordet et al., 1971; Colchen et al., 1986; Liu et Einsele, 1994). Elles sont néanmoins également caractérisées par la présence de pyrites associées aux schistes noirs et de séries volcano-détritiques.

De composition lithologique assez constante, la HHC présente un haut degré métamorphique dont les formations correspondent à des sédiments de type flysch (France-Lanord et al., 1988). Le sommet de ces formations est caractérisé par la zone de mise en place de la ceinture de leucogranite. Les différentes unités observées au Népal Central sont la Formation I, identifiée comme étant la source des leucogranites himalayens (e.g. Deniel et al., 1986 ; France-Lanord et Le Fort, 1988 ; Vidal et al., 1982) et représentée par des gneiss à deux micas, des migmatites, des quartzites et de faibles niveaux de marbres ; la Formation II, correspondant à des orthogneiss oeillés et d'anciens granites cambriens.

La formation LH, faiblement métamorphisée, est essentiellement constituée de terrains sédimentaires à dominante gréso-pélitique. Seules les intrusions plutoniques ou effusives et les minéralisations fournissent des indications chronologiques (e.g. Le Fort, 1989). Les formations couvrent ainsi l'ensemble du Protérozoïque, du Vendien (Sharma et al., 1992) au Protérozoïque inférieur (e.g. Le Fort, 1989). Même si les milieux de dépôt sont variables sur une aussi longue période, les principales formations correspondent à des sédiments détritiques et carbonatés. Les principales caractéristiques lithologiques sont la présence de phosphorites et d'évaporites, la présence de carbonates dolomitisés à stromatolites, la présence de schistes noirs pyriteux et la présence d'amphibolites (e.g. France-Lanord, 1987 ; Pêcher, 1978).

Les formations des Siwaliks correspondent aux dépôts continentaux d'avant-chaîne (De Terra et Teilhard de Chardin, 1936; Pilgrim, 1910). D'âges Miocène et Pliocène, la lithologie des Siwaliks est exclusivement constituée par des sédiments immatures à granulométrie variable (argilites, conglomérats), composés en outre de nombreux débris lithiques et polycristallins (DeCelles et al., 1998; Delcaillau, 1992). Les dépôts sont partiellement cimentés par des carbonates, des excroissances de quartz et localement des argiles. L'ensemble du matériel détritique correspond au recyclage des autres formations himalayennes (TSS, HHC et LH).

5.3. Les bassins du Gange et du Brahmapoutre

La chaîne himalayenne est draînée par deux grands réseaux hydrographiques : le bassin de l'Indus-Sutlej à l'ouest, et le bassin du Gange-Brahmapoutre à l'est qui est l'objet de la présente étude (Figure 6).



Figure 6: (a) Carte de la chaîne Himalayenne, qui s'étend du 72°E au 96°E parallèles, et formant deux arcs, l'un étant orienté nord ouest - sud est à l'ouest, et l'autre ouest sud ouest - est nord est à l'est (d'après Galy, 1999).
(b) Carte du bassin du Gange. (c) Carte du bassin du Brahmapoutre. (d) Carte du bassin de l'Indus. Les abréviations correspondent à : Batholithe du Trans-Himalaya (THB), Séries Sédimentaires Téthysiennes (TSS), Haut Himalaya Cristallin (HHC), Moyen Pays (LH), Faisceau de plis du Pakistan Ouest (WPFB).

5.3.1. Le bassin du Gange

Le bassin du Gange (Figure 7) est subdivisée en plusieurs unités géomorphologiques majeures : (1) l'Himalaya et la terminaison méridionale du plateau du Tibet au nord, dont les caractéristiques ont été décrites précédemment (2) la plaine alluviale, qui représente environ 50% du bassin du Gange (Galy, 1999), et est principalement constituée de sédiments et alluvions quaternaires (3) la bordure Nord du plateau du Deccan et le plateau de Rajmahal au sud.

Le Gange résulte de l'addition progressive de rivières himalayennes, la Yamuna, la Ghaghara, la Gandak, la Sapt Kosi, de rivières draînant le plateau du Deccan, dont la Son, et d'une rivière spécifique de plaine, la Gomti. Le bassin du Gange draîne ainsi l'Inde, le Tibet, le Népal, le Buthan et le Bengladesh.

Selon que la surface du delta du Bengale soit prise en compte ou non, la surface du bassin du Gange varie entre 935000 km² (Grabs et al., 1996) et 1060000 km² (Rao, 1979), ce qui couvre un débit moyen de 459.10⁹ m³/an (GRDC, 1994). Les débits de la Gandak et de la Ghaghara, principaux tributaires himalayens du Gange, sont respectivement de 52200.10⁶ and 94400.10⁶ m³/an (Alford, 1992; Rao, 1979), correspondant à des quantités de matière en suspension transportées respectives de 36.10⁶ t/an et 93.3-259.10⁶ t/an (HPC, 1989; JICA, 1982; Sinha and Friend, 1994).

La Gandak et la Ghaghara résultent de la confluence entre plusieurs rivières népalaises draînant les bassins de la Narayani, à l'origine de la Gandak, et de la Karnali, à l'origine de la Ghaghara. Les surfaces des bassins-versants de la Narayani et de la Karnali sont de 57578 km² et 31753 km². Dans cette partie himalayenne, qui ne représente que 16.6% du bassin du Gange, il existe un fort contraste climatique entre le Tibet et le reste du bassin himalayen (e.g. in France-Lanord et al., 2003). Les précipitations de mousson sont en effet localisées sur la partie sud de la chaîne et dans la plaine (1 à 4 m/an), tandis que le climat tibétain est froid et aride avec des précipitations de l'ordre de 0.2-0.5 m/an (Adhikary et al., 1992).

5.3.2. Le bassin du Brahmapoutre

La description du bassin du Brahmapoutre (Figure 8) est essentiellement basée sur les récents travaux focalisés sur les phases dissoutes et particulaires du Brahmapoutre et de ses affluents (Singh et France-Lanord, 2002; Singh et al., 2003; Garzanti et al., 2004; Singh et al., 2005; Singh et al., 2006).

Le Brahmapoutre prend sa source dans l'Himalaya de l'ouest du Tibet, à l'est du Mont Kailash, à une altitude approximative de 5200 m. Il poursuit son cours le long de la zone de suture de l'Indus-Tsangpo pendant 1200 km. Dans cette partie du bassin où il est appelé Yarlung Tsangpo ou Tsangpo, les principales lithologies comprennent les batholithes gabbroïque à granodioritique du Transhimalaya, des turbidites et des ophiolites de la zone de suture de l'Indus-Tsangpo (Singh et al., 2003; Xu et al., 1985; Debon et al., 1986). Il a également été fait état de la présence d'évaporites, de dépôts de sels et de sources chaudes dans cette région (Pascoe, 1963; Hu et al., 1982; Pande et al., 1994; Hochstein and Regenauer-Lieb, 1998; Craw et al., 2005).

Dans la partie est du Transhimalaya, près de Namche Barwa, la course du Tsangpo change de direction et suit une orientation sud pour pénétrer en Arunachal Pradesh (Inde) sous le nom de Siang ou Dihang. La pente est forte, environ 30 m/km, ce qui cause un flux rapide et turbulent et de l'érosion physique intense (Singh et France-Lanord, 2002). Les principales lithologies draînées sont les gneiss métamorphiques de la plaque Indienne et les plutons calcoalcalins du Transhimalaya eux-mêmes entourés de quartzites, phyllites et marbres (Burg et al., 1998). De discrètes lentilles de métabasites et de serpentines sont reportées dans ces zones, ce qui indique la continuation de la zone de suture de l'Indus-Tsangpo dans la section est (Burg et al., 1998).

Juste après Pasighat, à l'entrée de la plaine d'Assam, la Siang reçoit la contribution de la Dibang et de la Lohit qui draînent les Monts Mishmi, essentiellement composés de complexes calco-alcalins diorite-tonalite-granodiorite et de roches métavolcaniques tholéitiques (Sharma et al., 1991; Kumar, 1997).

Dans la plaine d'Assam, la Siang prend le nom de Brahmapoutre et suit une direction sud sud-ouest. Dans cette partie du bassin, les tributaires himalayens sont la Subansiri, la Ranga Nadi, la Jia Bhareli, la Puthi Mari, la Manas et la Tipkai. Ils fournissent une large partie de matériels sédimentaires dans le Brahmapoutre. La géologie de l'Himalaya de l'est est similaire de celle des sections central et ouest qui forment le bassin du Gange : Haut Himalaya, Bas Himalaya et Siwaliks (Thakur, 1986 ; Gansser, 1964). Les affluents himalayens drainent ainsi les séries du Haut Himalaya, composées de granites, gneiss, schistes et marbres, les séries du Bas Himalaya qui sont constituées de quartzites, de calcaires, de roches sédimentaires formées de dolomie détritique concrétionnée ou déposée par précipitation, de shales, de granites, de gneiss et schistes, et les Siwaliks caractérisées par la présence de turbidites et de molasses Neogene. Les affluents de la partie sud de la plaine d'Assam ne fournissent qu'une quantité limitée de matériel, des sédiments pélagiques recouverts de turbidites et d'ophiolites, qui n'influence pas le budget géochimique du Brahmapoutre.

Une fois à Dhubri, le Brahmapoutre s'oriente vers le sud au Bangladesh, où il prend le nom de Jamuna, et termine sa course dans la Baie du Bengale après un trajet de près de 2800 km.

La surface totale draînée par le système du Brahmapoutre de sa source jusqu'à son embouchure est d'environ 630000 km², dont environ 220000 km² au Tibet, 200000 km² dans

les plaines de l'Assam et du Bangladesh, et 120000 km² en Himalaya. Les tributaires est, la Lohit et la Dibang, ont une surface draînée approximative de 50000 km2 (Rao, 1979; Goswami, 1985). Dans la plaine d'Assam, le Brahmapoutre peut atteindre 20 km de large et 35 m de fond.



Figure 7 : Carte représentative du bassin du Gange. Les abréviations correspondent à : Main Central Thrust (MCT), Main Frontal Thrust (MFT).



Figure 8 : Carte représentative du bassin du Brahmapoutre.

6 Résultats

Ce chapitre présente les résultats obtenus par l'étude combinée de différents traceurs, les éléments majeurs et traces, les isotopes du Sr et du Nd, ainsi que les nucléides des séries de l'uranium. Ces résultats sont présentés sous la forme d'articles scientifiques.

La première partie présente les résultats obtenus à partir de l'étude des sédiments de la Kali Gandaki, une rivière de haute chaîne, et des principaux affluents du Gange, la Gandak et la Ghaghara. Cette partie est présentée sous la forme d'un article, dont la version révisée a été soumise pour publication à *Earth and Planetary Science Letters*. Une version résumée focalisée sur les affluents du Gange est présentée en annexe du manuscrit sous la forme d'un article publié dans *Journal of Geochemical Exploration*.

La seconde partie présente les résultats obtenus à partir de l'analyse des sédiments du Gange, ainsi que du Brahmapoutre et de ses affluents.

La troisième et dernière partie décrit l'étude menée sur les matières en suspension de la Gandak, de la Ghaghara, et du Gange.

6.1. Time-scales of sedimentary transfer and weathering processes from U-series nuclides: Clues from the Himalayan rivers

Dans le but de déterminer les constantes de temps d'érosion et de transfert sédimentaire en Himalaya, les déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th ont été analysés dans les sédiments de berge et de fond regulièrement prélevés le long de la Kali Gandaki, une des principales rivières népalaises, et le long de la Gandak et la Ghaghara, deux des principaux affluents de plaine du Gange.

Les rapports d'activité du thorium et les rapports élémentaires U/Th des sédiments des affluents du Gange diminuent d'amont en aval. Cette diminution régulière est liée à la maturation des sédiments par altération au cours de leur transfert dans la plaine. Les séries de l'uranium permettent de calculer un temps de transfert des sédiments dans la plaine alluviale du Gange, depuis la zone de Piedmont jusqu'à la confluence avec le Gange, de l'ordre de 100 ka pour les deux rivières.

Les sédiments de la Kali Gandaki présentent une diminution similaire des rapports isotopiques du Th et U/Th. Dans ce cas, cette variation est expliquée par le mélange entre deux sources ayant des rapports U/Th similaires mais ayant subi un fractionnement U-Th différent. Pour un tel scénarion, l'interprétation des données obtenues à partir des séries de l'uranium conduit à proposer des constantes de temps d'altération des terrains himalayens de quelques centaines de milliers d'années. Ces résultats impliquent que les roches himalayennes sont soumises à l'altération durant une longue période avant leur érosion et transfert dans les rivières. En combinant les âges moyens d'altération obtenus avec les taux d'érosion, il est possible d'estimer à 120-160 mètres la hauteur moyenne de roche altérée dans la vallée de la Kali Gandaki.

Enfin, la similitude des signatures U-Sr observée dans les phases dissoutes (< 0.1-0.2 µm) et particulaires de la Kali Gandaki et de la Gandak suggère que l'uranium dissous serait une phase colloïdale ayant la même origine que les sédiments. Cette observation questionne l'utilisation des déséquilibres des séries de l'uranium dans ces rivières pour calculer des budgets d'altération à l'échelle des bassins-versants concernés, et de contraindre si l'érosion agit à l'état stationnaire ou non.

Time-scales of sedimentary transfer and weathering processes from Useries nuclides : Clues from the Himalayan rivers

M. Granet¹, F. Chabaux^{1,*}, P. Stille¹, C. France-Lanord², E. Pelt¹

¹Centre de Géochimie de la Surface, CGS-EOST UMR 7517, 1 rue Blessig, 67084 Strasbourg Cedex, France ²Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques, 15 rue Notre Dame des Pauvres, 54501 Vandoeuvre lès Nancy, France

> revised version 27/04/2007 6505 words Abstract : 303 words Appendix : 650 words

*Corresponding author. E-mail: <u>fchabaux@illite.u-strasbg.fr</u>. Tel: +33 3 90 24 04 06. Fax: +33 3 90 24 04 02

Abstract

In order to define time-scales of erosion and sedimentary transfer in the Himalaya, ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria have been analysed in river bank sediments and in bedloads collected along the Kali Gandaki river, one of the main Nepalese rivers, and in the Ghaghara and Gandak rivers, two major plain tributaries of the Ganges.

The Th activity ratios and U/Th ratios in river sediments of the two Ganges tributaries constantly decrease from upstream to downstream. This is related to the maturation of sediments by weathering during their transfer to the plain. The U-series data allow to calculate a transfer time for the sediments in the alluvial Gangetic plain from the chain front to the confluence with the Ganges of about 100 ky for both rivers.

The Kali Gandaki river sediment data highlight a decrease of both the Th isotopic and U/Th ratios which is explained by a mixing between two sources with similar U/Th ratios but having suffered a different U-Th fractionation history. Interpretation of the U-series data in the frame of this scenario gives long time-scales of weathering of several 100's ky for the Himalayan terranes. The results imply that Himalayan bedrocks are submitted to a long *in situ* stage of weathering before their erosion and transfer into the rivers. Combining the mean weathering ages with erosion rates allows to estimate that the thickness of the weathered rock pile in the Kali Gandaki valley is about 120-160 meters.

In addition, occurrence of similar U-Sr signatures in dissolved (i.e. $< 0.1-0.2 \mu m$) and sediment phases of the Kali Gandaki and Gandak rivers suggests that dissolved uranium could be a colloidal phase of sedimentary origin. This could question the use of U-series disequilibria in these rivers to calculate weathering budgets in the related watersheds, and to assess whether the erosion is working at steady-state or not. Keywords: weathering, sedimentary transfer, ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria, time-scale, Himalaya

1. INTRODUCTION

Time scales of weathering processes and sediment transfer in catchments and alluvial plains are key-parameters to be determined for a precise evaluation of their stage in geochemical surface cycles and for a correct quantification of the effects of the external factors forcing weathering and transfer, i.e. climate, tectonic events or human activities.

Such processes can be assessed with help of U-series nuclides because of the dual property of these nuclides 1) to be fractionated during physical denudation and chemical weathering processes and 2) to have radioactive decay periods of the same order of magnitude as the time-scales of these processes (see review in Chabaux et al., 2003b for more details). Several studies on weathering profiles (Dequincey et al., 2002; Chabaux et al., 2003a), oceanic sediments (DePaolo et al., 2006) and river solid and dissolved loads (e.g. Dosseto et al., 2006a; see also ref in Chabaux et al., 2003b) illustrated the interest of U-series to constrain the time-scale of weathering and/or erosion processes.

Here we use the methodology of U-series disequilibrium for recovering (a) the time scale of erosion and weathering processes in the Himalaya and (b) the transfer time of sediments in the Ganges alluvial plain, one of the world's largest areas of erosion and alluvial sediment transfer. The approach used here is different from the previous studies focusing on the analysis of U-series in rivers' watershed outlets, as it relies on the analysis of U-series in bank river and bedload sediments collected along the streams. The transport of this kind of sediments is indeed important as it accounts for about 50% of the total erosion flux which transits in the Ganges basin from Himalaya to Bengladesh (Galy and France-Lanord, 2001). The study of suspended materials and their transport dynamics will be discussed elsewhere.

2. GEOLOGICAL AND SEDIMENTOLOGICAL CONTEXT

This study is focused on sediment and water samples from two main tributaries of the Ganges, the Gandak and the Ghaghara rivers (Fig. 1a), and one of the main Himalayan river, the Kali Gandaki (Fig. 1b), which has its source in southern part of the Tibetan plateau and drains the different Himalayan structural units before flowing in the Indian plain.

The Kali Gandaki river has its source in the Tethian Sedimentary Series (TSS) that consists in a sequence of mainly Palaeozoic and Mesozoic marine sediments deposited in the Tethian ocean (e.g. Richards et al., 2005) and has been intruded by the Dolpo-Mugu and the Mustang leucogranites (for details see Le Fort and France-Lanord, 1995). The stream drains then the two main structural units of the Himalaya chain: the High Himalaya Crystalline Series (HHCS), and the Lesser Himalaya Series (LHS). The HHCS is the principal formation of the high range and constitutes the metamorphic core of the Himalaya (details in Richards et al., 2005). The LHS is composed of variably metamorphosed Precambrian sediments (e.g., France-Lanord, 1987; Pêcher, 1978). In the LHS, the Kali Gandaki river joins the Trisuli river to form the Narayani river which flows through the Siwaliks, and then on the Indian plain formations, where it is called the Gandak river. According to Lavé and Avouac (2000, 2001), the Siwaliks is an active foreland basin which trapped a part of high relief eroded materials.

The watershed of the Narayani river is marked by sharp internal climatic differences (e.g. France-Lanord et al., 2003). The monsoonal precipitations are concentrated in the southern part of the chain and in the plain (1 to 4 m/year), whereas the Tibetan climate is cold and arid with precipitations of 0.2-0.5 m/year (Adhikary et al., 1992). Therefore, due to the strong climatic differences, the TSS contribute less to both the dissolved and solid loads of the rivers than the southern part of the chain, even if they can influence the concentration of some element such as uranium (Riotte, 2001; Chabaux et al., 2001).

The sediments of the Himalayan rivers mostly originate from three main processes: (1) incision of Late Pleistocene to Holocene terraces formed by fluvial and debris-flow materials (Fort, 1995; Attal and Lavé, 2006); (2) sediment transfer by landslides from hillslopes to fluvial network (Burbank et al., 1996; Hovius et al., 1997); (3) erosion of the last glacial maximum moraines. Even if the initial material transferred to the Himalayan rivers can be marked by a large size heterogeneity with pluri-metrical blocks, the river sediments themselves are characterized by a significant modification of their size, either due to a selective transport or due to block grinding during transfer from the high range to the plain (Galy, 1999).

The Gandak and Ghaghara rivers, the corresponding plain rivers of the Narayani and Karnali rivers, respectively, are Ganges tributaries, classically referenced as moutain-fed rivers (e.g., Vikrant Jain and R.Sinha, 2003). Such tributaries are generally multi-channel, braided systems characterized by high discharges (52 10⁹ and 95 10⁹ m³/year at their outlet, respectively; Alford, 1992; Rao, 1979) and sediment loads (82 10⁶ t/year of suspended materials for the Gandak river before its confluence with the Ganges; Sinha and Friend, 1994). These rivers formed large depositional areas of sediments in the plain, which are called megafans, and would have been formed during the middle Late Pleistocene (Singh and Ghosh, 1994; Indra Bir Singh, 1996), with recent geomorphologic surfaces younger than 13500 years (e.g. Mohindra et al., 1992; Srivastava et al., 1994; Kumar et al., 1996; Singh et al., 1998). These plain rivers are affected by rapid and frequent channel avulsions, corresponding to the transfer of river flow out of an established channel into a new flow pathway elsewhere in the floodplain. As a consequence of this phenomenon, the Gandak river shifted about 80 km eastward during the last 5000 years (Mohindra et al., 1992).

3. SAMPLING LOCATION AND ANALYTICAL PROCEDURES

Sediments and water samples used for this study were collected during several field trips in India and Nepal (1993-2004). Sampling locations are reported on Fig. 1a and 1b, and dates of collection are given in Tables 1 and 2. At each sampling site, both water and sediment samples, i.e., bedload sediments and/or bank river sediments, were collected. Sediment and water samples were generally collected from the river bank. Bedload sediments were sampled in a low regime part of the river, whereas river bank sediments have been collected at several places of a same sampling location in order to integrate a total surface of about a few m² (Galy, 1999). In this study we systematically analyzed for each sample location, sediment and the corresponding water sample collected at the same date. The present study is mainly concerned with the analysis of U and Sr isotope ratios in river waters and the analysis of ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibrium in the sediments. The U-Sr data of the Himalayan river samples discussed before (Chabaux et al., 2001) were completed by additional U-Sr analyses of the Indian river samples. Similarly, the Sr - Nd data of Nepalese river sediments.

Water samples were filtered on site using 0.2 or 0.1 μ m Nylon filters and split into different aliquots for chemical and isotopic analyses. Aliquots for trace element and for Sr and U isotopes analyses were acidified with distilled HNO₃ to pH 1. U and Sr fraction were extracted from major elements by iron hydroxide coprecipitation. This technique classically used for U isotope analysis in water samples (e.g., Chabaux et al., 2001), permits to recover about 50% of the dissolved Sr fractions. Given the U-Sr concentration of the studied samples and the water volumes used, this method permits the recovering of about 1 μ g of Sr and 50ng of U for the Sr and U isotopic analyses. The U fraction is purified by ion exchange chromatography classicaly used at CGS (e.g., Riotte and Chabaux, 1999). The Sr fraction is collected at the first stage of the former procedure and purified by chromatographic method using Sr-Spec Eichrom resin (Lahd Geagea et al., 2007). For U, Th and Sr isotope analyses of sediments, approximately 100 mg of crushed powder is digested following a procedure involving three acids (HF, HNO₃, HClO₄). Separation and purification of U and Th used a conventional anion-exchange chromatography (e.g., Dequincey et al., 2002). Sr fraction is collected during the first stage of the U-Th separation procedure, and purified with the Sr-spec Eichrom method. For Nd isotopic analyses of sediments, 50 mg of powdered material is digested following the same procedure as described above. For the separation and purification of Nd a chromatographic technique has been used combining TRU-Spec and Ln Spec Eichrom resin (Lahd Geagea et al., 2007).

The Sr and Nd isotope ratios were measured on a VG Sector mass spectrometer, using a Ta-Re double filament assembly for Nd, and a W single filament technique for Sr (Steinmann and Stille, 1997). The blank at the time of analyses were less than 1 ng for Sr and less than 0.5 ng for Nd. The regular analyses of the SRM987 and La Jolla standards during the measuring period yielded ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr = 0.710268 \pm 9 (n=10, 2 σ error), and ¹⁴³Nd/¹⁴⁴Nd = 0.511855 \pm 3 (n=5, 2 σ error), respectively. The latter values compare with published data by less than 0.1 ‰ (e.g. Lahd Geagea et al., 2007). The U and Th isotope ratios were analyzed by Thermal Ionisation Mass spectrometry on a Thermo-Finnigan Triton using the single Re filament procedure with graphite for U, and a double Re-Re filament assembly for Th. (²³⁴U/²³⁸U) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios were calculated from the measurements of ²³⁴U/²³⁵U and ²³²Th/²³⁰Th isotope ratios (see Tab.1 and 2). The reliability and reproducibility of ²³⁴U/²³⁵U and ²³²Th/²³⁰Th ratio measurements were controlled by analyzing the HU1 standard solution and AThO rock standard respectively, which gave for the data acquisition period, ²³⁴U/²³⁵U = 0.007566 \pm 10 (n=13, 2 σ error), ²³²Th/²³⁰Th = 182735 \pm 560 (n=5, 2 σ error). These values are totally consistent with published data (e.g., Chabaux et al., 2001; Rubin, 2001; Sigmarsson et al. 1998). The reproducibility of Th isotopic analyses, better than 0.5%, has also been checked by analysing the BRGM Th105 standard (Innocent et al., 2004) which gives 232 Th/ 230 Th = 216751 ± 860 (n=10, 2 σ error). The measurements have not been corrected for mass fractionation as it is small compared to the analytical reproducibility (0.5 to 1%). The mean values for total blanks are lower than 20 pg for U and Th, and remain insignificant compared to the amounts used for analysis. U and Th concentrations in sediments were measured by isotope dilution on the VG Sector mass spectrometer with ≈1 % uncertainty at the 2 σ level. 50 mg of crushed powder was spiked with a solution enriched in both 230 Th and 235 U, and calibrated with the AThO rock standard. Replicate analyses of several samples yield a U and Th concentration reproducibility better than one percent (Tab. 2).

4. RESULTS

U and Sr isotope ratios of river waters are reported in Table 1, and the Sr and Nd isotope ratios as well as the ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria in river sediments in Table 2. Major and trace element concentrations are discussed in details elsewhere (Galy et al., 1999a,b; Chabaux et al., 2001; France-Lanord et al., 2003 for waters; Galy, 1999; Galy et al., subm., for sediments). Only some general aspects shall be given below.

4.1. Water samples

The chemical composition of the Kali Gandaki waters (filtered at 0.1-0.2 µm) is quite different in the TSS and LH-HHC formations with, for instance, higher TDS (mg/L) and Na-K concentrations in the TSS than in the LH-HHC formations. In addition, on the LH-HHC formations, chemical composition of the Kali Gandaki river shows a downstream variation, with for instance a decrease of the TDS and an increase of the Ca/Na and Mg/Na ratios. Compared to the Kali Gandaki waters on the LH-HHC formations, the plain river waters (Gandak and Ghaghara) have quite close chemical characteristics - similar TDS and similar range of variations for the cation ratios like Ca/Na or Mg/Na - but without any clear systematic downstream variation.

Sr isotopic ratios appear to be quite different for chain and plain rivers. In the chain, Sr isotope ratios shift from 0.719 to 0.758 (Galy et al., 1999b; Chabaux et al., 2001). This variation have been attributed to mixing between water fluxes from the main lithologies of the watershed, with local modifications attributed to the input of thermal hot springs (Evans et al., 2001). By contrast water samples from plain rivers, especially for Gandak, are characterized

by a quite limited range of variations in Sr isotope ratios (Tab.1), which is consistent with previous observations (Krishnaswami et al., 1992).

U activity ratios of the dissolved load of Kali Gandaki rivers are marked by regular downstream increase from 1.00 to 1.06 between the high range and the Siwaliks (Chabaux et al., 2001), which can be interpreted in terms of mixing between dissolved uranium fluxes from TSS and LH-HHC formations. The U isotope data obtained here for the plain rivers are in the range of values obtained for the rivers of the LH-HHC formations and compare well with previously published data (Sarin et al., 1990). These data underline the rather unusual U disequilibrium of streams flowing on the TSS formation, which are indeed the only ones to have U activity ratios <1 (Chabaux et al., 2001).

4.2. Sediment samples

In the Himalayan Chain, from the high range to the plain, the Kali Gandaki sediments display systematic downstream mineralogical and chemical variations. For instance, the Chemical Index of Alteration (CIA = $Al_2O_3/(Al_2O_3+CaO+Na_2O+K_2O)$) as defined by Nesbitt and Young, 1982) increases downstream (calculated from data published in Galy, 1999). In addition, chlorite, vermiculite, as well as kaolinite concentrations increase due to weathering of biotite and feldspar, respectively (Galy, 1999). Sr and Nd isotope ratios exhibit also quite important variations in the chain, classically explained in terms of mixing of materials from the different lithologies of the basin (Galy, 1999). The sediments of the Kali Gandaki river also exhibit a regular downstream evolution of their U-Th systematics from the MCT to the Siwaliks. As shown in the isochron diagram, ($^{238}U/^{232}Th$) and ($^{230}Th/^{232}Th$) activity ratios regularly decrease from 0.634 to 0.566 and from 0.698 to 0.612 (± 1%), respectively (Fig. 2).

 $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ activity ratios increase downstream, from 1.010 to 1.032 (± 0.005), whereas $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ activity ratios remain constant around a value of about 1.1 (Tab. 2).

As for the Kali Gandaki sediments, the sediments from the Indian plain rivers show also a mineralogical and chemical downstream evolution, from the outlet of the highland to the confluence with the Ganges, with for example a downstream decrease of Na/Al ratio (Fig. 3). On the other hand, the Sr-Nd isotopic data obtained for the sediments display a rather small range of variation compared to the values of the sediments from the high range. The ε_{Nd} values vary between -18.8 and -17.7 in the Ghaghara river sediments and between -17.3 and -18.5 in the Gandak river ones. The ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ratios in the Gandak river samples range from 0.73864 to 0.73116, whereas they decrease downstream in the Ghaghara river with values comprised between 0.76925 and 0.74219 (Table 2). However no systematic co-variation can be inferred between Sr and Nd isotopic data for both the Gandak and Ghaghara rivers as the ε_{Nd} values tend to decrease in the Ghaghara river sediments and, by contrast, to increase in the Gandak river ones.

In contrast to the Sr and Nd isotope ratios, the U-Th data of the samples from the Gandak river sediments show quite large variations of their (238 U/ 232 Th) and (230 Th/ 232 Th) activity ratios which regularly decrease in downstream direction, from 0.512 to 0.422 and from 0.543 to 0.507 (± 1%), respectively (Fig. 2). This trend is also observed in the case of the Ghaghara river where the upstream sample is nearly at equilibrium, whereas the downstream sediments display (238 U/ 232 Th) values ranging from 0.695 to 0.413 and (230 Th/ 232 Th) activity ratios from 0.692 to 0.598 (± 1%) (Fig. 2). In addition, all the samples have (234 U/ 238 U) activity ratios at equilibrium or >1 reaching 1.015 (± 0.005).

In the northern part of the high range, namely the Tethian Sedimentary Series (TSS), the U-series disequilibria of the Kali Gandaki sediments display a wide range of variation but without regular downstream evolution as observed in the chain or in the plain: (²³⁰Th/²³⁸U)

activity ratios range between 0.89 and 1.07, ($^{238}U/^{232}Th$) between 0.372 and 0.655 (± 1%) and ($^{230}Th/^{232}Th$) between 0.381 and 0.585 (± 1%). As for chain and plain river sediments, those of the TSS are also marked by ($^{234}U/^{238}U$) activity ratios >1. The main difference, in this case, is that the U activity ratio of the dissolved phase of the corresponding water samples is <1, whereas in the other structural units it is >1.

5. DISCUSSION

One of the most important results of the present study is the regular downstream variation of the ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th systematics in the plain as well as in the chain river sediments (Fig. 2). The temporal interpretation inferred from these variations requires first to constrain precisely the processes controlling the U-Th fractionation and then to apply a realistic model accounting for the behaviour of U-Th nuclides during these processes. This is the aim of the following section.

5.1. Origin and time implications of U-series disequilibria in river sediments

a. The case of the Ghaghara and Gandak rivers

Theoretically, the downstream decrease of (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios of the plain river sediments (Fig. 2) could be interpreted by simple mixing between a Himalayan sedimentary component and plain sediments, that are progressively added to the river sediments during their transfer in the plain. This latter flux would therefore have Sr and Nd isotopic ratios similar to those of the Himalayan flux but much lower (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios. However, the U-Th data obtained for the Gomti river sediments, a river that only flows in the plain, clearly preclude such a scenario. The (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios of the Gomti sediments (0.574 and 0.763, 0.604 and 0.828, respectively) are indeed much higher than those required for the theoretical plain end-member (Fig. 2). The variations of the (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios of the gomti sediments for the theoretical plain end-member (Fig. 2). The variations of the (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios of the gomti sediments for the theoretical plain end-member (Fig. 2). The variations of the (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios in the plain sediments have therefore to be explained by an increase of U-Th fractionations of sediments during their transfer in the plain. The correlation observed for the Ghaghara and Gandak

sediment samples between the U/Th ratio and an index of weathering such as Na/Al (Fig. 3a,b) certainly reinforce this interpretation.

The above interpretation implies that for the Ghaghara and Gandak rivers the Himalayan sedimentary fluxes are not modified by the input of a new and specific plain sedimentary flux but modified by alteration processes during their transfer and/or storage in the plain. This explains the rather small variation of the Sr-Nd isotope ratios of the Gandak sediment samples (Table 2). The Sr-Nd isotopic variation of the Ghaghara sediment samples would be in this case explained by the occurrence of mineralogical sorting or preferential dissolution. Further investigations are needed to give more details on the processes which control the Sr-Nd isotopic variations of the sediments.

As a consequence, the variation of U-series disequilibria in the Ghaghara and Gandak sediments along the stream permits to constrain the transfer time of sediments in the alluvial plain, from the outlet of the Himalayan range, marked by NAG 12 for the Ghaghara and MO 217 for the Gandak, to the confluence with the Ganges (NAG 48 corresponds to a sampling location which is intermediate between the high range and the plain). Recovering such time information relies nevertheless on the use of a realistic model for the behaviour of U and Th isotopes during rock weathering. From the previous studies using the U-series disequilibria in rivers to constrain the time scale of weathering at the scale of the watershed (e.g. Vigier et al., 2001, 2005; Dosseto et al., 2006a; b, c), several modelling approaches can be proposed. The simplest one would be a discrete U-leaching model, involving an instantaneous U leaching followed by a closed-system evolution. Application of such a scenario to the Gandak and the Ghaghara data would require at least a two-step evolution and will lead to a rather long transit time (Fig. 4a,b). Alternatively the variation of the activity ratios can be explained and modelled by continuous leaching of uranium during weathering and transfer in the river as proposed for the Mac Kenzie basin (Vigier et al., 2001). Fitting the U-Th data in the isochron

diagram with such a model yields transfer times of about 100 ky for both rivers (Chabaux et al., 2006a). If it is assumed, similar to the former studies, that the bedrock is at secular equilibrium before weathering, then these two models imply the occurrence of classical ²³⁴U- 238 U fractionations during rock weathering, that is (234 U/ 238 U) activity ratios >1 in the dissolved weathering flux and <1 in the residual phases. However, both Gandak and Ghaghara sediments display values ≥ 1 and, therefore, plot in the forbidden zone of the (²³⁴U/²³⁸U) vs (²³⁰Th/²³⁸U) diagram as defined earlier (see for instance in Chabaux et al., 2003a). Such "anomalous" values are, actually, not unusual for river sediments (see compilation in Chabaux et al., 2006b) and were often explained by uranium uptake from surface waters or exchange with dissolved U (Plater et al., 1992; Vigier et al., 2005; Dosseto et al., 2006a; Andersson et al., 1998). In the case of the Gandak and Ghaghara rivers, however, uptake in the river is not very probable because U adsorption is generally controlled by clay minerals as well as Fe-, Mn-, and Ti-oxides, that are not the main mineralogical components of the surrounding sediments. This conclusion is certainly reinforced by the lack of any correlation between sediment (²³⁴U/²³⁸U) ratios and (Fe₂O₃+MnO+TiO₂)/SiO₂ ratios (not shown). Since $(^{234}U/^{238}U)$ activity ratios >1 are often observed in soils and weathering profiles (e.g. compilation in Chabaux et al., 2003b), it is proposed that the U activity ratios of the Ghaghara and Gandak river sediments are not acquired during their transport into the river by chemical interactions between sediments and surficial waters but linked with pedogenetic processes during their storage in the plain.

In recent U-series disequilibria studies on African lateritic profiles it has been proposed to interpret the U-Th data of such surface formations by a model of simultaneous U gain and loss (Dequincey et al., 2002; Chabaux et al., 2003a and equations therein). The application of such a model to the variation of the U-Th data of the Ghaghara and Gandak sediments and its resolution by a Monte-Carlo simulation approach (see Appendix for
presentation of the method), yield long sedimentary transfer times in the plain from the Piedmont to the Ganges: 80 and 100 ky (Fig. 4a, b), with uranium leaching coefficients of $\approx 2.0 \times 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ for the Gandak and $\approx 7.3 \times 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ for the Ghaghara. The transfer times deduced above are similar to values previously deduced for sediments from the Gandak and Ghaghara rivers (about 100 ky) using the uranium continuous leaching model (Chabaux et al., 2006a) which is due to the fact that these sediments display low ²³⁴U-excess.

b. The case of the Kali Gandaki river in the LH-HHC

As for the Gandak and Ghaghara sediments, the U-Th systematics of the Kali Gandaki sediments display a regular downstream evolution (Fig. 2). But in this case, these variations are accompagnied by a variation of the Sr and Nd isotope ratios (Table 2). The latter can be explained by an increasing input of LH-HHC materials to the river sediments during their transfer from the MCT, which is the transition between TSS and HHC, and where a large part of erosion is localised (Galy, 1999). In ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr vs X/Sr (X=Rb, Ba, Si) diagrams, the Kali Gandaki sediment samples define a mixing trend where the low radiogenic Sr end-member with low X/Sr ratio results from alteration/erosion of MCT zone terranes, and the radiogenic Sr end-member with high X/Sr ratio from alteration of LH-HHC Precambrien metasediments (Fig.5 for the Ba/Sr ratio). The fact that the X/Sr elemental ratios of the "LH-HHC" endmember are different for the water and sediment trends, and of both sides of the bedrock values (Fig. 5), is certainly the result of weathering induced fractionation during weathering profile and soil formation in LH-HHC and/or during transport of sediment in the basin. On the contrary, since no significant differences appear between the X/Sr elemental ratios of the "MCT zone" end-member for the water and sediment trends, it is proposed that in this strong erosive zone, the chemical weathering induced fractionation is not or little significant. This sediment mixing phenomenon between sedimentary end-members marked by different degrees of weathering also explains some of the mineralogical or geochemical features of the Kali Gandaki sediments such as the increase of the sediments CIA along the Kali Gandaki or the increase of the kaolinite content of sediments (in Galy, 1999).

This scenario has therefore been used to recover time information from the trends of the Kali Gandaki sediment data points in the U-Th isochron diagram (Fig. 2). This in turn imposes to estimate realistic (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios for the material added progressively in downstream direction. As already done by France-Lanord and Derry (1997) for some of the major element ratios, the U/Th ratio of the different lithologies outcropping in the Kali Gandaki basin can be estimated from an in house data base including the important types of fresh rocks in the watershed. This compilation emphasizes the large range of U/Th ratios for each lithology, but also that the mean U/Th ratios are very similar for HHC and LH units (≈ 0.7). They are as high as or higher than U/Th ratios of the upstream endmember. Millimetric pebbles, which are considered to be fragments of unweathered rocks, have also been collected at 9 different locations of the Kali Gandaki basin in the LH-HHC units in order to constrain the chemical characteristics of the unweathered bedrock (Galy and France-Lanord, unpublished data). The mean U/Th ratio is 0.69 ± 0.05 (n = 5000-10000 pebbles) and similar to the former estimation. The immediate and important consequence of this observation is that the upstream and downstream bedrocks, from which the sediments carried by the Kali Gandaki originate, have the same U/Th ratios. Therefore the ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th downstream variations observed in the Kali Gandaki sediments can only be explained by a downstream increase of the mean U-Th fractionation and of the mean weathering duration of the bedrocks before their erosion. The quantification of these fractionations and of these times of weathering depends on the model used to account for the U behaviour during weathering. In a first simple approach we could consider an instantaneous U-Th fractionation

at the basis of the weathering profile followed by a closed-system evolution without U-Th fractionation (Fig. 6a). In this case, a mean weathering age of 180 ky can be proposed for the bedrocks of the Kali Gandaki watershed at its outlet. A certainly more realistic model can be proposed to account for sediments with $(^{234}U/^{238}U) > 1$: the uranium gain and loss weathering model that is usually applied to weathering profiles (see section 5.1 and Appendix).

Application of such a model to the Kali Gandaki watersheds permits the determination of the mean uranium leaching value and the mean weathering time for each of the watersheds respectively delimited by the different sediments of the Kali Gandaki. The results show that the weathering times are short in the "MCT zone", that is in zone of high uplift rates and high erosion rates (4 mm/y, Lavé and Avouac, 2001), and much longer in the "LH zone" where uplift rates are lower (< 1 mm/y, Lavé and Avouac, 2001) : it is therefore found a mean age of \approx 30 ky from the upstream sediment (position 4 on the map), 60 ky from sediment in position 5, \approx 200 ky at the sampling site 6, and 350 ky at the outlet of Kali Gandaki watershed (sediment in position 7). The associated uranium leaching coefficients display a coherent opposite evolution with values which decrease with the increasing age of weathering of the sediments: $5.2 \times 10^{-6} \text{ y}^{-1}$, $2.8 \times 10^{-6} \text{ y}^{-1}$, $1.3 \times 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ and $8.4 \times 10^{-7} \text{ y}^{-1}$ respectively (Fig. 6b).

5.2. Signification of the time-scales of weathering and transfer

The time-scales obtained from the ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria data in plain and chain river sediments have different geological significations.

The case of the Gandak and Ghaghara sediments certainly highlights a still seldom used application of the ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria in river sediments for constraining time-scales of sediment transfer in alluvial plains. Indeed, in alluvial plains where sediments are only transferred and not affected by inputs of new materials coming from the weathering of

fresh rocks, the intensity of ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria in river sediments will only depend on two parameters: (a) the duration of the transfer including the time spent in soils and in the river, and (b) the nature and the intensity of U-Th fractionations occurring in sediments during their transfer in alluvial plains. As illustrated in the case of the Gandak and Ghaghara rivers, recovering a time information from the variation of U-Th disequilibria in such sediments requires the use of realistic models accounting for the U-Th fractionation of sediments during their transfers in the plain. For the Gandak and Ghaghara rivers, we propose that the main U-Th fractionation process is connected with the sediment weathering during their transit and storage in the plain. Such an approach leads to long time-scales of about 100 ky for their transfer from the Himalayan chain to the confluence with the Ganges. This is certainly consistent with the fact that both the Gandak and Ghaghara rivers are submitted to important avulsion phenomena which involve alternation of periods of storage and maturation of sediments on the plain with periods of sediment transfer by rivers. However, it must be noted that the geochemical variations of major elements in sediments of the Ganges river systems imply that in addition to the weathering processes, the mineralogical and chemical compositions of the sediments are affected during their transport by mineralogical sorting (Galy et al., subm.). Such a process would modify the U-Th systematics of the sediments only if the minerals submitted to mineralogical sorting have U/Th ratios very different from those of the sediments. The role of such a phenomenon on sediment U-series disequilibria is difficult to constrain on the basis of our results only. However, it has recently been shown that ²³⁰Th excess (over ²³⁸U) tend to decrease with decreasing particle size in the case of the Murray-Darling river system (Dosseto et al., 2006b). If such a result were also applicable to the Himalayan system, then such a process of mineral sorting should result in decreasing ²³⁰Th excess along the stream, which is clearly not observed for the Gandak and Ghaghara river sediments. Therefore based on the present data set, we consider weathering of Ghaghara

and Gandak river sediments during their transfer in the alluvial plain to be the main process causing U-Th fractionation. A sediment transfer time of about 100ka in this alluvial plain can be therefore calculated which is much longer than the short time-scales (< 17 ky) constrained by using U-series for sedimentary transfer of suspended matter in the Amazon plain (Dosseto et al., 2006c). This difference could be due to the use of different kind of materials: coarse river bank sediments in the present study, fine suspended materials in the Amazon plain case. This hypothesis is *a priori* supported by the observation that (230 Th/ 232 Th) ratios measured in bed sediments of the Amazon plain are systematically different to those determined in suspended matter (Dosseto et al., 2006a). Our preliminary results on the Ganges plain suspended materials confirm this observation and show that values of (230 Th/ 232 Th) ratios in sediments are strongly size-dependant (Granet, 2007).

In contrast to the plain river sediments, the time-scales deduced from the analyses of ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria in sediments of the Kali Gandaki river do not only cover the transfer time of sediments in the chain but integrate also the time spent by the sediments in weathering profiles of the bedrocks before their erosion. The Himalayan rivers are indeed regularly fed by inputs of new material coming from the weathering of fresh rocks. In this case the ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria in river sediments record the whole of the U-Th fractionations affecting the sediments in the watershed since the beginning of weathering. The approach used for recovering time information from U-Th disequilibria in river sediments is similar to the approach proposed by Vigier et al. (2001) for the MacKenzie basin. For the Himalayan rivers, the transfer of sediment in rivers is thought to be "fast", that is lower than 50 ky on the basis of charcoal datings and chronological reconstitutions on Holocene and Pleistocene fluvial terraces (in Lavé and Avouac, 2001). The long time we obtained from U-Th disequilibria in the sediments of the Kali Gandaki at the outlet of the LH, implies therefore that bedrock in the watershed suffered a long weathering period before erosion. Moreover, the

results show that the time-scales of weathering, which increase downstream, are correlated with erosion rates of the drained areas (in Lavé and Avouac, 2001). The durations of weathering would be higher in the downstream part of the Kali Gandaki (LH), where the erosion rate is lower (< 1 mm/y) than in the Main Central Thrust area (MCT), where the erosion rate is very high (4 mm/y). By linking erosion rates (V) (in Lavé and Avouac, 2001) with the mean values of weathering times (t) constrained from U-disequilibria, the thickness of the rock pile (L) weathered before erosion can be estimated (L = Vt). With such a simple approach, the determined heights range between 120-160 meters whatever the location in the basin and the erosion rates of the terranes. This would imply that the thickness of rocks penetrated by the percolating waters is almost similar at the scale of the chain. This study thus illustrates that in addition to a temporal characterization of the weathering in the watershed.

5.3. Origin of the dissolved U in the Himalayan rivers

As proposed in the pioneering works on U-series nuclides in rivers (Osmond and Cowart, 1976; Moreira-Nordemann, 1977; 1980; Plater et al., 1988; 1994) the comparison of radioactive disequilibria in dissolved and particle loads of rivers can be used to establish weathering budgets at the scale of watersheds. In the case of the Kali Gandaki our results clearly show that such an application based on dissolved phases alone (i.e., filtered at 0.2 or 0.1 μ m) is not possible. Indeed if dissolved fractions and river sediments were supposed to represent the chemical weathering flux and the mechanical erosion flux from Himalaya, then these two phases should be geochemically complementary. Thus, (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios in sediments and dissolved loads of the Kali Gandaki river should exhibit (²³⁴U/²³⁸U) <1 and >1 respectively, which is clearly not the case. On the contrary, both phases show the same

covariation of the 87 Sr/ 86 Sr - (234 U/ 238 U) ratios (Fig. 7), with a complete superimposition during monsoon period, i.e. the period of high delivery of sediments to the rivers. Since adsorption of U from dissolved load of the river onto sediments cannot explain the similitude of the (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios in dissolved and sedimentary phases of the rivers (see section 5.1), it is proposed that the U carried by the dissolved fraction of the Kali Gandaki river has the same origin like the river sediments, and represents colloidal uranium consisting of microparticles. Such an origin questions the use of (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios for the calculation of the weathering budget at the watershed scale, since such calculation requires to determine the U activity ratios of the 'true' dissolved flux (e.g., Chabaux et al., 2003). In the case of the Kali Gandaki river, the dissolved fraction filtered at 0.1-0.2 µm does not correspond to the $(^{234}U/^{238}U)$ ratio of the dissolved phase representing the chemical weathering flux, but the U ratio of the sediment. This observation could therefore suggest that differences between weathering budgets obtained from U-series nuclides and from other physical and/or chemical approaches (i.e. Vigier et al., 2001) do not necessarily prove that erosion at a watershed scale is not operating in steady-state. Such a conclusion is only conceivable if the real U-series disequilibrium of the weathering flux has correctly been determined which requires a precise investigation of the nature of U-series nuclides carried by the rivers.

As for the Kali Gandaki river, the Gandak river water and sediment samples display the same variations in the U - Sr diagram (not shown) and could also point to a colloidal origin of the U from the < 0.2 μ m water fraction. Only, the Ghaghara river samples display different (²³⁴U/²³⁸U) disequilibria in the dissolved and particular phases. If this difference does not result from a uranium flux originating from local groundwater inputs (i.e., Durand et al., 2005), the Ghaghara would be the only river in this study for which U-series could be used to establish weathering mass balances. However, this would require the determination of Useries disequilibria in suspended matter, which is presently not available.

6. CONCLUSION

The variations of ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria in Himalayan river sediments along the stream allow to provide estimations of the time-scales of sediment transfer in alluvial plains. This approach requires a realistic model describing the behaviours of U and Th during their transfer. Key parameters of the model can be constrained by comparing the U-Th systematic with chemical or mineralogical characteristics of the sediments. In the case of the Gandak and Ghaghara rivers, two main tributaries of the Ganges, maturation of the sediments by weathering during their transfer on the plain is the main process inducing U-Th fractionation. Using a pedogenetic model developed for tropical soils, a long sediment transfer time from the Piedmont zone to the Ganges of about 100 ky can be deduced. Study of U-series disequilibria in sediments of the Himalayan rivers, which flow in areas marked by intense chemical and physical weathering processes, allow to constrain the mean age of weathering in the Himalayan chain. As in the plain, this approach is based on the use of a realistic model describing behaviours of U and Th during erosion and weathering of rocks, but requires also a precise estimation of the U/Th value of the substratum before erosion. This value has been constrained on the basis of a compilation of major and trace elements measured on main Himalayan rocks. Application of a model describing mobility of U during weathering processes yield long weathering time-scales. These values imply that before erosion, the rocks are weathered in situ during a long time and on a thickness of about 120-160 meters.

These results illustrate the strong potential of U-series nuclides to give temporal constrains on weathering and sedimentary transfer processes; they also suggest that their use for weathering budget calculations requires a precise knowledge of the nature of uranium in the rivers dissolved and solid load. In the Kali Gandaki and the Gandak rivers, the U-Sr data

show that the dissolved U (i.e. filtered at 0.2 or 0.1 μ m) carried by these rivers is a colloidal U having the same origin like the U in the sediment.

Acknowledgments

We acknowledge R. Boutin for the ICP analyses, and B. Kiefel and T. Perrone for their technical assistance during isotope analyses. V. Galy is thanked for the many discussions on Himalayan erosion, and for his help in the selection and preparation of the sediment samples. We are also grateful to J. Lavé, D. Lemarchand, S. Rihs and MC Pierret for their discussion and comments during the progress of this work. The manuscript benefited from constructive reviews by A. Dosseto, J. Gaillardet and B. Bourdon. This work was supported by the INSU-CNRS program "Reliefs de la Terre" and by the Alsace region Program REALISE.

REFERENCES

Adhikary, S. P., Shresta, P. B., Acharya L. M., 1992. Precipitation records of Nepal 1987-1990. H. M. G. of Nepal Ministry of Science and Technology, Department of Hydrology and Meteorology, Kathmandu, Nepal, 253.

Akovali, Y. A., 1994. Nuclear Data Sheets for A = 234. Nuclear Data Sheets 71, 18.

Alford D., 1992. Hydrological aspects of the Himalayan region. ICIMOD Occasional paper.

Andersson, P. S., Porcelli, D., Wasserburg, G. J., Ingri, J., 1998. Particle transport of ²³⁴U-²³⁸U in the Kalix river and in the Baltic Sea. Geochim. Cosmochim. Acta 62, 385-392.

Attal, M., Lavé, J., 2006. Changes of bedload characteristics along the Marsyandi river (central Nepal): Implications for understanding hillslope sediment supply, sediment load evolution along fluvial networks, and denudation in active orogenic belts, in Willett, S.D., Hovius, N., Brandon, M.T., and Fisher, D., eds., Tectonics, Climate, and Landscape Evolution: Geological Society of America Special Paper 398, 143-171.

Burbank, D. W., Leland, J., Fielding, E., Anderson, R. S., Brozovic, N., Reid, M. R., Duncan,C., 1996. Bedrock incision, rock uplift, and threshold hillslopes in the northwestern Himalaya,Nature 379, 505-510.

Chabaux, F., Riotte, J., Clauer, N., France-Lanord, C., 2001. Isotopic tracing of the dissolved U fluxes of Himalayan rivers : implications for present and past U budgets of the Ganges-Brahmaputra system. Geochim. Cosmochim. Acta 65, 3201-3217.

Chabaux, F., Dequincey, O., Lévèque, J.-J., Leprun, J.-C., Clauer, N., Riotte, J., Paquet, H., 2003a. Tracing and dating recent chemical transfers in weathering profiles by trace-element geochemistry and ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria: the example of the Kaya lateritic toposequence (Burkina-Faso). C. R. Geosciences 335, 1219-1231.

Chabaux, F., Riotte, J., Dequincey, O., 2003b. U-Th-Ra fractionation during weathering and river transport, in : B. Bourdon, G. M. Henderson, C.C. Lundstrom, S.P. Turner (Eds.), Uranium-series Geochemistry, Reviews in Mineralogy and Geochemistry, vol. 52, Geochemical Society-Mineralogical Society of America, Washington, 533-576.

Chabaux, F., Granet, M., Pelt, E., France-Lanord, C., Galy, V., 2006a. ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria and timescale of sedimentary transfers in rivers: Clues from the Gangetic plain rivers. J. of Geochem. Expl. 88, 373-375.

Chabaux, F., Bourdon, B., Riotte, J., 2006b. U-series Geochemistry in weathering profiles, River waters and lakes, in : S. Krishnaswami and J.K. Cochran (Eds.), U/Th Series Radionuclides in Aquatic Systems, Elsevier, in press.

Cheng, H., Edwards, R. L., Hoff, J., Gallup, C. D., Richards, D. A., Asmerom, Y., 2000. The half-lives of uranium-234 and thorium-230. Chem. Geol. 169, 17-33.

DePaolo, D.J., Maher, K., Christensen, J.N., McManus, J., 2006. Sediment transport time measured with U-series isotopes: Results from ODP North Atlantic drift site 984. Earth Planet. Sci. Lett. 248, 394-410.

Dequincey, O., Chabaux, F., Clauer, N., Sigmarsson, O., Liewig, N., Leprun, J. C., 2002. Chemical mobilizations in laterites : evidence from trace elements and ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria. Geochim. Cosmochim. Acta 66, 1197-1210.

Dosseto, A., Bourdon, B., Gaillardet, J., Allègre, C.J., Filizola, N., 2006a. Time scale and conditions of weathering under tropical climate : Study of the Amazon basin with U-series. Geochim. Cosmochim. Acta 70, 71-89.

Dosseto, A., Turner, S.P., Douglas, G.B., 2006b. Uranium-series isotopes in colloids and suspended sediments: Timescale for sediment production and transport in the Murray-Darling River system. Earth Planet. Sci. Lett. 246, 418-431.

Dosseto, A., Bourdon, B., Gaillardet, J., Maurice-Bourgoin, L., Allègre, C.J., 2006c. Weathering and transport of sediments in the Bolivian Andes: Time constraints from uranium-series isotopes. Earth Planet. Sci. Lett. 248, 759-771.

Durand, S., Chabaux, F., Rihs, S., Duringer, P., Elsass, P., 2005. U isotope ratios as tracers of groundwaters inputs into surface waters: Example of the Upper Rhine hydrosystem. Chem. Geol. 220, 1-19.

Evans, M.J., Derry, L.A., Anderson, S.P., France-Lanord, C., 2001. Hydrothermal source of radiogenic Sr to Himalayan rivers. Geology 29, 803-806.

Fort, M., Peulvast, J. P., 1995. Catastrophic mass-movements and morphogenesis in the peri-Tibetan ranges: examples from West Kunlun, East Pamir and Ladakh. In: Slaymaker, O. (Ed.), Steepland Geomorphology, 171-198.

France-Lanord, C., 1987. Chevauchement, métamorphisme et magmatisme en Himalaya du Népal central. Etude isotopique H, C, O. Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy.

France-Lanord, C., Derry, L. A., 1997. Organic carbon burial forcing of the carbon cycle from Himalayan erosion. Nature 390, 65-67.

France-Lanord, C., Evans, M., Hurtrez, J.-E., Riotte, J., 2003. Annual dissolved fluxes from Central Nepal rivers : budget of chemical erosion in the Himalayas. C. R. Geosciences 335, 1131-1140.

Galy, A., 1999. Etude géochimique de l'érosion actuelle de la chaîne himalayenne, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine.

Galy, A., France-Lanord, C., 1999a. Weathering processes in the Ganges-Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget. Chem. Geol. 159, 31-60.

Galy, A., France-Lanord, C., Derry, L. A., 1999b. The strontium isotopic budget of Himalayan rivers in Nepal and Bangladesh. Geochim. Cosmochim. Acta 63, 1905-1925.

121

Galy, A., France-Lanord, C., 2001. Higher erosion rates in the Himalaya : Geochemical constraints on riverine fluxes. Geology 29, 23-26.

Galy, V., France-Lanord, C., Galy, A., Gaillardet, J., Gajurel, A., Lartiges, B., Rahman, M., Singh, S.K., submitted. Anthropogenic increase of soil erosion in the Ganga floodplain.

Granet, M., 2007. Constantes de temps des processus d'érosion et d'altération dans le système himalayen : Approche géochimique élémentaire et isotopique par les séries de l'Uranium. Thèse de l'Université Louis Pasteur.

Hovius, N., Starck, C. P., Allen, P. A., 1997. Sediment flux from a mountain belt derived by landslide mapping. Geology 25, 231-234.

Innocent, C., Bollinger, C., Chabaux, F., Claude, C., Durand, N., Le Faouder, A., Kiefel, B., Pomies, C., 2004. Intercomparison of new Th isotopic standards : Preliminary results. In 14th Goldschmidt Conference, Copenhagen, Danemark.

Jain, V., Sinha, R., 2003. River systems in the Gangetic plains and their comparison with the Siwaliks: A review. Curr. Sci. 84, 1025-1033.

Krishnaswami, S., Trivedi, J.R., Ramesh, R., Sharma, K.K., 1992. Sr isotopes and Rb in the Ganges-Brahmaputra river system: Weathering in the Himalaya, fluxes to the bay of Bengal and contributions to the evolution of oceanic ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr. Earth Planet. Sci. Lett. 109, 243-253.

Kumar, S., Parkash, B., Manchanda, M. L., Singhvi, A. K., Srivastava, P., 1996. Holocene landform and soil evolution of the Western Gangetic Plains: implications of neotectonics and climate. Z. Geomorph. N. F. 103, 283-812.

Lahd Geagea, M., Stille, P., Millet, M., Perrone, Th., 2007. REE characteristics and Pb, Sr and Nd isotopic compositions of steel plant emissions. Sciences of the Total Environment 373, 404-419.

Latham, A. G., Schwarcz, H. P., 1987. On the possibility of determining rates of removal of uranium from crystalline rocks using U-series disequilibria-1a: U-leach model, and its applicability to whole-rock data. Appl. Geochem. 2, 55-65.

Lavé, J., Avouac, J. P., 2000. Active folding of Fluvial Terraces across the Siwaliks Hills (Himalayas of Central Nepal). J. Geophys. Res. 105, 5735-5770.

Lavé, J., Avouac, J. P., 2001. Fluvial incision and tectonic uplift across the Himalayas of central Nepal. J. Geophys. Res. B: Solid Earth and Planets 106, 26561-26591.

Le Fort, P., France-Lanord, C., 1995. Granites from Mustang and surrounding regions. J. of Nepal Geological Society 11 (Special Issue), 53-57.

Mathieu, D., Bernat, M., Nahon, D., 1995. Short-lived U and Th isotope distribution in a tropical laterite derived from Granite (Pitinga river basin, Amazonia, Brazil) : application to assessment of weathering rate. Earth Planet. Sci. Lett. 136, 703-714.

Mohindra, R., Parkash, B., 1992. Historical geomorphology and pedology of the Gandak megafan, Middle Gangetic Plains, India. Earth Surf. Proc. and Landforms 17, 643-662.

Moreira-Nordemann, L.M., 1977. Etude de la vitesse d'altération des roches au moyen de l'uranium utilisé comme traceur naturel. Application à deux bassins du Nord Est du Brésil. Thèse, Université Paris VI, France.

Moreira-Nordemann, L.M., 1980. Use of ²³⁴U/²³⁸U disequilibrium in measuring chemical weathering rate of rocks. Geochim. Cosmochim. Acta 44, 103-108.

Nesbitt, H. W., Young, G. M., 1982. Early proterozoic climates and plate motions inferred from major element chemistry of lutites. Nature 299, 715-717.

Osmond, J.K., Cowart, J.B., 1976. The theory and uses of natural uranium isotopic variations in hydrology. Atomic Energy Rev. 14, 621-679.

Pêcher, A., 1978. Déformation et métamorphisme associés à une zone de cisaillement. Exemple du grand chevauchement central himalayen (MCT), transversale des Annapurnas et du Manaslu, Népal. Université Scientifique et Médicale, Grenoble.

Plater, A. J., Dugdale, R. E., Ivanovich, M., 1988. The application of uranium series disequilibrium concepts to sediment yield determination. Earth Surf. Process. Landforms 13, 171-182.

Plater, A. J., Ivanovich, M., Dugdale, R. E., 1992. Uranium series disequilibrium in river sediments and waters : the significance of anomalous activity ratios. Appl. Geochem. 7, 101-110.

Plater, A. J., Dugdale, R. E., Ivanovich, M., 1994. Sediment yield determination using uranium-series radionuclides : the case of the Wash and Fenland drainage basin, eastern England. Geomorphology 11, 41-56.

Rao, K. L., 1979. India's water wealth. Orient Longman limited.

Richards, A., Argles, T., Harris, N., Parrish, R., Ahmad, T., Darbyshire, F., Draganits, E., 2005. Himalayan architecture constrained by isotopic tracers from clastic sediments. Earth Planet. Sci. Lett. 236, 773-796.

Riotte, J., Chabaux, F., 1999. (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios in freshwaters as tracers of hydrological processes: the Strengbach watershed (Vosges, France). Geochim. Cosmochim. Acta 63, 1263-1275.

Riotte, J., 2001. Etude du déséquilibre ²³⁴U-²³⁸U dans les eaux de rivière. Cas du Strengbach, du Mont Cameroun et de l'Himalaya. Thèse de l'Université Louis Pasteur.

Rubin, K.H., 2001. Analysis of ²³²Th/²³⁰Th in volcanic rocks: a comparison of thermal ionization mass spectrometry and other methodologies. Chem. Geol. 175, 723-750.

Sarin, M. M., Krishnaswami, S., Somayajulu, B. L. K., Moore, W. S., 1990. Chemistry of uranium, thorium, and radium isotopes in the Ganga-Brahmaputra river system: Weathering processes and fluxes to the Bay of Bengal. Geochim. Cosmochim. Acta 54, 1387-1396.

Sigmarsson, O., Carn, S., Carracedo, J.C., 1998. Systematics of U-series nuclides in primitive lavas from the 1730-36 eruption on Lanzarote, Canary Islands, and implications for the role of garnet pyroxenites during oceanic basalt formations. Earth Planet. Sci. Lett. 162, 137-151.

Singh, I. B., Ghosh, D. K., 1994. Geomorphology and neotectonic features of Indo-Gangetic Plain. In: India: Geomorphological diversity, (Eds. Dikshit, K.R., Kale, V.S. and Kaul, M.N.), Rawat Publications, Jaipur, 270-286.

Singh, I. B., 1996. Geological evolution of Ganga plain - an overview, J. of the Palaeontological Society of India 41, 99-137.

Singh, L. P., Parkash, B., Singhvi, A. K., 1998. Evolution of the Lower Gangetic Plain landforms and soils in West Bengal, India. Catena 33, 75-104.

Sinha, R., Friend, P. F., 1994. River systems and their sediment flux, Indo-Gangetic plains, Northern Bihar, India. Sedimentology 41, 825-845.

Srivastava, P., Parkash, B. P., Sehgal, J. L., Kumar, S., 1994. Role of neotectonics and climate in development of the Holocene geomorphology and soils of the Gangetic plains between Ramganga and Rapti rivers. Sedim. Geol. 94, 129-151. Steinmann, M., Stille, P., 1997. Rare earth element behavior and Pb, Sr, Nd isotope systematics in a heavy metal contaminated soil. Appl. Geochem. 12, 607-623.

Vigier, N., Bourdon, B., Turner, S., Allègre, C. J., 2001. Erosion timescales derived from Udecay series measurements in rivers. Earth Planet. Sci. Lett. 193, 549-563.

Vigier, N., Bourdon, B., Lewin, E., Dupré, B., Turner, S., Chakrapani, G.J., van Calsteren, P., Allègre, C.J., 2005. Mobility of U-series nuclides during basalt weathering: An example from the Deccan Traps (India). Chem. Geol. 219, 69-91.

TABLE CAPTION

Table 1. U-Sr concentrations and isotopic compositions in the dissolved load

 $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ activity ratios are calculated from measured $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ ratios assuming that $^{238}\text{U}/^{235}\text{U} = 137.88$ and using the following decay constants: $\lambda_{238} = 1.551.10^{-10} \text{ y}^{-1}$ and $\lambda_{234} = 2.823.10^{-6} \text{ y}^{-1}$ (Akovali, 1994; Cheng et al., 2000). Analytical uncertainties are 0.005 and always lower than 15.10⁻⁶ for ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) activity ratio and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ isotope ratio respectively (2σ error). (1) Sr isotopic composition from Galy et al. (1999b). (2) Sr isotopic composition from Chabaux et al. (2001). (3) U activity ratios from Chabaux et al. (2001). (4) U and Sr concentrations from Chabaux et al. (2001).

Table 2. Sr-Nd isotopic compositions and U-series data for the sediments of Himalayan rivers

The ε_{Nd} CHUR values are chondrite normalized ¹⁴³Nd/¹⁴⁴Nd ratios and calculated using : ε_{Nd} = 10000 * ((¹⁴³Nd/¹⁴⁴Nd – 0.512638)/0.512638). (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios are determined from ²³⁴U/²³⁵U ratios (see Tab. 1 for details). (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios are calculated from measured ²³²Th/²³⁰Th ratios using λ_{232} = 4.948.10⁻¹¹ y⁻¹ and λ_{230} = 9.158.10⁻⁶ y⁻¹ (Cheng et al., 2000). Analytical uncertainties on the ε_{Nd} , ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr, (²³⁴U/²³⁸U) and (²³⁰Th/²³²Th) ratios are 0.1, 15.10⁻⁶, 0.005 and 1% respectively (2 σ error), and yield 1% and 2 % for the calculated (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³⁸U) activity ratios respectively. Na/Al ratios are also given. (1) Sr isotopic composition from Galy (1999). (2) Nd isotopic composition from Galy (1999).

Table 1

Sample	Location	Position	Sampling	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	(²³⁴ U/ ²³⁸ U)	U	Sr	
number		on the map	date			ppb	ppb	
KALI GANDAKI								
LO 49 ^(1,3,4)	up Lo Manthang	1	20/05/1993	0.72323	0.980	19	372	
NAG 21 (2,3,4)	Kagbeni	2	25/11/1995	0.71663	0.982	4.3	474	
NAG 34 (2,3,4)	Koketani	3	02/12/1995	0.71685	0.983	3.4	490	
NAG 43 (2,3,4)	Tatopani	4	05/12/1995	0.71898	0.999	12	326	
MO 517 (2,3,4)	Tatopani (monsoon)	4	27/07/1998	0.71838	1.001	4.5	274	
NAG 45 (2,3,4)	Baglung	5	06/12/1995	0.73126	1.003	5.3	169	
MO 308 (2,3,4)	Baglung (monsoon)	5	07/07/1998	0.73352	1.015	2.2	93	
LO 310 ^(1,3,4)	Ramdi	6	10/06/1993	0.73497	1.010	3.6	115	
MO 314 (2,3,4)	Ramdi (monsoon)	6	08/07/1998	0.75804	1.061	1.0	52	
LO 306 (1,3,4)	Kot	7	09/06/1993	0.74772	1.027	3.3	90	
NARAYANI								
NAG 49 (1,3,4)	Narayan Ghat	8	11/12/1995	0.73638	1.013	2.7	110	
GANDAK								
MO 215 (2,3,4)	Tiger Top's	9	19/05/1997	0.73205	1.003	3.8	115	
BR 334	Barauli	10	11/05/2004	0.73372	1.008	3.1	116	
BR 115	Hajipur	11	07/08/2001	0.73780	1.021	2.4	94	
GHAGHARA								
NAG 11 (1,3,4)	Kotillaghat	12	17/11/1995	0.72993	1.063	1.2	48	
BR 354	Ayodia	13	15/05/2004	0.73282	1.028	2.0	140	
BR 342	Revelganj	15	12/05/2004	0.73127	1.043	1.8	138	
KOSI								
BR 101		16	05/08/2001	0.74659	1.003	2.0	34	
GOMTI								
BR 135		17	09/08/2001	0.72581	1.010	6.3	124	

(1) Sr isotopic composition from Galy et al. (1999).

(2) Sr isotopic composition from Chabaux et al. (2001).

(3) U activity ratios from Chabaux et al. (2001).

(4) U and Sr concentration from Chabaux et al. (2001).

Table 2

Sample	Location	Position	Sampling	Туре	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	٤ _{Nd}	U	Th	(²³⁴ U/ ²³⁸ U)	(²³⁰ Th/ ²³² Th)	(²³⁸ U/ ²³² Th)	(²³⁰ Th/ ²³⁸ U)	Na/Al
number		on the map	date				ppm	ppm					ppm/ppm
KALI GANDAKI													
LO 50 ^(1,2)	up Lo Manthang	1	20/05/1993	Bank	0.74398	-12.0	6.75	38.5	1.018	0.568	0.532	1.07	0.36
NAG 20 ^(1,2)	Kagbeni	2	25/11/1995	Bank	0.71459	-13.9	1.36	6.30	1.030	0.585	0.655	0.89	0.23
NAG 33 (1,2)	Koketani	3	02/12/1995	Bank	0.71520	-17.2	1.77	14.4	1.025	0.381	0.372	1.02	0.17
NAG 42 (2)	Tatopani	4	05/12/1995	Bank	0.72406	-16.8	2.48	11.9	1.010	0.698	0.634	1.10	0.21
NAG 44 (1,2)	Baglung	5	06/12/1995	Bank	0.73047	-20.2	2.33	11.7	1.013	0.671	0.602	1.11	0.23
LO 311 ^(1,2)	Ramdi	6	10/06/1993	Bank	0.73741	-19.0	2.41	12.8	1.023	0.632	0.571	1.11	0.20
LO 307 ^(1,2)	Kot	7	09/06/1993	Bank	0.74491	-18.5	2.82	15.1	1.032	0.612	0.566	1.08	0.13
NARAYANI													
NAG 48 (1,2)	Narayan Ghat	8	11/12/1995	Bank	0.73864	-18.8	2.76	16.3	1.008	0.543	0.512	1.06	0.21
GANDAK													
MO 217	Tiger Top's	9	19/05/1997	Bank	0.73116	-18.5	3.95	23.9	1.000	0.592	0.501	1.18	0.25
BR 336	Barauli	10	11/05/2004	Bank	0.73333	-17.7	2.26	15.4	1.006	0.545	0.444	1.23	0.22
BR 117	Hajipur	11	07/08/2001	Bank	0.73533	-17.9	3.14	22.5	1.015	0.507	0.422	1.20	0.20
replicate							3.14	22.3					
replicate 2							3.14	22.4					
GHAGHARA													
NAG 12 (1,2)	Kotillaghat	12	17/11/1995	Bank	0.75899	-17.3	5.40	23.5	0.996	0.692	0.695	1.00	0.21
BR 355	Ayodia	13	15/05/2004	Bedload	0.76925	-18.4	1.24	8.07	0.998	0.633	0.464	1.36	0.24
BR 371	Dohrighat	14	16/05/2004	Bank	0.74991	-18.3	1.97	13.4	0.995	0.628	0.445	1.41	0.21
BR 343	Revelganj	15	12/05/2004	Bank	0.74219	-18.5	1.69	12.4	1.000	0.598	0.413	1.45	0.18
KOSI													
BR 103		16	05/08/2001	Bedload	0.75459		3.44	25.0	1.008	0.483	0.417	1.16	0.23
GOMTI													
BR 133		17	09/08/2001	Bank	0.73963		3.59	19.0	1.007	0.763	0.574	1.33	0.09
BR 378		18	16/05/2004	Bank			1.65	8.28	1.002	0.828	0.604	1.37	0.23

(1) Sr isotopic composition from Galy (1999)

(2) Nd isotopic composition from Galy (1999)

FIGURE CAPTION

Figure 1

a. Map of the Ganges basin and location of river samples. Rectangle indicates map area of the Narayani watershed (1b), modified from Riotte (2001), and Galy et al. (1999a). MCT = Main Central Thrust. MFT = Main Frontal Thrust.

b. Geological map and location of river samples of Narayani watershed, modified from Riotte (2001), and Galy et al. (1999a). TSS = Tethian Sedimentary Series. HHC = High Himalaya Crystalline. LH = Lesser Himalaya. HHL = High Himalaya Leucogranite. LHN = Lesser Himalaya Nappe. Location numbers are those given in the table of results (position on the map).

Figure 2

Plot of the sediment data points in (²³⁰Th/²³²Th) versus (²³⁸U/²³²Th) diagram for the sediments of the Kali Gandaki in the LH-HHC (black squares), Narayani (grey square), Gandak (white squares), Ghaghara (white circles), and Gomti (grey triangles) rivers.

Figure 3

Downstream evolution of the U/Th (squares for the Gandak and circles for the Ghaghara rivers) and Na/Al (triangles) ratios for the sediments of the Ghaghara (a) and Gandak (b) rivers. Numbers below the data points are the position number given in Table 2.

Figure 4

Time interpretation for the variations of Gandak (a) and Ghaghara (b) river sediments in the $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$ versus $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$ diagram. Horizontal dashed lines and vertical arrows

correspond to a closed-system evolution with an instantaneous U-Th weathering fractionation followed by ²³⁰Th radioactive decay. The grey curve corresponds to a model of gain and loss of uranium, (see text for explanation). The values are given in ky.

Figure 5

⁸⁷Sr/⁸⁶Sr versus Ba/Sr for both the dissolved (grey diamonds) and solid phases (black squares) of the Kali Gandaki river samples in the LH-HHC. The trends observed for the dissolved and particular phases emphasize the mixing between two different sources which have suffered different degrees of weathering (details on the chemical characteristics of the end-members are given in Galy, 1999). On the figure, both end-members obtained by intense weathering of LH-HHC are considered to have constant ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr that would be likely not the case if weathering were incongruent.

Figure 6

Time interpretation for the U-Th variations of the Kali Gandaki river sediments in the LH-HHC from an integrative model where each sample is considered independently from the others and represents the average of all weathering products originated from the drained watershed. Figure 6a illustrates the closed-system evolution. Such a scenario would imply that the weathering age of the bedrocks at the outlet of the Kali Gandaki watershed would be about 180 ky old. Figure 6b corresponds to an uranium gain and loss weathering model. Time-scales of weathering range between about 30 ky and 350 ky (refer to the text for details).

Figure 7

(²³⁴U/²³⁸U) versus ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr of dissolved phases (grey triangles), sediments (black squares) and monsoon waters (white circles) of the Kali Gandaki in the LH-HHC. The superimposed trends of monsoon waters and associated sediments suggest that uranium of the dissolved phase could have a colloidal nature of sedimentary origin.





Figure 1b



























Appendix

The determination of the time-scales of weathering and of sedimentary transfer requires to use mathematical laws which describe the behaviour of U and Th isotopes during weathering processes. The model proposed by Vigier et al. (2001), and applied by Dosseto et al. (2006a) is based on the uranium continuous leaching model previously used by Latham and Schwarcz (1987) and Mathieu et al. (1995). The study of U-disequilibria in soils have highlighted that during weathering processes, more complex scenarios involving gain and loss of U have to be considered (Dequincey et al., 2002 ; Chabaux et al., 2003a). Such a scenario is used here to constrain the weathering time-scales in the chain as well as the transfer times of sediments in the plain. It is based on the following equations:

(1)
$$\frac{d^{238}U_p}{dt} = \frac{F_8}{\lambda_8} - k_8^{238}U_p$$

(2)
$$\frac{d^{234}U_p}{dt} = \frac{F_4}{\lambda_4} + \lambda_8^{238}U_p - k_4^{234}U_p - \lambda_4^{234}U_p$$

(3)
$$\frac{d^{230}Th_p}{dt} = \lambda_4^{234}U_p - \lambda_0^{230}Th_p$$

(4)
$$\frac{d^{232}Th_p}{dt} = 0$$

224

where ${}^{238}U_p$, ${}^{234}U_p$, ${}^{230}Th_p$ and ${}^{232}Th_p$ are the abundances of ${}^{238}U$, ${}^{234}U$, ${}^{230}Th$ and ${}^{232}Th$ in the particles. k₈ and k₄ are the leaching coefficients for ${}^{238}U$ and ${}^{234}U$ and represent the fraction of ${}^{238}U$ and ${}^{234}U$ which are released into water per unit of time (t). F₈ and F₄ are the uranium gain parameters which represent the ${}^{238}U$ and ${}^{234}U$ activity input fluxes per unit of time respectively. λ_8 , λ_4 and λ_0 are the decay constants of ${}^{238}U$, ${}^{234}U$ and ${}^{230}Th$ respectively. If the U gain parameters are supposed to be equal to zero, the equations become similar to the equations used by Vigier et al. (2001).
This set of differential equations leads to a system of three equations for the $(^{238}U/^{232}Th)$, $(^{230}Th/^{232}Th)$ and $(^{234}U/^{238}U)$ activity ratios in the sediments; they depend on the chemical mobility parameters (k₄, k₈, F₄, F₈) and time (t). Such an under-determined system is solved by a Monte-Carlo inversion method which is computed in Fortran. This approach has been developed and will be presented in details for the study of lateritic profiles (Chabaux et al., in prep).

It requires to impose a reasonable range of a priori values for the mobility parameters. For this study, the range of values for the uranium leaching coefficient k_8 is fixed between 10⁻⁴ and 10⁻⁹ y⁻¹ as it allows to recover all the values of k_8 previously published for various tectonic and climatic environments (Vigier et al., 2001, 2005; Dosseto et al., 2006a, b, c). Similarly to Dosseto et al. (2006b), the range of values for the ratio of ²³⁴U and ²³⁸U leaching coefficients, k_4/k_8 , is fixed ≥ 1 as ²³⁴U is supposed to be more mobile than ²³⁸U. The ranges of values for the k_8/F_8 and F_4/F_8 ratios are less constrained. The ratio k_8/F_8 is fixed from 10⁻³ to 10³, whereas the ratio F_4/F_8 , which represents the (²³⁴U/²³⁸U) activity ratio brought to the sediment, is fixed ≥ 0.5 as it allows to recover the values usually observed for waters being in contact with the alteration products. The method has been indirectly validated by determining the duration of weathering from the U-Th data by Dosseto et al. (2006a) for Trombetas and Negro particles in the Amazon basin. The results obtained with our model yield ages of weathering and associated uranium leaching coefficients similar to the values previously determined by the authors.

In the Himalayan chain, the approach consists in the modelling of each sediment of the Kali Gandaki in the LH-HHC from an initial condition (t=0), where the bedrock is at secular equilibrium with a U/Th ratio ≈ 0.70 , i.e. the value determined from the in-house rocks data base and the analyses of millimetric pebbles (see text for explanation).

In the Ganges alluvial plain, the approach consists in determining the set of parameters allowing to fit all the sediment data points of a given river in the $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$ vs $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$ isochron diagram and $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ vs $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ diagram. The sediments at the inlet of the plain are taken as initial conditions (t=0), e.g. MO 217 and NAG 12 for the Gandak and Ghaghara respectively.

6.2. Residence times of river bank sediments in the Ganges and Brahmaputra basins inferred from U-series disequilibria

Afin de déterminer les constantes de temps caractéristiques des processus d'érosion, d'altération et du transfert sédimentaire associé, les déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th ont été déterminés dans les sédiments de fond et de berge du Gange, du Brahmapoutre et de ses principaux affluents.

Dans un tel contexte, les variations de la systématique U-Th des sédiments intègrent à la fois les apports de matériels sédimentaires depuis les principaux affluents et les modifications chimiques secondaires affectant les sédiments au cours de leur transfert dans les rivières. La déduction d'une information temporelle à partir de ces variations imposant de s'affranchir des processus de mélange, les valeurs de la systématique U-Th des sédiments ont été recalculées à partir des isotopes du Sr et du Nd pour le Brahmapoutre, et à partir des débits de matières en suspension pour le Gange. Dans ce cas, les variations U-Th des sédiments peuvent s'expliquer par l'influence majeure des processus d'altération. L'application d'un modèle réaliste décrivant le comportement des nucléides radioactifs au cours de l'altération permet de contraindre des constantes de temps de transfert sédimentaire respectives de l'ordre de 575 ka et 160 ka pour le Gange et le Brahmapoutre.

Les constantes de temps proposées confirment que le transfert de sédiments dans les plaines alluviales asiatiques agit de manière diffusive, c'est-à-dire majoritairement contrôlé par la géométrie de la rivière. Par ailleurs, ces valeurs étant bien supérieures aux constantes de temps caractéristiques des oscillations climatiques quaternaires, cette étude confirme que les plaines asiatiques atténuent le signal ayant enregistré les perturbations liées aux forçages externes dans la chaîne, soulignant par conséquent la nécessaire prudence quant à l'interprétation des enregistrements des cycles stratigraphiques en sortie de système.

Residence time of river bank sediments in the Ganges and Brahmaputra basins inferred from U-series disequilibria

M. Granet¹, F. Chabaux^{1,*}, C. France-Lanord²

¹Centre de Géochimie de la Surface, CGS-EOST UMR 7517, 1 rue Blessig, 67084 Strasbourg Cedex, France ²Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques, 15 rue Notre Dame des Pauvres, 54501 Vandoeuvre lès Nancy, France

> 5012 words Abstract : 217 words

Abstract

In order to define time-scales of sedimentary transfer in the Ganges and Brahmaputra rivers, ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria have been determined on both bedload and river bank sediments regularly collected along the streams.

Variations of the U-Th systematics for these sediments depend on the input of sedimentary materials from the main tributaries, and on the secondary chemical modifications affecting the sediments during their transfer into the plain. Interpretation of the variations in terms of time requiring corrections of mixing processes, values of U-Th systematics have been recomputed from Sr and Nd isotopes for the Brahmaputra, and from sedimentary discharges for the Ganges. In both cases, U-Th variations of the sediments can be mainly explained by the occurrence of weathering processes. Application of a model describing the behaviour of the nuclides during weathering allows to constrain the time-scales of sedimentary transfer of about 575 ky and 160 ky for the Ganges and Brahmaputra, respectively.

The proposed time-scales confirm that the transfer of sediments in alluvial plains acts as a diffusive process. Moreover, as these values are larger than the quaternary climatic oscillations times, this study confirms that the asian floodplains buffer the sedimentary signals which register the perturbations originating from the chain, suggesting consequently to be careful in the interpretation of stratigraphic cycles records in relation to external forcings.

Keywords : Ganges, Brahmaputra, ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria, sedimentary transfer, alluvial plain

1. INTRODUCTION

The understanding and quantification of the mechanisms which control the global carbon cycle, such as continental erosion, are important since they give information on long-term climatic variations (e.g. Berner, 1991; 1995; Berner and Berner, 1995; Gaillardet et al., 1999). In this context is the study of the sedimentary flux a fundamental variable to approach the evolution of the topographic reliefs ? It is crucial to be able to estimate the time-scales of transfer of this flux to understand its variations with time and the significance of the stratigraphic records in relation to external forcings: climate, tectonics and erosion.

The classically proposed approach is based on the study of fluvial networks. Rivers play indeed a paramount role in the reliefs dynamics because of their strong erosive potential and because they carry the sediments. Recent studies have highlighted the potential of U-series nuclides, i.e. uranium and thorium, to give constraints on the sediments analyses: the time since beginning of weathering (e.g. Vigier et al., 2001; Dosseto et al., 2006a), and the transfer time in the rivers (e.g. Granet et al., subm.; Dosseto et al., 2006b). This is explained by the fact that these nuclides are tracers and chronometers of weathering and transport processes (see a review in Chabaux et al., 2003).

In this study, which focuses on the sediments of the Ganges and Brahmaputra basins, it is proposed to apply a method similar to the one developed for the Himalayan tributaries of the Ganges (Granet et al., submitted). It has been indeed demonstrated that analysing U-series nuclides in sediments regularly collected along the streams allows to constrain time-scales of sedimentary transfer in a way to have a realistic model describing the behaviour of the nuclides in this system.

2. THE GANGES AND BRAHMAPUTRA BASINS

The Himalayan chain is actually drained by two major hydro-systems, the Indus-Sutlej basin and the Ganges-Brahmaputra basin (Fig. 1), subject of the present study.

The description of the Brahmaputra basin (Fig. 2) mainly results from recent studies focused on river sediments from the Brahmaputra and its tributaries (Singh and France-Lanord, 2002; Singh et al., 2003; Garzanti et al., 2004; Singh et al., 2005; Singh et al., 2006). The Brahmaputra river has its source in the Himalayas of western Tibet, east of the Kailash Mountain, at an altitude of about 5200 m. It follows its course along the Indus-Tsangpo Suture zone. In this part of the basin, where it is called the Tsangpo, the main lithologies comprise of Transhimalayan gabbroic to granodioritic batholiths along with turbidites and ophiolites of the Indus Trangpo Suture Zone (Singh et al., 2003; Xu et al., 1985; Debon et al., 1986). Evaporites, salt deposits and hot springs were also reported in this area (Pascoe, 1963; Hu et al., 1982; Hochstein and Regenauer-Lieb, 1998; Craw et al., 2005). In the eastern part of the Transhimalaya, around Namche Barwa, the Tsangpo changes its course direction and flows southward to enter India as the Siang. The lithologies drained in this area are metamorphic gneisses of the Indian Plate and the calc-alkaline plutons of the Transhimalaya (Burg et al., 1998). The Dibang and Lohit rivers are eastern tributaries of the Siang as it enters the Assam Plain. They flow through the Mishmi Hills, mainly composed of calc-alkaline diorite-tonalite-graniodiorite complexes and tholeiitic metavolcanic rocks (Sharma et al., 1991; Kumar, 1997). In the Assam Plain, the Siang is called the Brahmaputra and flows in WSW direction. The himalayan tributaries from this part of the basin are divided in two geographical units, Arunachal Himalaya where the Subansiri, the Renganadi and the Jia Bhareli rivers are flowing, and Bhutan Himalaya drained by the Puthimari, the Manas and the Tipkai rivers. They provide a great amount of sedimentary materials into the Brahmaputra.

They drain the Higher Himalaya series, composed of granites, gneisses, schists, marbles, the Lesser Himalaya series which consist of quartzites, dolostones, shales, granites, gneisses and schists, and the Siwaliks characterized by turbidites and Neogene molasses. Once in Dhubri, the Brahmaputra receives sedimentary input from the Tista river, turns southward into Bangladesh, where it is called Jamuna, and flows in the Bay of Bengal after a course of about 2800 km.

The Ganges basin (Fig. 3) drains India, Tibet, Nepal, Buthan and Bangladesh. The basin is subdivided in four geomorphological domains : the alluvial plain, the hills and plateau of India to the south of the plain, the Himalaya, and the southern part of the Tibetan plateau. The alluvial plain occupies 52.5% of the basin, and mostly consists of quaternary alluvial sediments. The Ganges simply consists of the progressive addition of rivers which are perpendicular to the chain, and taking their sources in the northern part of Himalaya. These major rivers are the Ghaghara, the Gandak and the Sapt Kosi. They are generally multichannel, braided systems characterized by high discharges and sediment loads contributing mainly to the sedimentary budget of the Ganges. The headwaters of the main Himalayan tributaries of the Ganges are in the himalayan chain where the outcropping lithologies are similar to those drained by the Himalayan tributaries of the Brahmaputra. The Ghaghara, Gandak and Sapt Kosi rivers originate from the terranes of the southern part of the Tibetan plateau, which mostly belong to the Tethian Sedimentary Series (TSS), and have then flowed through the High Himalaya Crystalline (HHC), principal formation of the high range, the Lesser Himalaya (LH), and the recently uplifted Siwaliks which correspond to the recycling of the other himalayan formations (DeCelles et al., 1998; Quade et al., 1997).

3. ANALYTICAL METHODS

This study focuses on the analysis of the U-Th systematics in sediments from the Ganges and Brahmaputra basins. These river samples are bank sediments from the Ganges, the Brahmaputra and its tributaries, which have been collected during several field-trips since 1989. In the case of the Brahmaputra sediments, major and trace element concentrations as well as Sr and Nd isotopic compositions were already presented in Singh and France-Lanord (2002), whereas equivalent data for the Ganges sediments are not available or yet unpublished.

For U and Th isotopic ratios measurements, approximatively 100 mg of previously finely crushed material was used. For U and Th concentrations measurements, 100 mg of material was accurately weighted and spiked with a tracer enriched in ²³⁰Th and ²³⁵U isotopes. This spike was calibrated with the AthO rock standard.

The samples are dissolved following a procedure specially developed for its ability to provide a complete dissolution of the samples considered in this study. 5 mL of HNO₃-HF were added to the spiked sediment and the mixture was placed on a hot plate at 70°C during 24 hours. 1 mL of HClO₄ was added to the mixture and evaporated at the same temperature. After evaporation, the mixture is only composed of HClO₄ and placed during 24 hours on a hot plate at 150°C. The solution was then again evaporated and re-dissolved in a mixture of HNO₃ and HCl to complete the dissolution of potential organic residues. After evaporation, the solution is dissolved in HNO₃ 7.5N for U-Th separation and purification which used a conventional anion-exchange chromatography (e.g. Granet et al., subm.).

U and Th concentrations were determined on a VG Sector, by measuring $^{235}U/^{238}U$ and $^{232}Th/^{230}Th$ of the spiked samples. $^{234}U/^{235}U$ and $^{232}Th/^{230}Th$ isotopic compositions of the sediments were measured on a Thermo-Finnigan Triton. ($^{234}U/^{238}U$) and ($^{230}Th/^{232}Th$) activity

ratios were deduced from the latter measurements by considering $T(^{234}U) = 245250$ y, $T(^{238}U) = 4.47E+09$ y, $T(^{230}Th) = 75690$ y, $T(^{232}Th) = 1.40E+10$ y, and $^{238}U/^{235}U = 137.88$ (e.g. Akovali, 1994; Cheng et al., 2000).

The U and Th concentrations were controlled by repeated analyses. Accuracy of $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ and $^{232}\text{Th}/^{230}\text{Th}$ isotopic compositions of the sample was checked by analyzing the HU1 standard and the Th105 standard. The results, which are in agreement with previous values (e.g. in Granet et al., subm.), give : $^{234}\text{U}/^{235}\text{U} = 0.007582 \pm 0.000011$ (n=10, 2σ error), and $^{232}\text{Th}/^{230}\text{Th} = 217438 \pm 780$ (n=10, 2σ error). The mean values for total blanks are lower than 20 pg for U and for Th and also do not significantly contribute to the amounts measured in the samples.

4. RESULTS

Mineralogical study of the sediments, as well as data on major, trace elements, and Sr, Nd, Re and Os isotopes have already been published for the Brahmaputra (Singh and France-Lanord, 2002 ; Singh et al., 2003 ; Garzanti et al., 2004), and are yet unpublished or subject of specific papers for the Ganges. As this study is focusing on the analysis of U-series nuclides, only some general aspects are briefly presented.

Mineralogical studies of the sediments have highlighted that even if erosion is an active process, chemical weathering is not negligible (Garzanti et al., 2004). Additionally, mineralogical tools, as well as chemical and isotopic data (Singh and France-Lanord, 2002; Singh et al., 2003), have suggested that the sedimentary flux of the Brahmaputra begins to be significative in the Siang river which becomes the Brahmaputra in the Assam plain, and that at that part of the basin, it also records high sediments inputs from eastern and Himalayan tributaries.

Results obtained from the analysis of U-series nuclides in the sediments are given in Table 1 for each of the system studied : the Brahmaputra and its tributaries, and the Ganges.

The sediments from the himalayan tributaries of the Brahmaputra, collected before their confluence with the Brahmaputra have $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ and $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ activity ratios higher than one. $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ range between 1.161 and 1.397, whereas $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ are comprised between 1.001 and 1.038. One of the major results inferred from the sediments of the Himalayan tributaries of the Brahmaputra is the positive correlation observed between $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ and Nd/Na, Sm/Na and Ti/Na, ratios which are usually considered as weathering tracers (Fig. 4).

By contrast with the sediments from the Himalayan tributaries of the Brahmaputra, the sediments from the Brahmaputra main channel display $(^{234}U/^{238}U)$ activity ratios at

equilibrium, with values ranging from 0.999 to 1.008. In addition, $(^{238}U/^{232}Th)$ and $(^{230}Th/^{232}Th)$ activity ratios decrease downstream, as it was already observed for the sediments of the Gandak and Ghaghara rivers in the Indian Plain (Chabaux et al., 2006). But this regular variation observed along the Brahmaputra is not associated to a regular variation of the $(^{230}Th/^{238}U)$ activity ratios, with values ranging from 1.105 to 1.142.

The latter remark is also true for the sediments of the Ganges, where no simple downstream relationship is observed for the U-Th systematics : $(^{238}U/^{232}Th)$ range between 0.362 and 0.442, $(^{230}Th/^{232}Th)$ have values between 0.369 and 0.513, and $(^{230}Th/^{238}U)$ are comprised between 1.018 and 1.161. By contrast with the sediments of the Brahmaputra main channel, $(^{234}U/^{238}U)$ activity ratios of the Ganges sediments display a more important range of variations, with values which can reach 1.061.

5. TIME-SCALES OF EROSION AND OF WEATHERING

5.1. Himalayan tributaries of the Brahmaputra

5.1.1. Origin of the U-Th fractionation

One of the main results inferred from the U-series data on the sediments from the Himalayan tributaries of the Brahmaputra is the positive correlation exhibited by $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ and elemental ratios like Nd/Na, Sm/Na or Ti/Na (Fig. 4). The interpretation of this correlation depends on the precise knowledge of the chemical composition of the Himalayan rocks which are submitted to weathering and subsequent erosion. By definition, fresh rocks are at secular equilibrium and display consequently $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ activity ratios equal to 1. In the case of fresh rocks presenting Nd/Na, Sm/Na and Ti/Na ratios with values lower than those measured in the sediments of the Himalayan tributaries before their confluence with the Brahmaputra, the positive correlation would then highlight the remobilisation of mobile elements like U and Na during weathering processes. Unfortunately, no data allow to constrain unambiguously Nd/Na, Sm/Na et Ti/Na ratios for the Himalayan rocks. However, Na and Al amounts are known for the HHC terranes which are the main eroded rocks contributing to the sedimentary flux of the rivers (France-Lanord and Derry, 1997). Interestingly and as already observed between (²³⁰Th/²³⁸U) and Nd/Na, Sm/Na or Ti/Na ratios, a negative correlation is highlighted by the sediments in the (²³⁰Th/²³⁸U) vs Na/Al diagram with Na/Al ratios lower than the mean value of the HHC rocks (Fig. 5). This confirms therefore that U-Th fractionation is linked to weathering processes where mobile elements, i.e. U and Na, are continuously removed from the sediments during their transit from Himalaya to the plain of the Brahmaputra.

The sediments from the Himalayan tributaries of the Brahmaputra have $(^{234}U/^{238}U)$ higher than one (see Table 1). Such values are not in agreement with a theoretical weathering process which should lead to observe a geochemical complementary between the dissolved and the residual phase. This complementary should highlight the dissolved phase enriched in ²³⁴U as compared to the residual phase. These anomalous values were generally interpreted as adsorption of dissolved uranium on the particles from surficial waters during the transport and storage of sediments (e.g. Andersson et al., 1998; Porcelli et al., 2001). Study of rivers in a similar river dynamic context - the Ganges plain - have shown the colloidal nature of the dissolved U, filtered at 0.1-0.2 µm, suggesting therefore that excess of ²³⁴U in the sediments can not be related to adsorption processes occurring in the rivers. Additionally, minerals favourable to uranium adsorption are Fe-, Mn- or Ti-oxyhydroxides, silica gels, micas and clays like kaolinite, illite, montmorillonite and bentonite (Ames et al., 1983a,c,d; Allard et al., 1999; Borovec, 1981; Shirvington, 1983; Giaquinta et al., 1997). All these minerals were not reported by Garzanti et al. (2004) as the main minerals contained in the same sediments of the Himalayan tributaries of the Brahmaputra which are in fact enriched in quartz and feldspars. Finally, (²³⁴U/²³⁸U) of the sediments display no simple relationship with Fe₂O₃, TiO₂ or MnO contents as it would be expected in case of U adsorption on oxyhydroxides (not shown). However, such values were already reported in weathering profiles, interpreted as isotopic exchange between solid and aqueous phases, and attributed to complex pedogenetic processes. These processes, which explain the $(^{234}U/^{238}U)$ higher than one for the sediments of the Himalayan tributaries of the Brahmaputra, also suggest that the time scale of weathering is long enough to allow the development of soils, and also to produce these anomalous values.

5.1.2. Interpretation of the chemical variations in terms of time

The U-Th systematics of sediments from the Himalayan tributaries of the Brahmaputra is explained by the remobilisation of uranium during weathering processes, and by the influence of pedogenetic processes. Dequincey et al. (2002) have proposed a model to constrain the role of pedogenesis on U-series in weathering profiles by considering both recent gains and losses of uranium (see equations in Chabaux et al., 2003).

Application of the model requires constrains on the U/Th ratio of the bedrock. Singh and France-Lanord (2002) have illustrated that Sr and Nd isotopic compositions of the Himalayan formations from the Brahmaputra basin are comparable to the rocks described in central Nepal. It can therefore be considered at a first approximation that the U/Th ratio is also similar to the ratio determined for the main Central Nepal lithologies, with a mean value of about 0.7. In this case, modelisation would lead to estimates of weathering times for each sediment from the Himalayan tributaries before their confluence with the Brahmaputra, at the scale of their watershed, including weathering processes occurring in soils and during the transport and storage in the plain. The time scales of weathering deduced from the model range between about 110 and 270 ky, and correspond to uranium leaching coefficients ranging from $k_8 = 2.3.10^{-6}$ and $k_8 = 8.2.10^{-5} y^{-1}$ (see details in Table 2).

5.2. Brahmaputra main channel

5.2.1. Origin of the U-Th fractionation

One of the main results inferred from the U-Th data of the sediments from the Brahmaputra main channel is the regular downstream decrease observed for $(^{238}U/^{232}Th)$ and $(^{230}Th/^{232}Th)$ (not shown). However, $(^{234}U/^{238}U)$ and $(^{230}Th/^{238}U)$ disequilibria display no systematic downstream variations as it was already observed for the sediments of the

Himalayan tributaries of the Ganges (Granet et al., subm.). This discrepancy might be attributed to the sedimentary inputs from eastern and Himalayan tributaries of the Brahmaputra which would introduce a bias on the U-series values measured on the sediments from the Brahmaputra main channel. It is proposed to re-evaluate the true values of the U-Th systematics before the contribution of the tributaries. Such an approach supposes that mixing processes are instantaneous compared to the half-lives of the U-series nuclides.

The contribution of the Himalayan tributaries sediments can be estimated from Sr-Nd isotopic data obtained by Singh and France-Lanord (2002) for the same samples. They show that the Sr-Nd data obtained for the sediments from the Brahmaputra at Dibrugarh are consistent with a mixing of 80% of sediments coming from the Siang and 20% of sediments coming from the eastern tributaries of the Brahmaputra. Similarly, the sedimentary budget of the Brahmaputra at Guwahati is in agreement with a mixing between about 58% of sediments from the Siang, 28% of sediments from Himalayan tributaries and 14% of sediments from the eastern tributaries. Finally, isotopic data obtained for the sediments of the Brahmaputra at Dhubri suggest that at this location, the sedimentary budget corresponds to a mixing of about 49% of sediments coming from the Siang, 41% of sediments coming from the Himalayan tributaries.

From these data, we calculate the contributions of the tributaries between two successive sampling locations of the Brahmaputra main channel. The percentages given above imply that 25% of sediments from the eastern tributaries are added to the sedimentary input from the Siang to account for the sedimentary budget of the Brahmaputra at Dibrugarh. Similarly, 39% of sediments from Arunachal Himalaya are brought between the Brahmaputra at Guwahati. Finally, 22% of sediments from Bhutan Himalaya are brought between the Brahmaputra at Dhubri.

From these percentages, it is proposed to determine the values of chemical and activity ratios of the sediments from the Brahmaputra main channel corrected for the sedimentary inputs of the tributaries: the sediments from the Brahmaputra at Dibrugarh corrected for the contribution of the eastern tributaries, the Brahmaputra at Guwahati corrected for the contribution of Arunachal Himalaya, and the Brahmaputra at Dhubri corrected for the contribution of Bhutan Himalaya. This approach is based on the following equations, where $(1-\alpha)$ is defined as the contribution of a given tributary:

(1) for chemical ratios :

$$\frac{X}{Y}\Big|_{corrected} = \frac{X_{measured} - (1 - \alpha)X_{tributary}}{Y_{measured} - (1 - \alpha)Y_{tributary}}$$
(1)

(2) for activity ratios :

$$\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)_{corrected} = \frac{^{238}U_{measured}\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)_{measured}}{^{238}U_{measured}} - (1-\alpha)^{^{238}U_{tributary}}\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)_{tributary}}$$
(2)

$$\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)_{corrected} = \frac{^{232}Th_{measured}\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)_{measured} - (1-\alpha)^{232}Th_{tributary}\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)_{tributary}}{^{232}Th_{measured} - (1-\alpha)^{232}Th_{tributary}}$$
(3)

$$\left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right)_{corrected} = \frac{^{232}Th_{measured}\left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right)_{measured}}{^{232}Th_{measured}} - (1-\alpha)^{^{232}Th_{tributary}}\left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right)_{tributary}}$$
(4)

From the Siang to the Brahmaputra at Dibrugarh corrected for the sedimentary contribution of the eastern tributaries, from the Brahmaputra at Dibrugarh to the Brahmaputra at Guwahati corrected for the sedimentary contribution of Arunachal Himalaya, as well as from the Brahmaputra at Guwahati to the Brahmaputra at Dhubri corrected for the sedimentary contribution of Bhutan Himalaya, and finally from the Brahmaputra at Dhubri to the Brahmaputra at Chilmari, there is a systematic decrease of (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios (calculated from (2) and (3)). Furthermore this variation (example of the upper part of the Brahmaputra is given in Fig. 6a) is systematically associated with a decrease of the Na/Th ratio (determined from (1), Fig. 6b). As it was already inferred from a similar study focusing on sediments from the Himalayan tributaries of the Ganges (Granet et al., subm.), these correlations have to be attributed to weathering processes occurring during the transit of the sediments in the plain. By contrast, sediments (²³⁴U/²³⁸U) (calculated from (4)) and (²³⁰Th/²³⁸U) (deduced from (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) determined from (2) and (3)) display a different variation than the variation observed for the sediments of the Himalayan tributaries of the Ganges: (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios are around one (precluding also the occurrence of complex pedogenetic processes), and (²³⁰Th/²³⁸U) activity ratios decrease downstream (not shown) suggesting therefore that the remobilisation of uranium is occurring on long time scales, longer than the decay period of ²³⁰Th.

5.2.2. Interpretation of the chemical variations in terms of time

U-series data of the sediments of the Brahmaputra main channel, corrected from mixing processes, are in agreement with values expected from a theoretical weathering process where U is continuously removed from the sediments during the whole weathering process. This can be modelled according to the uranium continuous leaching model (details and equations in Vigier et al., 2001).

Application of the model does not require constrains on the U/Th ratio of the bedrock, because it is assumed that after corrections of mixing processes, the main input of sediments in the Brahmaputra main channel is the sediment located upstream of the portion considered. In the Brahmaputra main channel, the time scale calculated from the model corresponds to a transfer time as it was already proposed for the Ganges tributaries because no new specific plain materials are brought to the rivers as they transit in the plain. The sedimentary transfer times deduced from the model for the Brahmaputra are about 43 ky from the Siang to Dibrugarh, about 27 ky from Dibrugarh to Guwahati, about 63 ky from Guwahati to Dhubri, and finally about 15 ky from Dhubri to Chilmari. This equals to a global total time of transfer in the Brahmaputra of about 150 ky, corresponding to a mean k_8 leaching coefficient of about 5.10⁻⁷ y⁻¹.

5.3. Ganges main channel

5.3.1. Origin of the U-Th fractionation

As already mentioned for the sediments of the Brahmaputra main channel, the U-Th systematics of the sediments from the Ganges main channel display no simple variation (not shown), what could be due to the bias induced by mixing processes.

Determination of the sedimentary contributions of the Ganges tributaries can be easily estimated with Sr and Nd isotopic ratios, but such data will be the subject of a specific paper focusing on the tracing of the distribution of erosion in the Ganges watershed from isotopic compositions of stream sediments. However, at a first approximation, the contributions of the tributaries can be estimated on the basis of data about their sedimentary discharge. The amount of suspended materials carried by the Ganges ranges between 328 and 548.10⁶ t/y (Abbas and Subramanian, 1984; Coleman, 1969; RSP, 1996), value which is around 82.10⁶ t/y for the Gandak river and 43.10⁶ t/y for the Kosi river (Sinha and Friend, 1994), and less constrained for the Ghaghara river where it is comprised between 93.3 and 259.10⁶ t/y (HPC, 1989). From these data, it can be deduced that the sedimentary contributions of the Ganges

tributaries are 15-25% for the Gandak, 8-13% for the Kosi, and 17-79% for the Ghaghara. The contribution deduced for the Ghaghara is poorly constrained, certainly because of the lack of data available for this river, but should have a value similar to the values obtained for the other tributaries of the Ganges. In the following discussion, it will be assumed that the contribution of the Ghaghara is about 17%.

Corrections of mixing processes are applied by considering that the sedimentary budget of the Ganges at Patna results of a mixing between sediments from the Ganges at Benares and from the Ghaghara river, and similarly that the sedimentary budget of the Ganges at Barauni results of a mixing between sediments from the Ganges at Patna and the Gandak, and finally that the sedimentary budget of the Ganges at Manihari results of a mixing between sediments from the Ganges at Barauni and the Kosi. The results show that between the Ganges at Benares and the Ganges at Patna, of which the sedimentary budget is corrected for the contribution of the Ghaghara river, $(^{238}U/^{232}Th)$ and $(^{230}Th/^{232}Th)$ activity ratios decrease (Fig. 7a). In addition to this variation, a decrease of the weathering index like the Na/Th ratio is observed highlighting the remobilization of uranium during the transfer by weathering processes (Fig. 7b). Similarly, the above observations are also verified between the Ganges at Patna and the Ganges at Barauni after correction of the sedimentary contribution of the Gandak, and between the Ganges at Barauni and the Ganges at Manihari after correction of the sedimentary contribution of the Kosi. (²³⁰Th/²³⁸U) disequilibria tend also to decrease between two sampling locations, after correction of mixing processes, whereas (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios display values higher than one confirming the role of pedogenesis in this basin (see details in Granet et al., subm.).

5.3.2. Interpretation of the chemical variations in terms of time

The U-Th systematics of sediments from the Ganges main channel can be explained by the occurrence of weathering and pedogenetic processes. Modelisation of these processes requires a model taking into account both gains and losses of uranium, as the model developed by Dequincey et al. (2002) for weathering profiles and which was already applied to the sediments of the Himalayan tributaries of the Brahmaputra.

Except for the contribution of the Ghaghara which was assumed to be about 17%, and taking into account the uncertainties of the other tributaries contribution percentages, the values proposed for the time scales are the highest possible values. It gives about 350 ky for the Ganges between Benares and Patna, about 125 ky for the Ganges between Patna and Barauni, and about 100 ky for the Ganges between Barauni and Manihari. At the scale of the Ganges, the total time of transfer is about 575 ky between Benares and Manihari, corresponding to a mean k_8 leaching coefficient of about 5.10⁻⁶ y⁻¹.

5.4. Signification of the time scales

The total times of sedimentary transfer in the Ganges and Brahmaputra are quite high and in agreement with the time-scale proposed for the transfer of sediments and inferred from the analysis of sediments from the main tributaries of the Ganges: 80 to 100 ky for the Gandak and the Ghaghara rivers, respectively (Granet et al., subm.). These values are of the same order than for the sedimentary transfer in the Brahmaputra (150 ky) suggesting therefore that the fluvial dynamics of the Brahmaputra is similar to the one driving the transport of sediments in the himalayan tributaries of the Ganges. In the case of the Ganges, the time-scale proposed is much higher than for the Brahmaputra (several 100's ky). This value remains an order of magnitude because it has been estimated from the sedimentary discharges of suspended matter instead of coarser materials, and by neglecting the sedimentary inputs from the Gomti, a specific plain river, and from the Indian shield. This would certainly account for the fact that the time-scale of transfer proposed between Benares and Patna reaches more than 300 ky, implying the need for further investigations to constrain precisely the amounts of materials supplied as river bank sediments and bedloads by the Ghaghara river.

However, it can be noted that the time-scales of sedimentary transfer proposed in this study are in agreement with a independent geomorphological approach. This approach, based on the comparison between actual sedimentary discharges and mean discharges calculated from the volumes of sediments accumulated in the basins, has allowed to propose response times of 450 ky for the Ganges and 90 ky for the Brahmaputra (Metivier et Gaudemer, 1999), values which correspond at a first approximation to time-scales of sedimentary transfer. Coherence between both approaches leads to propose that the mixing proportions of coarser sedimentary materials are certainly quite similar to the mixing proportions of suspended materials. In addition, the time-scales proposed by the geomorphological approach were based on the assumption that the transport acts as a diffusive system, i.e. controlled by the geometry of the river bed. The fact that the values proposed in this study are in agreement with the response times tend to confirm this assumption. Finally, the time-scales proposed in this study are high, actually much higher than the time-scales of the quaternary climatic oscillations. This confirms previous observations suggesting that for such time-scales, the signal recording a perturbation originating at the entry of the system, i.e. the chain, will be buffered in the alluvial plain, suggesting to be careful when interpreting stratigraphic records at the exit of the system in relation to external forcings.

In the case of such high values of sedimentary transfer time-scales, one could object that these values are in disagreement with the fact that study of drillings in the Bay of Bengal suggests high frequency variations of the sedimentary fluxes. This can reasonably be explained by the fact that the materials which are studied are different to the ones considered in this study, e.g. that the sediments observed in the Bay of Bengal are fine materials which transit therefore faster in the basin. This is confirmed by recent studies on suspended load of the Amazon basin where the time-scales of weathering and transfer deduced are short, e.g. a few ky (Dosseto et al., 2006b). By contrast, coarse materials would transit rather slowly in the basin, the transfer depending strongly on the alternation of transport and temporary storage periods in the basin. This observation would be enhanced by the fact that comparison between sediments volumes in the foreland basin and the oceanic delta on the last 20 My (Einsele et al., 1996) indicates that for a long term period, about 35% of the sediments eroded in the chain never reach the marine domain.

6. CONCLUSIONS

Analysis of U-series nuclides in sediments regularly collected along the Ganges and Brahmaputra allow to determine time-scales of sedimentary transfer: several 100's ky and 150 ky for the Ganges and Brahmaputra, respectively.

This study confirms the potential of using radioactive disequilibria to solve problem at the interface between geochemistry and geomorphology. Such an approach is all the most robust that it can be validated because the time-scales proposed are in agreement with an independent geomorphological method based on rivers time responses, values which can be assimilated at the first order to time-scales of sedimentary transfer.

The values determined confirm the role of storage processes in driving the transfer of coarse sediments in alluvial plains. The time-scales proposed imply that the study of stratigraphic records at the exit of the system can not be used to unambiguously constrain the evolution of the reliefs from the study of the sedimentary flux because the signal of the latter is buffered during the transfer from the perturbation zone, submitted to external forcings, to the outlet of the system.

D. Lemarchand, S. Rihs, M.C. Pierret and E. Pelt are greatly thanked for the many discussions which have largely improved the manuscript. P. Stille is also acknowledged for his discussion and comments during the progress of this work. We are also grateful to B. Kiefel, T. Perrone, R. Boutin for their technical assistance during major, trace and isotope analyses. This work was supported by the INSU-CNRS program "Reliefs de la Terre" and by the Alsace region Program REALISE.

REFERENCES

Abbas, N., Subramanian, V., 1984. Erosion and sediment transport in the Ganges river basin (India). J. Hydrol. 69, 173-182.

Akovali, Y. A., 1994. Nuclear Data Sheets for A = 234. Nuclear Data Sheets 71, 18.

Allard, T., Ildefonse, Ph., Beaucaire, C., and Calas, G., 1999. Structural chemistry of uranium associated with Si, Al, Fe gels in a granitic uranium mine. Chem. Geol. 158, 81-103.

Ames, L.L., McGarrah, J.E., Walker, B.A., 1983a. Sorption of trace constituents from aqueous solutions onto secondary minerals. I Uranium. Clays Clays Miner. 31, 321-334.

Ames, L.L., McGarrah, J.E., Walker, B.A., 1983c. Sorption of uranium and radium by biotite, muscovite and phlogopite. Clays Clays Miner. 31, 343-351.

Ames, L.L., McGarrah, J.E., Walker, B.A., Salter, P.F., 1983d. Uranium and radium sorption on amorphous ferric oxyhydroxide. Chem. Geol. 40, 135-148.

Andersson, P. S., Porcelli, D., Wasserburg, G. J., Ingri, J., 1998. Particle transport of ²³⁴U-²³⁸U in the Kalix river and in the Baltic Sea. Geochim. Cosmochim. Acta 62, 385-392.

Berner, E.K., and Berner, R.A., 1995. Global environment: water, air and geochemical cycles, Prentice Hall.

Berner, R.A., 1995. Chemical weathering and its effect on atmospheric CO2 and climate. Rev. Mineral 31, 565-583.

Berner, R.A., 1991. A model for atmospheric CO₂ over Phanerozoïc time. Am. J. Sci. 291, 339-376.

Borovec, Z., 1981. The adsorption of uranyl species by fine clay. Chem. Geol. 32, 45-58.

Burg, J.-P., Nievergelt, P., Oberli, F., Seward, D., Davy, P., Maurin, J.-C., Diao, Z., Meier, M., 1998. The Namche Barwa syntaxis: evidence for exhumation related to compressional crustal folding. J. Asian Earth Sci. 16, 239-252.

Chabaux, F., Riotte, J., Clauer, N. and France-Lanord, Ch., 2001. Isotopic tracing of the dissolved U fluxes of Himalayan rivers: Implications for present and past U budgets of the Ganges-Brahmaputra system. Geochim. Cosmochim. Acta 65, 3201-3217.

Chabaux, F., Granet, M., Pelt, E., France-Lanord, C., Galy, V., 2006. ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria and timescale of sedimentary transfers in rivers: Clues from the Gangetic plain rivers. J. of Geochem. Expl. 88, 373-375.

Chabaux, F., Riotte, J., Dequincey, O., 2003b. U-Th-Ra fractionation during weathering and river transport, in : B. Bourdon, G. M. Henderson, C.C. Lundstrom, S.P. Turner (Eds.), Uranium-series Geochemistry, Reviews in Mineralogy and Geochemistry, vol. 52, Geochemical Society-Mineralogical Society of America, Washington, 533-576.

Cheng, H., Edwards, R. L., Hoff, J., Gallup, C. D., Richards, D. A., Asmerom, Y., 2000. The half-lives of uranium-234 and thorium-230. Chem. Geol. 169, 17-33.

Coleman, J.M., 1969. Brahmaputra river: channel processes and sedimentation. Sediment. Geol. 3, 129-239.

Craw, D., Koons, P.O., Zeitler, P.Z., Kidd, W.S.F., 2005. Fluid evolution and thermal structure in the rapidly exhuming gneiss complex of Namche Barwa-Gyala Peri, eastern Himalayan syntaxis. J. Metamorph. Geol. 23, 829-845.

Debon, F., Le Fort, P., Sheppard, S.M.F., Sonet, J., 1986. The four plutonic belts of the Transhimalaya-Himalaya: a chemical, mineralogical, isotopic and chronological synthesis along a Tibet-Nepal section. J. Petrol. 27, 219-250.

DeCelles, P.G., Gehrels, G.E., Quade J., Ojha, T.P., Kapp, P.A., Upreti, B.N., 1998. Neogene foreland basin deposits, erosional unroofing, and the kinematic history of the Himalayan fold-thrust belt, western Nepal. Geol. Soc. Amer. Bull. 110, 2-21.

Dequincey, O., Chabaux, F., Clauer, N., Sigmarsson, O., Liewig, N., Leprun, J.-C., 2002. Chemical mobilizations in laterites : evidence from trace elements and ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria. Geochim. Cosmochim. Acta 66, 1197-1210.

Dosseto, A., Bourdon, B., Gaillardet, J., Maurice-Bourgoin, L., Allègre, C.J., 2006a. Weathering and transport of sediments in the Bolivian Andes : Time constraints from uranium-series isotopes. Earth Planet. Sci. Lett. 248, 759-771. Dosseto, A., Bourdon, B., Gaillardet, J., Allègre, C.J., Filizola, N., 2006b. Time scale and conditions of weathering under tropical climate : Study of the Amazon basin with U-series. Geochim. Cosmochim. Acta 70, 71-89.

Einsele, G., Ratschbacher, L., Wetzel, A., 1996. The Himalaya-Bengal Fan Denudation-Accumulation System during the Past 20 Ma. J. Geol. 104, 163-184.

France-Lanord, C., Derry, L. A., 1997. Organic carbon burial forcing of the carbon cycle from Himalayan erosion. Nature 390, 65-67.

Gaillardet, J., Dupré, B., Louvat, P., and Allègre, C.J., 1999. Global silicate weathering and CO₂ consumption rates deduced from the chemistry of large rivers. Chem. Geol. 159, 3-30.

Galy, A., France-Lanord, Ch., and Derry, L.A., 1999a. The strontium isotopic budget of Himalayan rivers in Nepal and Bangladesh. Geochim. Cosmochim. Acta 63, 1905-1925.

Galy, A., and France-Lanord, Ch., 1999b. Weathering processes in the Ganges-Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget. Chem. Geol. 159, 31-60.

Galy, A., 1999c. Etude géochimique de l'érosion actuelle de la chaîne himalayenne, Thèse de l'INPL, Nancy, 464 p.

Garzanti, E., Vezzoli, G., Andò, S., France-Lanord, C., Singh, S.K., Foster, G., 2004. Sand petrology and focused erosion in collision orogens : the Brahmaputra. Earth Planet. Sci. Lett. 220, 157-174.

Giaquinta, D.M., Soderholm, L., Yuchs, S.E., and Wassermann, S.R., 1997. The speciation of uranium in a smectite clay: evidence for catalysed uranyl reduction. Radiochim Acta 76, 113-121.

Granet, M., Chabaux, F., France-Lanord,C., Stille, P., Pelt, E., submitted. Time-scales of sedimentary transfer and weathering processes from U-series nuclides: Clues from the Himalayan rivers.

Hochstein, M.P., Regenauer-Lieb, K., 1998. Heat generation associated with collision of two plates : the Himalayan geothermal belt. J. Volcanol. Geotherm. Res. 83, 75-92.

HPC, 1989. Karnali multipurpose project.

Hu, M., Stallard, R.F., Edmond, J., 1982. Major ion chemistry of some large Chinese Rivers. Nature 298, 550-553.

Kumar, G., 1997. Geology of the Arunachal Pradesh. Geological Society of India.

Métivier, F., Gaudemer, Y., 1999. Stability of output fluxes of large rivers in South and East Asia during the last 2 million years: implications on floodplain processes. Basin Research 11, 293-303. Pascoe, E.H., 1963. A Manual of the Geology of India and Burma, vol. 3. Government of India Press, Calcutta, pp. 2073-2079.

Porcelli, D., Andersson, P.S., Baskaran, M., and Wasserburg, G.J., 2001. Transport of U- and Th- series in a Baltic Shield watershed and the Baltic sea. Geochim. Cosmochim. Acta 65, 2439-2459.

Quade, J., Roe, L., DeCelles, P.G., Ojha, T.P., 1997. The late Neogene ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr record of lowland Himalayan rivers. Science 276, 1828-1831.

Riotte, J., 2001. Etude du déséquilibre ²³⁴U-²³⁸U dans les eaux de rivière. Cas du Strengbach, du Mont Cameroun et de l'Himalaya. Thèse de l'Université Louis Pasteur.

RSP, 1996. Spatial representation and analysis of hydraulic and morphological data. Water Resources Planning Organization (WARPO).

Sharma, K.K., Choubey, V.M., Chatti, H.R., 1991. Geological setting of the ophiolites and magmatic arc of the Lohit Himalaya (Arunachal Pradesh), India with special reference to their petrochemistry. Phys. Chem. Earth 18, 277-292.

Shirvington, P.J., 1983. Fixation of radionuclides in the ²³⁸U decay series in the vicinity of mineralized zones: 1. The Austatom Uranium Prospect, Northern Territory, Australia. Geochim. Cosmochim. Acta 47, 403-412.

Singh, S.K., France-Lanord, C., 2002. Tracing the distribution of erosion in the Brahmaputra watershed from isotopic compositions of stream sediments. Earth Planet. Sci. Lett. 202, 645-662.

Singh, S.K., Reisberg, L., France-Lanord, C., 2003. Re-Os systematics of sediments of the Brahmaputra River system. Geochim. Cosmochim. Acta 67, 4101-4111.

Singh, S.K., Sarin, M.M., France-Lanord, C., 2005. Chemical erosion in the Eastern Himalaya : major ion composition of the Brahmaputra and δ^{13} C of dissolved inorganic carbon. Geochim. Cosmochim. Acta 69, 3573-3588.

Singh, S.K., Kumar, A., France-Lanord, C., 2006. Sr and ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr in waters and sediments of the Brahmaputra river system: Silicate weathering, CO₂ consumption and Sr flux. Chem. Geol. 234, 308-320.

Sinha, R., Friend, P.F., 1994. River systems and their sediment flux, Indo-Gangetic plains, Northern Bihar, India. Sedimentology 41, 825-845.

Vigier, N., Bourdon, B., Turner, S., Allègre, C.J., 2001. Erosion timescales derived from Udecay series measurements in rivers. Earth Planet. Sci. Lett. 193, 549-563.

Xu, R.-H., Scharer, U., Allegre, C.J., 1985. Magmatism and metamorphism in the Lhasa Bloch (Tibet) : A geochronological study. J. Geol. 93, 41-57.

TABLE CAPTION

Table 1. U-series data for the sediments of the Ganges and Brahmaputra basins.

 $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ activity ratios are calculated from measured $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ ratios assuming that $^{238}\text{U}/^{235}\text{U} = 137.88$ and using the following decay constants: $\lambda_{238} = 1.551.10^{-10} \text{ y}^{-1}$ and $\lambda_{234} = 2.823.10^{-6} \text{ y}^{-1}$ (Akovali, 1994; Cheng et al., 2000). $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$ activity ratios are calculated from measured $^{232}\text{Th}/^{230}\text{Th}$ ratios using $\lambda_{232} = 4.948.10^{-11} \text{ y}^{-1}$ and $\lambda_{230} = 9.158.10^{-6} \text{ y}^{-1}$ (Cheng et al., 2000). Analytical uncertainties on the $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ and $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$ ratios are 0.005 and 1% respectively (2σ error), and yield 1% and 2 % for the calculated ($^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$) and $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ activity ratios respectively.

Table 2. Results of the model for the Himalayan tributaries of the Brahmaputra.

Ages are given from a model of both gain and loss of uranium, and expressed in ky. Only uranium leaching coefficients are given: k_8 for ²³⁸U, and k_4 for ²³⁴U. They are expressed in y⁻¹.

Table 1

Sample	Location	Sampling	Туре	U	Th	(²³⁴ U/ ²³⁸ U)	(²³⁰ Th/ ²³² Th)	(²³⁸ U/ ²³² Th)	(²³⁰ Th/ ²³⁸ U)
number		date		ppm	ppm				
BRAHMAPUTRA									
main channel									
BR 60	Siang	27/07/1998	Bank	2.21	11.2	1.002	0.674	0.597	1.13
BR 19	Dibrugarh	26/10/1995	Bank	3.00	16.9	1.004	0.597	0.540	1.11
BR 56	Guwahati	25/07/1997	Bank	2.91	18.0	1.006	0.560	0.491	1.14
BR 74	Dhubri	29/07/1997	Bank	2.64	17.0	0.999	0.530	0.472	1.12
BGP 14	Chilmari	04/08/1989	Bank	2.71	17.4	1.008	0.523	0.473	1.10
eastern tributaries									
BR 15	Dibang	25/10/1995	Bank	1.28	9.35	1.006	0.428	0.415	1.03
BR 17	Lohit	25/10/1995	Bank	3.57	25.1	1.000	0.494	0.434	1.14
himalayan tributaries									
BR 62	Subansiri	27/07/1997	Bank	2.54	19.5	1.003	0.513	0.395	1.30
BR 72	Manas	29/07/1997	Bank	1.48	10.7	1.023	0.588	0.421	1.40
BGP 11	Tista	03/08/1989	Bank	4.25	32.4	1.007	0.535	0.398	1.35
BR 64	Jia Bhareli	28/07/1997	Bank	1.27	10.6	1.001	0.474	0.364	1.30
BR 58	Ranga Nadi	26/07/1997	Bank	1.12	8.96	1.002	0.513	0.379	1.35
BR 70	Puthimari	29/07/1997	Bank	1.84	14.0	1.038	0.491	0.398	1.23
BR 76	Tipkai	29/07/1997	Bank	1.08	6.53	1.033	0.582	0.501	1.16
BR 76 duplicat				1.09	6.45				
GANGES									
BR 136	Benares	10/08/2001	Bedload	1.78	12.2	1.007	0.513	0.442	1.16
BR 124	Patna	08/08/2001	Bedload	4.78	39.3	1.061	0.415	0.369	1.12
BR 315	Barauni	08/05/2004	Bank	1.50	11.9	0.998	0.438	0.382	1.15
BR 106	Manihari	06/08/2001	Bank	2.39	20.0	1.030	0.411	0.362	1.13

Table 2

Sample	Location	t	к 8 -1	k ₄	
number		ky	y ·	у.	
BRAHMAPUTRA					
himalayan tributaries					
BR 62	Subansiri	224	2.6 E-06	2.6 E-06	
BR 72	Manas	113	6.3 E-06	6.4 E-06	
BGP 11	Tista	183	3.2 E-06	3.2 E-06	
BR 64	Jia Bhareli	270	2.4 E-06	2.4 E-06	
BR 58	Ranga Nadi	202	3.1 E-06	3.1 E-06	
BR 70	Puthimari	155	8.2 E-05	9.9 E-05	
BR 76	Tipkai	246	2.3 E-06	2.4 E-06	
FIGURE CAPTION

Figure 1

(a) Map of the Himalayan chain, which extends between the 72°E and 96°E parallel, forming two arcs, one oriented north west - south east in the west, and another oriented west south west - east north east in the east, after Galy (1999c). (b) Map of the Brahmaputra watershed (see also Fig. 2). (c) Map of the Ganges watershed (see also Fig. 3). (d) Map of the Indus watershed. The abbreviations in the caption correspond to: Trans Himalayan Batholith (THB), Tethyan Sedimentary Series (TSS), High Himalaya Cristalline (HHC), Lesser Himalaya (LH), West Pakistan Fold Belt (WPFB).

Figure 2

Map of the Brahmaputra basin and location of the river samples, modified from Singh and France-Lanord (2002).

Figure 3

Map of the Ganges basin and location of the river samples, modified from Chabaux et al. (2001), Riotte (2001), and Galy et al. (1999a,b). MCT = Main Central Thrust. MFT = Main Frontal Thrust.

Figure 4

Plot of the sediment data points from the Himalayan tributaries of the Brahmaputra in (a) Nd/Na, (b) Sm/Na and (c) Ti/Na versus (²³⁰Th/²³⁸U) diagrams. The positive correlation exhibited in the diagrams would suggest that weathering process is responsible for the U-Th

fractionation, inducing preferential remobilization of U and Na relatively to immobile elements like Nd, Sm and Ti.

Figure 5

Plot of the sediment data points from the Himalayan tributaries of the Brahmaputra in Al/Na versus (²³⁰Th/²³⁸U) diagram. Composition of the HHC is also plotted for reference (black square). The data confirm the role of weathering processes in controlling the U-Th fractionation of the sediments since beginning of alteration.

Figure 6

Calculation of chemical and activity ratios of the Brahmaputra sediments by applying correction of mixing processes from the tributaries : example of the upper part of the Brahmaputra, considering that sediments from the Brahmaputra at Dibrugarh (black squares) are consistent with a mixing between sediments from the eastern tributaries (star symbol) which are added to the sedimentary input from the Siang (grey square). Evolution of the U-Th systematics highlights in this case a decrease of Na/Th ratio (b), and of (²³⁸U/²³²Th) and (²³⁰Th/²³²Th) activity ratios (a), attributed to the occurrence of weathering process.

Figure 7

Calculation of chemical and activity ratios of the Ganges sediments by applying correction of mixing processes from the tributaries : example of the upper part of the Ganges, considering that sediments from the Ganges at patna (black squares) are consistent with a mixing between sediments from the Ghaghara (star symbol) which are added to the sedimentary input from the Ganges at Benares (grey square). As for the Brahmaputra, evolution of the U-Th systematics

highlights a decrease of Na/Th ratio (b), and of $(^{238}U/^{232}Th)$ and $(^{230}Th/^{232}Th)$ activity ratios (a), which is explained by the role of weathering during the transfer of sediments.





Figure 2









185







Figure 7



U/Th

6.3. Déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra dans les matières en suspension du bassin du Gange

Cette étude est focalisée sur les matières en suspension, prélevées selon les cas à différentes profondeurs, du Gange et de ses principaux affluents, la Ghaghara, la Gandak et la Sapt Kosi. L'étude comparée des sédiments grossiers, présentés dans la partie 6.1., et des matières en suspension des rivières du bassin du Gange met en évidence le rôle de la granulométrie et de la minéralogie des sédiments sur leur composition chimique en éléments majeurs et en U-Th-Ra. La variabilité chimique des matières en suspension est expliquée par le rôle des processus de mélange entre les sédiments grossiers et du matériel plus fin ayant des origines variées à l'échelle du bassin. Cette observation n'est pas incompatible avec l'idée que dans le bassin du Gange, les temps de transfert des matières en suspension sont courts comparés aux sédiments de berge et de fond : de l'ordre de quelques milliers d'années.

1. INTRODUCTION

L'étude des sédiments de berge et de fond des rivières du bassin du Gange et du Brahmapoutre par les isotopes des séries de l'uranium a permis de proposer des constantes de temps élevées pour les processus d'altération dans la chaîne ainsi que pour le transfert des sédiments dans les plaines alluviales (Chapitre 6). Dans la chaîne, il a été proposé que ces temps longs, jusqu'à quelques centaines de milliers d'années, traduisent des périodes d'altération importantes dans les profils d'altération avant érosion des sédiments en surface et transfert dans les rivières. Dans la plaine alluviale, le temps de transfert des sédiments grossiers est de l'ordre de 100 ka depuis le Piedmont jusqu'au Gange, de l'ordre de 150 ka le long du Brahmapoutre, et de 500 ka le long du Gange. Ces temps de transfert longs pourraient s'expliquer ou impliquer l'existence de stockages temporaires des sédiments dans le bassin versant au cours de leur transfert comme l'atteste un travail antérieur suggérant qu'au moins 35% des sédiments érodés de la chaîne n'atteignent jamais le domaine marin (Einsele et al., 1996).

Les temps obtenus sont néanmoins longs comparés aux constantes de temps d'altération obtenues dans d'autres études utilisant les nucléides des séries de l'uranium : 9-28 \pm 10 ka dans le bassin de la Mackenzie au Canada (Vigier et al., 2001), 40-90 ka dans le bassin de la Narmada-Tapti en Inde (Vigier et al., 2005), < 10 ka en Islande (Vigier et al., 2006), < 11 ka dans le bassin du Murray en Australie (Dosseto et al., 2006a), 4-20 ka dans le bassin de l'Amazone (Dosseto et al., 2006b) et < 17 \pm 3 ka dans les Andes boliviennes (Dosseto et al., 2006c). Même si le nombre de bassins versants étudiés reste pour le moment encore assez limité, il semble difficile d'expliquer les différences entre les valeurs que nous obtenons pour le système Gange-Brahmapoutre et celles obtenues pour les autres systèmes par des différences de contextes géologiques, climatiques ou humains totalement différents.

Par contre, il apparaît qu'une des différences majeures entre les études du système Gange-Brahmapoutre et les études antérieures réside dans la nature du matériel étudié : des sédiments de fond et de berge, c'est à dire relativement grossiers (dont la taille est approximativement comprise entre 200 et 500 µm), dans le cas du bassin du Gange-Brahmapoutre, et des matières en suspension fines dans les autres études. Cette différence traduirait-elle donc simplement des variations importantes du temps de transfert des sédiments selon leur taille ? C'est cette question que nous proposons d'étudier dans ce chapitre en nous centrant toujours sur la systématique U-Th-Ra, et en focalisant l'étude sur les rivières de la plaine du Gange : le Gange et ses trois principaux affluents himalayens (la Ghaghara, la Gandak et la Kosi).

Pour ce travail nous comparerons en plusieurs endroits de ces rivières les signatures U-Th-Ra des MES et des sédiments de fond qui leurs sont associés, et pour quatre sites d'échantillonnage, trois sur le Gange et un sur la Gandak, nous étudierons les matières en suspensions à différentes profondeurs de la colonne d'eau. Au travers de cette approche nous pensons en effet mettre à profit le tri granulométrique naturel qu'effectue la rivière sur les sédiments transportés pour évaluer les variations U-Th-Ra des sédiments en fonctions de leur taille granulométrique.

2. SITE ETUDIE ET ECHANTILLONNAGE

Cette étude est focalisée sur des matières en suspension prélevées dans le Gange ainsi que ses trois principaux affluents : la Ghaghara, la Narayani-Gandak (appelée Narayani en sortie de chaîne, avant la plaine, et Gandak dans la plaine en Inde), et la Kosi. Pour la Gandak et la Ghaghara, des sédiments argileux sensés représenter la moyenne des dépôts fins transportés en période de mousson ont également été étudiés. Ces trois affluents qui sont en général des rivières en tresses, sont caractérisés par des débits importants (respectivement 95.10⁹, 52.10⁹ et 62.10⁹ m³/an ; Alford, 1992 ; Rao, 1979) et des quantités de matières en suspension transportées considérables (82.10⁶ t/an pour la Gandak, et 43.10⁶ t/an pour la Kosi ; Sinha and Friend, 1994).

Les sites d'échantillonnage des matières en suspension et des sédiments argileux considérés dans cette étude sont reportés sur la figure suivante.



Figure 1 : Carte du bassin du Gange et des lieux de prélèvement des matières en suspension et des sédiments argileux. Pour les matières en suspension, les carrés gris correspondent à des échantillonnages de type transects, à savoir sur l'ensemble de la colonne d'eau, tandis que les carrés bruns correspondent à une seule profondeur d'échantillonnage plus ou moins profonde.

Les matières en suspension ont été collectées à intervalles de distance réguliers le long des rivières au cours de différentes campagnes d'échantillonnage menées en 1993, 2001, 2004 et 2005. Exceptées les matières en suspension en aval de la Ghaghara (7 et 9), et en position intermédiaire de la Gandak (4), toutes les matières en suspension ont été prélevées en période de mousson.

Elles ont été collectées en surface ou suivant des transects, c'est-à-dire à différentes profondeurs du cours d'eau depuis la surface jusqu'en profondeur, de manière à prendre en considération la variabilité granulométrique des sédiments transportés. En effet, la dynamique de l'écoulement crée un tri granulométrique naturel, les phases les plus fines étant en surface et les phases grossières plus en profondeur. Echantillonner à l'échelle de la colonne d'eau permet ainsi de tester le rôle du tri granulométrique sur la composition chimique des sédiments de rivière.

Les matières en suspension de surface ont été prélevées à l'aide d'un filet en période sèche, et à l'aide d'une bouteille en période de mousson. En ce qui concerne l'échantillonnage des transects, il a été réalisé à partir d'un bateau dans le lit principal des rivières où les vitesses sont les plus élevées. Dans ce cas, les matières en suspension ont été prélevées à l'aide d'une bouteille en polypropylène (Nalgene) de 5 litres, lestée et équipée d'une sonde de profondeur préalablement calibrée. Lorsque la profondeur souhaitée est atteinte, la bouteille est ouverte puis ramenée à bord après remplissage et fermeture. La profondeur ayant naturellement tendance à augmenter lorsque le remplissage s'effectue, d'environ 1 mètre, la profondeur de référence retenue est la moyenne des profondeurs avant et après remplissage de la bouteille. Après remplissage, le contenu entier de la bouteille est transféré avec précaution dans des outres à vin en plastique et opaques, qui sont ensuite fermées après avoir pris soin d'éjecter l'air résiduel de l'outre. Les matières en suspension sont finalement récupérées après filtration à 0,2 µm du contenu des outres au travers d'une membrane en nylon de 90 mm de

diamètre, en prenant soin de récupérer les particules susceptibles de rester fixées sur les parois internes des outres de manière à ne pas créer de tri granulométrique autre que naturel.

3. PROCEDURES ANALYTIQUES

Après séchage à l'étuve, les échantillons sont finement broyés et les concentrations en éléments majeurs et traces déterminées par ICP-AES et ICP-MS au Service d'Analyse des Roches et des Minéraux (CRPG, Nancy) après fusion au métaborate de lithium.

Les compositions isotopiques en U et Th ont été déterminées à partir d'approximativement 100 mg d'échantillon mis en solution par attaque triacide combinant HF, HNO₃ et HClO₄. U et Th ont été séparés et purifiés à partir d'une chromatographie sur résine échangeuse d'ions (e.g. Dequincey et al., 2002).

Les concentrations en U et Th d'une part, et en ²²⁶Ra d'autre part ont été déterminées par dilution isotopique. Pour cela, une quantité précisément pesée de 70 mg d'échantillon est spikée à l'aide d'une solution enrichie en ²³⁰Th et ²³⁵U, tandis qu'une quantité de 100 mg est spikée séparément avec une solution enrichie en ²²⁸Ra. Les mélanges spike-échantillons sont dissous à l'aide de HF, HNO₃ et HClO₄. Tandis que U et Th sont séparés et purifiés suivant une méthode présentée par ailleurs (e.g. Granet et al., subm), le Ra est séparé et purifié selon la méthode utilisée actuellement au Centre de Géochimie de la Surface (Pelt, 2007).

Les rapports (234 U/ 238 U) et (230 Th/ 232 Th) sont déduits de la mesure des rapports 234 U/ 235 U et 232 Th/ 230 Th par spectrométrie de masse à thermo-ionisation sur un Thermo-Finnigan Triton, la justesse de la mesure étant contrôlée à partir de l'analyse des standards HU1 et Th105 dont les rapports obtenus sont dans la gamme de valeurs observées pour ces standards (e.g. Granet et al., subm., pour U ; Innocent et al., 2004, pour Th) : 234 U/ 235 U = 0.007582 ± 11 (n=15, 2 σ error), 232 Th/ 230 Th = 217209 ± 910 (n=15, 2 σ error). Enfin, les concentrations sont déduites à partir de la mesure dans les mélanges spike-échantillons des rapports 235 U/ 238 U et 232 Th/ 230 Th sur un VG Sector et de 226 Ra/ 228 Ra sur le Thermo-Finnigan Triton. La validité des concentrations obtenues est vérifiée à partir de l'analyse de duplicats,

dont les concentrations obtenues confirment une reproductibilité meilleure que 1% (voir le tableau de résultats et le chapitre analytique de la thèse).

4. RESULTATS

4.1. Eléments majeurs

Les résultats en éléments majeurs et traces des sédiments utilisés pour ce travail seront présentés en détail et discutés dans le travail de thèse de Galy (2007). Nous ne donnerons que quelques éléments généraux d'information. D'une façon générale lorsque l'on regarde les concentrations en éléments majeurs il apparaît d'assez nettes variations entre les matières en suspension et les sédiments de fond comme cela a déjà été observé pour d'autres systèmes de rivières, le bassin du Congo par exemple (Gaillardet et al., 1995 ; Dupré et al., 1996). Les résultats obtenus sur les profils sédimentaires en fonction de la profondeur font apparaître une nette variation de la composition chimique des sédiments avec la profondeur, et donc dans ce cas avec la granulométrie, marquée essentiellement par un enrichissement en Si et un appauvrissement en Al, Fe, et Mg avec la profondeur (Figures 2 et 3).

Par ailleurs, la synthèse des données obtenues sur l'ensemble des sédiments du bassin du Gange, sédiments grossiers et matières en suspension, fait apparaître d'assez nettes corrélations linéaires entre les variations du rapport (Na₂O+K₂O)/SiO₂ et du rapport Al₂O₃/SiO₂ des sédiments (Fig. 4), de pentes différentes selon les rivières étudiées ou plus exactement selon la position des rivières dans le bassin versant. Dans le diagramme (Na₂O+K₂O)/SiO₂ vs Al₂O₃/SiO₂ (Fig. 4) on peut ainsi définir trois droites différentes : la première (1) pour les sédiments et matières en suspension des rivières de chaîne, ainsi que les sédiments et matières en suspension de la Narayani, la seconde (2) pour les sédiments et matières en suspension de la Gandak et de la Ghaghara, ainsi que l'ensemble des sédiments fins du bassin de la Gomti (données d'après Singh et al., 2005), la troisième (3) pour les sédiments et matières en suspension du Gange en différents lieux de son cours.



Figure 2 : Variation de la teneur en SiO₂, exprimée en poids d'oxyde, analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari.



Figure 3 : Variation de la teneur en Al₂O₃, exprimée en poids d'oxyde, analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari.



Figure 4 : Comparaison de la minéralogie et du degré d'altération de l'ensemble des sédiments des rivières du bassin du Gange. Les données des sédiments de la Gomti sont d'après Singh et al. (2005).

4.2. Concentrations et déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra

Les données U-Th-Ra des matières en suspension et des sédiments argileux sont présentées dans les tableaux de résultats ci-après (Tableau 1 pour les concentrations, et Tableau 2 pour les rapports d'activités). Les résultats obtenus sur les sédiments grossiers ont déjà été présentés et discutés dans le Chapitre 6.

	Date	Ref. sur la carte	Туре	Prof (m)	U (ppm)	Th (ppm)	²²⁶ Ra (fg/g)
Narayani-Gandak							
PB 54	juil-05	1	MES	8,0	2,24	12,91	848
PB 56	juil-05	2	MES	4,0	2,45	13,80	932
PB 58	juil-05	3	MES	0,0	2,86	14,73	1076
BR 338	mai-04	4	MES	-	2,32	15,09	894
BR 335	mai-04	4	séd. arg.	-	2,39	16,26	-
BR 113	août-01	5	MES	2,0	2,61	16,42	1202
BR 113 duplicat					2,64	16,25	1215
Ghaghara							
PB 79	juil-05	6	MES	0,0	1,83	10,36	741
BR 358	mai-04	7	MES	-	1,74	11,63	805
BR 372	mai-04	8	séd. arg.	-	2,44	16,46	-
BR 345	mai-04	9	MES	-	1,98	14,44	789
BR 344	mai-04	9	séd. arg.	-	2,46	17,95	-
Kosi							
BR 102	août-01	10	MES	6,5	1,03	4,55	492
Gange à Benares							
BR 137	août-01	11	MES	7,9	2,39	14,90	1041
BR 138	août-01	12	MES	6,0	2,51	16,31	1364
BR 139	août-01	13	MES	3,0	2,87	17,49	1409
BR 140	août-01	14	MES	1,5	2,75	17,76	1395
Gange à Patna							
BR 118	août-01	15	MES	7,8	1,79	11,06	901
BR 120	août-01	16	MES	3,5	2,41	15,01	1162
BR 122	août-01	17	MES	1,5	2,61	17,37	1252
Gange à Manihari							
BR 107	août-01	18	MES	10,8	2,59	16,59	1219
BR 108	août-01	19	MES	5,2	2,39	16,65	1214
BR 109	août-01	20	MES	1,5	2,43	17,18	1262

Tableau 1 : Valeurs des concentrations en U-Th-Ra des matières en suspension et des sédiments argileux. Pour lesystème Narayani-Gandak, les échantillons 1 à 3 représentent la Narayani, les autres (4 et 5) la Gandak.

	Date	Ref. sur la carte	Туре	Prof (m)	(²³⁸ U/ ²³² Th)	(²³⁰ Th/ ²³² Th)	(²³⁰ Th/ ²³⁸ U)	(²³⁴ U/ ²³⁸ U)	(²²⁶ Ra/ ²³⁰ Th)
Narayani-Gandak									
PB 54	juil-05	1	MES	8,0	0,526	0,556	1,06	1,025	1,062
PB 56	juil-05	2	MES	4,0	0,539	0,572	1,06	1,015	1,062
PB 58	juil-05	3	MES	0,0	0,588	0,614	1,04	1,026	1,071
BR 338	mai-04	4	MES	-	0,466	0,556	1,19	1,026	0,959
BR 335	mai-04	4	séd. arg.	-	0,445	0,578	1,30	1,008	-
BR 113	août-01	5	MES	2,0	0,482	0,692	1,44	1,035	0,951
Ghaghara									
PB 79	juil-05	6	MES	0,0	0,535	0,542	1,01	1,012	1,187
BR 358	mai-04	7	MES	-	0,453	0,555	1,23	1,005	1,121
BR 372	mai-04	8	séd. arg.	-	0,450	0,651	1,45	1,003	-
BR 345	mai-04	9	MES	-	0,416	0,607	1,46	1,016	0,810
BR 344	mai-04	9	séd. arg.	=	0,415	0,661	1,59	1,001	-
Kosi									
BR 102	août-01	10	MES	6,5	0,686	0,840	1,22	1,017	1,158
Gange à Benares									
BR 137	août-01	11	MES	7,9	0,486	0,529	1,09	0,993	1,188
BR 138	août-01	12	MES	6,0	0,466	0,591	1,27	1,007	1,273
BR 139	août-01	13	MES	3,0	0,497	0,697	1,40	1,014	1,040
BR 140	août-01	14	MES	1,5	0,469	0,771	1,64	1,007	0,917
Gange à Patna									
BR 118	août-01	15	MES	7,8	0,491	0,675	1,38	1,015	1,086
BR 120	août-01	16	MES	3,5	0,487	0,648	1,33	1,026	1,075
BR 122	août-01	17	MES	1,5	0,455	0,658	1,45	1,021	0,985
Gange à Manihari									
BR 107	août-01	18	MES	10,8	0,473	0,630	1,33	1,025	1,049
BR 108	août-01	19	MES	5,2	0,435	0,651	1,50	1,023	1,007
BR 109	août-01	20	MES	1,5	0,429	0,663	1,55	1,025	0,997

Tableau 2 : Valeurs des rapports d'activités de la systématique U-Th-Ra des matières en suspension et des sédiments argileux. Pour le système Narayani-Gandak, les échantillons 1 à 3 représentent la Narayani, les autres (4 et 5) la Gandak.

4.2.1. Variations dans les profils de matières en suspension en fonction de la profondeur

A l'échelle de la colonne d'eau, que ce soit pour les trois profils du Gange ou le profil de la Narayani, les données font apparaître des tendances systématiques de la surface vers la profondeur. En terme de concentrations, les MES sont d'autant plus riches en U, Th et Ra qu'elles sont en surface (Fig. 5, 6 et 7), et donc a priori de granulométrie plus fine. En terme de déséquilibres, les MES du transect de la Narayani sont caractérisées par des rapports (²³⁰Th/²³⁸U), (²³⁴U/²³⁸U) et (²²⁶Ra/²³⁰Th) assez homogènes à l'échelle de la colonne d'eau (Fig. 8). Seuls les rapports (²³⁸U/²³²Th) et (²³⁰Th/²³²Th) ont des valeurs qui augmentent vers la surface (Fig. 9 pour (²³⁰Th/²³²Th)). Dans le cas des transects de MES du Gange, les rapports (²³⁰Th/²³²Th) et (²²⁶Ra/²³⁰Th) qui tendent à augmenter vers la surface, contrairement au déséquilibre (²²⁶Ra/²³⁰Th) qui tend à diminuer. Le déséquilibre (²³⁴U/²³⁸U) ne présente pas de variations significatives à l'échelle de la colonne d'eau (Fig. 9, 10 et 11).



Figure 5 : Variation de la teneur en U analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari.



Figure 6 : Variation de la teneur en Th analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari.



Figure 7 : Variation de la teneur en ²²⁶Ra analysée dans les matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau de la Narayani ainsi que du Gange à Benares, Patna et Manihari.



Figure 8 : Variation des déséquilibres (²³⁰Th/²³⁸U), (²³⁴U/²³⁸U) et (²²⁶Ra/²³⁰Th) des matières en suspension prélevées en sortie de chaîne, à différentes profondeurs, au niveau de la Narayani.



Figure 9 : Variation du rapport (²³⁰Th/²³²Th) des matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau du Gange à Benares, Patna et Manihari.



Figure 10 : Variation du rapport (²³⁰Th/²³⁸U) des matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau du Gange à Benares, Patna et Manihari.



Figure 11 : Variation du rapport (²²⁶Ra/²³⁰Th) des matières en suspension prélevées à différentes profondeurs au niveau du Gange à Benares, Patna et Manihari.

4.2.2. Variations géographiques

a. Cas de la Narayani-Gandak

D'amont en aval de la Narayani-Gandak, les rapports (²³⁸U/²³²Th) et (²²⁶Ra/²³⁰Th) des matières en suspension tendent à diminuer. A l'inverse, les rapports (²³⁰Th/²³²Th) et (²³⁰Th/²³⁸U) tendent à augmenter. Le (²³⁴U/²³⁸U) reste assez constant autour d'une valeur en déséquilibre, supérieure à 1. Par ailleurs, des observations systématiques apparaissent lorsqu'on compare les compositions chimiques des matières en suspension et des sédiments argileux avec celles des sédiments grossiers prélevés au même endroit. En particulier, les sédiments argileux et les matières en suspension de la Gandak présentent systématiquement des rapports (²³⁰Th/²³²Th) significativement supérieurs aux rapports mesurés dans les sédiments grossiers associés. De plus, l'augmentation régulière des rapport Al₂O₃/SiO₂. Les corrélations obtenues définissent des tendances linéaires (Fig. 12), chaque tendance comprenant sédiment grossier et matière en suspension prélevée au même endroit.

b. Cas du Gange

Au niveau du Gange, il est difficile d'établir des observations systématiques d'amont en aval car les variations chimiques observées sur la colonne d'eau en amont sont aussi importantes que pour les points plus en aval. Par contre, comme pour la Gandak, la comparaison des compositions chimiques des sédiments grossiers et des matières en suspension montre que les matières en suspension du Gange ont des rapports (²³⁰Th/²³²Th) supérieurs à ceux des sédiments grossiers collectés au même endroit, et que ces rapports définissent à nouveau une tendance linéaire avec le rapport Al_2O_3/SiO_2 (Fig. 13). Les sédiments de berge et de fond n'ont pas été analysés en Ra, mais l'ensemble des matières en suspension du Gange définissent au premier ordre une tendance linéaire dans le diagramme ($^{226}Ra/^{230}Th$) vs ($^{238}U/^{230}Th$) (Fig. 14).

c. Cas de la Kosi et de la Ghaghara

A l'image de la Narayani-Gandak, les rapports (²³⁸U/²³²Th) et (²²⁶Ra/²³⁰Th) des matières en suspension de la Ghaghara tendent à diminuer d'amont en aval, tandis que les rapports (²³⁰Th/²³²Th) et (²³⁰Th/²³⁸U) tendent à augmenter et que le (²³⁴U/²³⁸U) reste constant autour d'une valeur en déséquilibre et supérieure à 1. La comparaison des compositions chimiques des sédiments grossiers et des matières en suspension de la Ghaghara fait apparaître une différence systématique par rapport à la Gandak et au Gange, avec en particulier un rapport (²³⁰Th/²³²Th) significativement inférieur dans les matières en suspension par rapport aux sédiments grossiers, excepté en aval de la Ghaghara où les rapports sont similaires. Seuls les sédiments argileux de la Ghaghara présentent des rapports (²³⁰Th/²³²Th) supérieurs aux sédiments grossiers associés comme cela est observé pour la Narayani-Gandak.

Seul un point de la Kosi ayant été analysé, en aval avant la confluence de la Kosi avec le Gange, il n'est pas possible de savoir si l'évolution chimique des matières en suspension le long de la Kosi est du même ordre que pour la Gandak et la Ghaghara. Ce point ne sera pas donc pas discuté en détail par la suite.



Figure 12 : Variation du rapport (²³⁰Th/²³²Th) avec le rapport Al₂O₃/SiO₂ dans le cas des sédiments et matières en suspension de la Narayani-Gandak.



 $Figure \ 13: Variation \ du \ rapport \ (^{230}Th/^{232}Th) \ avec \ le \ rapport \ Al_2O_3/SiO_2 \ dans \ le \ cas \ des \ sédiments \ du \ Gange.$



Figure 14 : Représentation des données U-Th-Ra des matières en suspension du Gange dans le diagramme (²²⁶Ra/²³⁰Th) vs (²³⁸U/²³⁰Th). Le domaine théorique des sédiments grossiers du Gange est également représenté sur la base des données connues et discutées par ailleurs (Chapitre 6).

5. DISCUSSION

5.1. Apport des éléments majeurs

D'après Galy et al. (subm.), les variations des teneurs en SiO₂ et Al₂O₃ avec la profondeur résultent de tris minéralogiques liés au gradient de la vitesse d'écoulement à l'échelle de la colonne d'eau. En effet, les minéraux comme le quartz se concentrent dans les sédiments les plus profonds de la rivière tandis que les phyllosilicates demeurent en surface dans les matières en suspension. Ainsi, le tri minéralogique peut être décrit comme un mélange entre des sources de composition minéralogique observé est associé à un tri granulométrique puisque la compilation de données existantes sur la taille des particules de sédiments prélevés dans le bassin du Gange (autres que les sédiments analysés ici), déterminée par granulométrie laser, suggère que les sédiments sont d'autant plus fins qu'ils sont enrichis en Al₂O₃ (Fig. 15).



 $\label{eq:Figure 15: Relation entre le rapport Al_2O_3/SiO_2 \mbox{ et la taille des particules (μm$) pour les sédiments des rivières du bassin du Gange.}$

Comme nous l'avons présenté dans la partie résultats, il est possible de définir trois corrélations distinctes lorsqu'on combine le rapport Al_2O_3/SiO_2 à un indice d'altération comme (Na_2O+K_2O)/SiO₂ pour l'ensemble des phases solides, c'est-à-dire tous sédiments et matières en suspension confondus. Les trois pôles ont par conséquent une minéralogie et un degré d'altération différent (Fig. 16).



Figure 16 : Comparaison de la minéralogie et du degré d'altération de l'ensemble des sédiments des rivières du bassin du Gange. Les données des sédiments de la Gomti sont d'après Singh et al. (2005).

Chacune de ces corrélations peut être interprétée, comme le propose Galy et al. (subm.), en terme de mélange entre un pôle sédimentaire grossier et un pôle sédimentaire composé de phases plus fines. Ainsi, la composition chimique des matières en suspension des rivières de la plaine du Gange s'explique par des mélanges entre un pôle sédimentaire grossier aux caractéristiques géochimiques communes à l'ensemble des sédiments de la plaine, et un pôle sédimentaire fin variable chimiquement à l'échelle du bassin du Gange.

Le fait que les matières en suspension de la Narayani, et au niveau intermédiaire de la Gandak, se situent sur la droite délimitée par les matières en suspension de rivières de chaîne suggère que dans cette partie de la Narayani-Gandak, les matières en suspension constituent un mélange entre du matériel grossier et du matériel plus fin de chaîne constitué de minéraux primaires et par conséquent peu évolués comme les feldspaths, les micas, et les argiles. Dans la partie la plus aval de la Gandak, cette systématique disparaît : les matières en suspension se situent sur la droite définie par l'ensemble des sédiments de la Gomti, dont le pôle caractéristique des matériaux fins est défini par les matières en suspension du bassin de la Gomti qui sont présentées et discutées par ailleurs (Singh et al., 2005). Enfin, l'ensemble des matières en suspension du Gange se situent sur une droite de mélange de pente encore différente, où le pôle caractéristique des matériaux fins amenés n'est pas connu mais serait constitué de matériaux dont le rapport Na₂O+K₂O/SiO₂ (pour un rapport Al₂O₃/SiO₂ donné) serait plus bas que celui défini par les sédiments de la Gomti. Si on admet que les pentes des droites définies dans le diagramme de la figure 16 traduisent le caractère plus ou moins altéré du sédiment fin transporté par ces rivières il apparaît alors immédiatement une augmentation du degré d'altération moyen du sédiment fin transporté par les rivières himalayennes depuis la chaîne vers le Gange (voir Galy et al., subm.).

5.2. Déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th

Un des résultats qui apparaît assez nettement lorsque l'on s'intéresse aux déséquilibres radioactifs est la différence systématique pour un site donné entre les déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th des matières en suspension et des sédiments de fond. A l'échelle de la colonne d'eau,

les déséquilibres présentent des variations assez générales pour les matières en suspension en fonction de la profondeur. Ces variations ne sont pas nécessairement monotones et peuvent différer d'un site à l'autre. Nous proposons de présenter et discuter ces données pour les tributaires du Ganges dans un premier temps, puis pour le Gange. Il est rappelé à ce stade de la discussion que tous les échantillons de matières en suspension que nous avons analysés n'ont pas nécessairement la même signification. Pour le Gange ainsi que pour les parties les plus amont (Narayani) et aval de la Gandak, les matières en suspension ont été prélevées en période de mousson. Par contre, les matières en suspension des parties intermédiaire et aval de la Ghaghara, ainsi que de la partie intermédiaire de la Gandak, ont été prélevées en période sèche. Pour cette période, des sédiments de type "argileux", supposés représenter une moyenne de dépôts fins (assimilés à des matières en suspension transportés en période de mousson), ont également été analysés.

5.2.1. Cas de la Narayani-Gandak

Lorsque les données des sédiments grossiers et de fond sont comparées avec celles des matières en suspension dans les diagrammes (²³⁰Th/²³²Th) vs (²³⁸U/²³²Th), et (²³⁴U/²³⁸U) vs (²³⁰Th/²³⁸U), deux tendances linéaires peuvent être définies (Figures 17 et 18) : la première pour les sédiment et matières en suspension de la Narayani (amont), la seconde pour les sédiments et matières en suspension de la Gandak (aval). Seule la matière en suspension du point intermédiaire de la Gandak, prélevée en période sèche, sort de cette seconde corrélation.



Figure 17 : Comparaison des données U-Th des différents types de sédiments transportés par la Narayani-Gandak dans le diagramme isochrone.


Figure 18 : Comparaison des données U-Th des différents types de sédiments transportés par la Narayani-Gandak dans le diagramme (²³⁴U/²³⁸U) vs (²³⁰Th/²³⁸U).

Ces alignements sont tout à fait compatibles avec le schéma d'interprétation proposé sur la base des variations en éléments majeurs, c'est-à-dire que les variations de compositions chimiques des phases solides en fonction de leur taille traduisent un mélange entre une fraction grossière et une fraction fine. Dans un tel scénario de mélange, les points de données doivent en effet s'aligner le long d'une droite dans un diagramme (²³⁰Th/²³²Th) vs (²³⁸U/²³²Th) entre les points représentatifs de la fraction grossière et les points représentatifs de la fraction la plus fine, ce qui est bien le cas de la Narayani-Gandak. Les caractéristiques U-Th du pôle grossier sont assimilables aux données U-Th mesurées dans les sédiments de berge et de fond. Les caractéristiques U-Th du pôle fin peuvent quant à elle être déterminées pour chacune des deux tendances observées en mettant à profit les corrélations quasi linéaires observées entre les rapports d'activités ($^{238}U/^{232}Th$), ($^{230}Th/^{232}Th$) et le rapport Al₂O₃/SiO₂, et déjà présentées dans la partie résultats.

Cette approche impose de connaître le rapport Al₂O₃/SiO₂ du pôle fin amené. Si l'on admet comme le propose Galy et al. (subm.) que le rapport Al₂O₃/SiO₂ est peu sensible au degré d'altération des sédiments alors en prenant comme valeur caractéristique de ce rapport la valeur donnée par les matières en suspension fines de la Gomti (0.293 ± 10% en moyenne), il est possible de déterminer les caractéristiques U-Th des pôles (Figures 19 et 20). Pour le pôle fin amont, les valeurs calculées pour ($^{238}U/^{232}Th$) varient entre 0.61 et 0.66, tandis que les valeurs retenues pour ($^{230}Th/^{232}Th$) varient de 0.63 à 0.68. De la même manière, pour le pôle fin aval, les valeurs calculées pour ($^{238}U/^{232}Th$) varient entre 0.48 et 0.51, tandis que les valeurs retenues pour ($^{230}Th/^{232}Th$) varient de 0.70 à 0.78.



Figure 19 : Détermination du rapport (238 U/ 232 Th) du pôle amont et du pôle aval, basée sur l'hypothèse que les tendances sont des droites de mélange et que le rapport Al₂O₃/SiO₂ de ce pôle est la valeur moyenne des matières en suspension de la Gomti : 0.293.



Figure 20 : Détermination du rapport (230 Th/ 232 Th) du pôle amont et du pôle aval, basée sur l'hypothèse que les tendances sont des droites de mélange et que le rapport Al₂O₃/SiO₂ de ce pôle est la valeur moyenne des matières en suspension de la Gomti : 0.293.

Le schéma proposé précédemment conduit à déterminer un pôle amont ayant un $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ compris entre 0.95 et 1.11, et un pôle aval ayant un $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ compris entre 1.37 et 1.62. Ces valeurs sont tout à fait cohérentes avec la représentation des données dans le diagramme $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$ vs $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})$ (Fig. 21) qui suggère également que les pôles doivent être en déséquilibre $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$, avec des valeurs supérieures à 1.



Figure 21 : Représentation des pôles de mélange dans le diagramme Concordia.

Dans le schéma de mélanges proposé, on constate que la matière en suspension de la Gandak prélevée en période sèche s'aligne sur une droite entre le sédiment de fond correspondant et le pôle amont. Ceci est cohérent avec l'étude des éléments majeurs.

Une première explication simple pour rendre compte de ces données serait de considérer que, dans la chaîne, les phases fines représenteraient essentiellement du matériel peu fractionné, ayant un déséquilibre (²³⁴U/²³⁸U) supérieur à 1, et que les matières en suspension de plaine correspondent à du matériel bien plus fractionné, également en déséquilibre (²³⁴U/²³⁸U) supérieur à 1. Comme les diagrammes des déséquilibres font apparaître des systématiques de mélanges, qui ne sont donc pas des variations liées au temps, il serait tendant de proposer sur la base de ces seules données un scénario de transfert rapide

des particules fines d'amont en aval accompagné néanmoins d'un accroissement de fractionnement U-Th d'amont en aval.

5.2.2. Cas du Gange

Dans le cas du Gange, la comparaison des données entre sédiments grossiers et matières en suspension dans les diagrammes (²³⁰Th/²³²Th) vs (²³⁸U/²³²Th), et (²³⁴U/²³⁸U) vs (²³⁰Th/²³⁸U), ne fait pas apparaître d'alignement simple à l'échelle locale ni à l'échelle globale. Par contre, des tendances systématiques apparaissent lorsqu'on découple les matières en suspension en fonction de leur taille (Figures 22 et 23). Ces tendances correspondent à des alignements entre les matières en suspension et les sédiments grossiers qui leurs sont associés, mais à l'inverse de la Narayani-Gandak, il est possible de définir systématiquement deux tendances pour chaque site d'échantillonnage : une tendance comprenant le sédiment grossier et les matières en suspension de moyenne et forte profondeur, une seconde tendance comprenant le sédiment grossier et les matières en suspension de surface. L'ensemble de ces alignements converge vers 2 pôles distincts. Seul un point ne définit pas une tendance vers l'un de ces pôles, il s'agit de la matière en suspension la plus profonde du point le plus en amont du Gange. Ce point ne sera pas discuté en détail, mais il pourrait simplement traduire le mélange vers un pôle constitué de matériaux himalayens.

Sur les deux pôles définis, le pôle qui influencerait la composition chimique des matières en suspension de moyenne et forte profondeur présente des caractéristiques chimiques qui semblent tout à fait compatibles avec le pôle aval déterminé pour la Gandak, que ce soit dans le diagramme isochrone (Figure 22) ou dans le diagramme (²³⁴U/²³⁸U) vs (²³⁰Th/²³⁸U) (Figure 23). L'autre pôle, qui n'influencerait que la composition chimique des matières en suspension les plus superficielles du Gange, a des caractéristiques U-Th qui sont

inconnues, mais avec a priori un ($^{238}U/^{232}Th$) plus faible et un ($^{230}Th/^{232}Th$) plus élevé que le premier pôle (Figure 22).



Figure 22 : Représentation des données U-Th des matières en suspension du Gange dans le cadre d'un scénario de mélange local entre le sédiment grossier et les matières en suspension associées.



Figure 23 : Représentation des données U-Th des matières en suspension du Gange dans le cadre d'un scénario de mélange local entre le sédiment grossier et les matières en suspension associées.

A l'image de l'approche proposée pour la Gandak, les caractéristiques U-Th du pôle spécifique aux matières en suspension les plus superficielles du Gange peuvent être déterminées à partir des corrélations observées entre les rapports d'activités ($^{238}U/^{232}Th$), ($^{230}Th/^{232}Th$) et le rapport Al₂O₃/SiO₂ pour les points concernés par ce pôle. Pour cette approche, nous supposons que le rapport Al₂O₃/SiO₂ du pôle fin amené reste le même que précédemment, avec une valeur moyenne de 0.293 ± 10%. Les valeurs calculées pour ce pôle sont ($^{238}U/^{232}Th$) = 0.44 - 0.48, et ($^{230}Th/^{232}Th$) = 0.71 - 0.83 (Figures 24 et 25).

Le schéma proposé précédemment conduit à déterminer un pôle ayant un (230 Th/ 238 U) compris entre 1.48 et 1.88, ce qui est tout à fait cohérent avec la représentation des données dans le diagramme (234 U/ 238 U) vs (230 Th/ 238 U) qui suggère également que ce pôle est en déséquilibre (234 U/ 238 U), avec une valeur supérieure à 1.



Figures 24 et 25 : Détermination des rapports ($^{238}U/^{232}Th$) et ($^{230}Th/^{232}Th$) du pôle spécifique des matières en suspension de surface du Gange, basée sur l'hypothèse que les tendances sont des droites de mélange et que le rapport Al₂O₃/SiO₂ de ce pôle est la valeur moyenne des matières en suspension de la Gomti : 0.293.

Sur la base de la discussion présentée, et comme cela est représenté en figure 22, le scénario permettant de concilier l'ensemble des données consisterait à envisager que des phases fines himalayennes sont transférées dans les rivières de plaine et, qu'au fur et à mesure de leur transfert, elles se mélangent dans un premier temps avec du matériel de plaine, enrichi en (²³⁰Th/²³²Th) et qui aurait déjà sédimenté, puis en aval avec des matériaux issus d'un pôle très fractionné encore plus enrichi en (²³⁰Th/²³²Th). L'origine de ces pôles est posée et sera discutée par la suite.

5.2.3. Le cas particulier de la Ghaghara

Les matières en suspension de la Ghaghara présentent des signatures tout à fait atypiques par rapport aux sédiments grossiers prélevés au même endroit, avec des signatures (²³⁰Th/²³²Th) inférieures à celles des sédiments grossiers sauf dans la partie la plus aval de la Ghaghara où le sédiment et la matière en suspension associée ont les mêmes caractéristiques U-Th (Fig. 26).

Ce caractère atypique peut être expliqué en première approximation par le fait que ces matières en suspension de période sèche ont été prélevées à l'aide d'un filet. Un tel mode de prélèvement pourrait créer un tri granulométrique où les phases les plus fines sont perdues. Cette hypothèse permettrait d'expliquer pourquoi le sédiment grossier et la matière en suspension de la partie la plus aval de la Ghaghara ont des caractéristiques U-Th similaires. Dans cette partie, la matière en suspension serait donc essentiellement composée de phases caractéristiques des sédiments grossiers.



Figure 26 : Représentation des données U-Th dans le diagramme isochrone pour l'ensemble des phases solides transportées par la Ghaghara.

Par contre, les sédiments argileux de la Ghaghara présentent des signatures (²³⁰Th/²³²Th) supérieures à celles des sédiments grossiers associés, ce qui semble cohérent avec les observations de la Narayani-Gandak et du Gange impliquant que des matériaux fins de plaine, enrichis en (²³⁰Th/²³²Th), sont mélangés aux sédiments grossiers pour rendre compte des compositions chimiques des matières en suspension (assimilées aux sédiments argileux pour la période sèche).

Les matières en suspension de la Ghaghara prélevées en période sèche présentent des caractéristiques chimiques tout à fait atypiques, attribuées en première approximation à leur mode de prélèvement. Il est intéressant de noter que la matière en suspension de la Gandak, prélevée en période sèche, présentait également une signature a priori atypique comparée aux autres matières en suspension dans le cadre du scénario de mélanges proposé. Ceci suggère

néanmoins l'importance d'étudier par la suite les processus de transport des matières en suspension en période sèche qui semblent traduire des mécanismes particuliers.

5.3. Origine des matières fines des différents pôles et temps de transfert des MES

Les données obtenues à partir de l'analyse des nucléides des séries de l'uranium sont compatibles avec la systématique de mélange déduite de l'analyse des éléments majeurs. Dans le cas de la Narayani-Gandak, il a été montré que deux pôles de mélange devaient être invoqués : un pôle amont constitué de minéraux primaires de chaîne et un pôle aval, plus fractionné, appauvri en (²³⁸U/²³²Th) et enrichi en (²³⁰Th/²³²Th), dont les caractéristiques chimiques sont proches des matières en suspension du bassin de la Gomti. Dans le cas du Gange, il a été montré que les compositions chimiques des matières en suspension de moyenne et forte profondeur peuvent s'expliquer par l'ajout de phases fines depuis le même pôle que celui invoqué pour l'aval de la Gandak. Les compositions chimiques des matières en suspension de surface du Gange imposent quant à elles de considérer un autre pôle, encore plus fractionné, appauvri en (²³⁸U/²³²Th) et enrichi en (²³⁰Th/²³²Th). L'origine des phases fines qui constituent ces différents pôles est maintenant discutée.

La première hypothèse consiste à suggérer que les différents pôles sont constitués de phases fines ayant une origine commune et que leurs signatures U-Th variables traduisent simplement un degré de maturation différent de ces phases fines (voir la courbe de maturation croissante des phases fines dans le diagramme isochrone par exemple, Fig. 27).



Figure 27 : Scénario de maturation croissante des phases fines constituant les différents pôles.

Dans le scénario proposé, les phases fines sont d'autant plus évoluées qu'elles sont fractionnées avec des déséquilibres (²³⁰Th/²³⁸U) de plus en plus importants, appauvries en U, et enrichies en (²³⁰Th/²³²Th). Aucun des modèles connus d'altération (voir une synthèse dans Chabaux et al., 2003), que ce soit le modèle d'évolution en système clos, le modèle de lessivage continu d'uranium (i.e. Vigier et al., 2001), le modèle de perte et de gain d'uranium (i.e. Dequincey et al., 2002) ou encore le modèle de comminution proposé pour le (²³⁴U/²³⁸U) uniquement (DePaolo et al., 2006) ne permettent de rendre compte d'une telle évolution chimique de la systématique U-Th. Nous proposons comme alternative de considérer que les pôles ont des histoires différentes, et que par conséquent la source des matières en suspension n'est pas homogène à l'échelle du bassin du Gange.

En supposant que les phases fines qui constituent les différents pôles sont des phases himalayennes anciennes, et que la source de ces phases fines a gardé une composition chimique U-Th homogène au cours du temps, alors les compositions U-Th des différents pôles peuvent être simplement expliquées en supposant que les fines qui constituent ces pôles sont des fines himalayennes enrichies anciennement en uranium et remobilisées actuellement (voir le diagramme isochrone par exemple, Fig. 28).



Figure 28 : Schéma d'enrichissement ancien en U.

Sur la base d'études en cours sur les profils d'altération dans les Vosges et en Amazonie (i.e. Pelt et al., 2006), nous proposons que cet enrichissement ancien en uranium se fasse dans les horizons les plus superficiels des sols de plaine et qu'il pourrait être attribué au recyclage des éléments par la végétation. Dans un tel scénario, les matières en suspension devraient ainsi s'enrichir en éléments biogènes au fur et à mesure que leurs degrés de mélange avec des pôles de plus en plus évolués (et enrichis en (²³⁰Th/²³²Th)) soient importants. C'est ce que nous observons pour les éléments les plus biogènes : K (Fig. 29), Rb (Fig. 30) et Ba (Fig. 31). Ceci serait parfaitement en accord avec une conclusion déduite de l'étude des éléments majeurs (Galy et al., subm.) à savoir qu'actuellement, dans la plaine du Gange, l'érosion remanie préférentiellement la fraction la plus fine des sols.

Les variations des compositions chimiques des matières en suspension transportées dans les rivières du bassin du Gange sont expliquées par des scénarios de mélange entre des sédiments grossiers et des matériaux plus fins enrichis anciennement en uranium par le recyclage de la végétation. Ces scénarios ne permettent pas d'appliquer les modèles classiquement proposés pour déduire des constantes de temps d'altération ou de transfert sédimentaire mais semblent tout à fait compatibles avec l'idée que le transfert des matières en suspension est rapide car la variation des compositions chimiques des matières en suspension est contrôlée par les processus de mélange. L'acquisition des données en Ra est à poursuivre, en particulier sur les sédiments grossiers du bassin, mais les résultats préliminaires obtenus sur les matières en suspension semblent tout à fait cohérents avec les processus de mélange proposés, et donc avec l'idée d'un transfert rapide des matières en suspension, puisque l'ensemble des matières en suspension du Gange définissent des alignements dans le diagramme (²²⁶Ra/²³⁰Th) vs (²³⁸U/²³⁰Th).



Figure 29 : Relation entre l'augmentation du (²³⁰Th/²³²Th) et de la teneur en éléments biogènes. Cas du K.



Figure 30 : Relation entre l'augmentation du (²³⁰Th/²³²Th) et de la teneur en éléments biogènes. Cas du Rb.



Figure 31 : Relation entre l'augmentation du (²³⁰Th/²³²Th) et de la teneur en éléments biogènes. Cas du Ba.

5.4. Implications sur les bilans de masse

L'étude des matières en suspension a mis en évidence qu'il peut y avoir des variations importantes de la systématique U-Th-Ra à l'échelle de la colonne d'eau. Une des conséquences immédiates de cette observation est qu'il n'est pas possible de ne se focaliser que sur les matières en suspension de surface pour établir des constantes de temps de résidence ou effectuer des bilans de masse pour tester si l'érosion agit ou non à l'état stationnaire.

Cette approche fut proposée par exemple dans le cas des rivières des Andes (Dosseto et al., 2006a). Ces auteurs proposaient de recalculer les quantités de matières en suspension prédites par un modèle d'état stationnaire d'altération à partir de l'analyse du déséquilibre (²³⁰Th/²³⁸U) dans la phase dissoute et les matières en suspension. Les différences observées

entre les quantités de matières en suspension prédites par ce modèle et réellement observées furent interprétées par le fait que l'altération n'agit pas à l'état stationnaire (Fig. 32).



Figure 32 : Comparaison entre les quantités de matières en suspension observées et calculées à l'aide d'un modèle d'état stationnaire pour les rivières des Andes. Modifiée d'après Dosseto et al. (2006a).

A partir de nos données, il est possible d'évaluer l'influence de la variabilité du déséquilibre à l'échelle de la colonne d'eau sur le calcul d'état stationnaire. Dans le cas des matières en suspension des transects de la Narayani-Gandak, et du Gange à Benares, Patna et Manihari, nous avons observé que le déséquilibre (²³⁰Th/²³⁸U) pouvait perdre de 5 à 33% de sa valeur brute entre les matières en suspension de surface et les plus profondes. En admettant que cette diminution du déséquilibre (²³⁰Th/²³⁸U) avec la profondeur est également valable dans le cas des matières en suspension des rivières andines, nous observons qu'il est tout à fait possible de prédire des quantités de matières en suspension identiques aux quantités réellement observées (Fig. 33).



Figure 33 : Comparaison entre les quantités de matières en suspension observées et calculées à l'aide d'un modèle d'état stationnaire pour les rivières des Andes. Les pourcentages indiquent la correction apportée sur le déséquilibre (²³⁰Th/²³⁸U) pour être à l'état stationnaire (carrés gris).

En conséquence, la variabilité géochimique des déséquilibres des matières en suspension observée à l'échelle de la colonne d'eau – en particulier le (230 Th/ 238 U) - pourrait remettre en cause les études précédentes où le fait que le bilan de masse ne boucle pas fut interprété comme un état non stationnaire de l'érosion (e.g. Dosseto et al., 2006a).

6. CONCLUSION

L'étude comparée des sédiments grossiers et des matières en suspension des rivières du bassin du Gange met en évidence le rôle de la granulométrie et de la minéralogie des sédiments sur leur composition chimique en éléments majeurs. La variabilité observée à partir des éléments majeurs est également vérifiée pour les valeurs de la systématique U-Th-Ra des sédiments dans ces rivières. Elle suffirait à expliquer l'état non stationnaire de l'érosion suggéré pour d'autres bassins mondiaux en utilisant les déséquilibres de l'uranium pour réaliser le bilan de masse à partir des matières en suspension de surface uniquement. La variabilité chimique des matières en suspension est expliquée par le rôle des processus de mélange entre les sédiments grossiers et du matériel plus fin ayant des origines variées. En conséquence, le temps de transfert des matières en suspension dans ce bassin ne peut pas être simplement déduit des approches classiquement utilisées pour lesquelles la source des sédiments est considérée comme homogène. Néanmoins, le rôle des mélanges sur la composition chimique des sédiments de rivières implique que la décroissance radioactive n'est pas conséquente sur l'échelle de temps de transfert des matières en suspension dans les rivières, ce qui implique des temps de transfert courts dans les rivières comparés aux sédiments de berge et de fond de l'ordre de quelques milliers d'années.

REFERENCES

Alford D., 1992. Hydrological aspects of the Himalayan region. ICIMOD Occasional paper.

Chabaux, F., Riotte, J., Dequincey, O., 2003. U-Th-Ra fractionation during weathering and river transport, in : B. Bourdon, G. M. Henderson, C.C. Lundstrom, S.P. Turner (Eds.), Uranium-series Geochemistry, Reviews in Mineralogy and Geochemistry, vol. 52, Geochemical Society-Mineralogical Society of America, Washington, 533-576.

DePaolo, D.J., Maher, K., Christensen, J.N., McManus, J., 2006. Sediment transport time measured with U-series isotopes: Results from ODP North Atlantic drift site 984. Earth Planet. Sci. Lett. 248, 394-410.

Dequincey, O., Chabaux, F., Clauer, N., Sigmarsson, O., Liewig, N., Leprun, J. C., 2002. Chemical mobilizations in laterites : evidence from trace elements and ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria. Geochim. Cosmochim. Acta 66, 1197-1210.

Dosseto, A., Bourdon, B., Gaillardet, J., Maurice-Bourgoin, L., Allègre, C.J., 2006a. Weathering and transport of sediments in the Bolivian Andes: Time constraints from uranium-series isotopes. Earth Planet. Sci. Lett. 248, 759-771.

Dosseto, A., Bourdon, B., Gaillardet, J., Allègre, C.J., Filizola, N., 2006b. Time scale and conditions of weathering under tropical climate : Study of the Amazon basin with U-series. Geochim. Cosmochim. Acta 70, 71-89.

Dosseto, A., Turner, S.P., Douglas, G.B., 2006c. Uranium-series isotopes in colloids and suspended sediments: Timescale for sediment production and transport in the Murray-Darling River system. Earth Planet. Sci. Lett. 246, 418-431.

Dupré, B., Gaillardet, J., Rousseau, D., Allègre, C.J., 1996. Major and trace elements of riverborne material: The Congo Basin. Geochim. Cosmochim. Acta 60, 1301-1321.

Einsele, G., Ratschbacher, L., Wetzel, A., 1996. The Himalaya-Bengal Fan Denudation-Accumulation System during the Past 20 Ma. J. Geol. 104, 163-184.

Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., 1995. A global geochemical mass budget applied to the Congo Basin rivers: Erosion rates and continental crust composition. Geochim. Cosmochim. Acta 59, 3469-3485.

Galy, V., 2007. Transport du carbone organique lors de l'érosion continentale. Thèse du Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques, Nancy.

Galy, V., France-Lanord, C., Galy, A., Gaillardet, J., Gajurel, A., Lartiges, B., Rahman, M., Singh, S.K., submitted. Anthropogenic increase of soil erosion in the Ganga floodplain.

Granet, M., Chabaux, F., France-Lanord,C., Stille, P., Pelt, E., submitted. Time-scales of sedimentary transfer and weathering processes from U-series nuclides: Clues from the Himalayan rivers.

Innocent, C., Bollinger, C., Chabaux, F., Claude, C., Durand, N., Le Faouder, A., Kiefel, B., Pomies, C., 2004. Intercomparison of new Th isotopic standards : Preliminary results. In 14th Goldschmidt Conference, Copenhagen, Danemark.

Pelt, E., 2007. Mécanismes et constantes de temps des phénomènes d'altération. Thèse de l'Université Louis Pasteur, Strasbourg.

Pelt, E., Chabaux, F., Lucas, Y., Ghaleb, B., Allard, T., Fritsch, E., Balan, E., Selo, M., Innocent, C., 2006. ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra radioactive disequilibria and recent dynamic within weathering profiles: Example of an Amazon lateritic profile in Manaus, Brazil. In 3rd EGU General Assembly, Vienna, Austria.

Rao, K. L., 1979. India's water wealth. Orient Longman limited.

Singh, M., Sharma, M., Tobschall, H.J., 2005. Weathering of the Ganga alluvial plain, northern India: implications from fluvial geochemistry of the Gomati River. Applied Geochemistry 20, 1-21.

Sinha, R., Friend, P. F., 1994. River systems and their sediment flux, Indo-Gangetic plains, Northern Bihar, India. Sedimentology 41, 825-845.

Vigier, N., Bourdon, B., Turner, S., Allègre, C.J., 2001. Erosion timescales derived from Udecay series measurements in rivers. Earth Planet. Sci. Lett. 193, 549-563. Vigier, N., Bourdon, B., Lewin, E., Dupré, B., Turner, S., Chakrapani, G.J., van Calsteren, P., Allègre, C.J., 2005. Mobility of U-series nuclides during basalt weathering: An example from the Deccan Traps (India). Chemical Geology 219, 69-91.

Vigier, N., Burton, K.W., Gislason, S.R., Rogers, N.W., Duchene, S., Thomas, L., Hodge, E., Schaefer, B., 2006. The relationship between riverine U-series disequilibria and erosion rates in a basaltic terrain. Earth Planet. Sci. Lett. 249, 258-273.

7 Conclusion générale

La détermination des constantes de temps caractéristiques des processus d'érosion et d'altération est une étape indispensable pour établir et calibrer des modèles décrivant l'évolution de la morphologie des paysages continentaux, c'est-à-dire la réponse des reliefs vis-à-vis des forçages externes : la tectonique, le climat et les activités anthropiques. Cette problématique est abordée à l'aide des nucléides des séries de désintégration radioactive de l'uranium car ils présentent la double propriété d'être fractionnés par les interactions eauroche et d'avoir des périodes de décroissance radioactive du même ordre de grandeur que les temps caractéristiques des processus d'érosion physique et d'altération chimique. Ces outils ont été appliqués dans le système himalayen, l'une des régions les plus érosives au monde, par l'étude des sédiments transportés par les rivières des bassins du Gange et du Brahmapoutre. Différentes classes de sédiments ont ainsi été prises en considération : des sédiments grossiers rarement considérés dans les études antérieures, en l'occurrence des sables de fond ou des sédiments de berge, et des matières en suspension plus fines. En effet, l'histoire de transport des sédiments grossiers est importante à documenter car ils représentent approximativement la moitié du flux d'érosion total himalayen, l'autre moitié étant représentée par les matières en suspension sur lesquelles les études antérieures se sont en général focalisées car stimulées par le fait qu'elles contribuent classiquement à plus de 90% de la charge solide transportée par les rivières. L'étude réalisée dans le système himalayen, et c'est ce qui en constitue l'originalité, a permis de mettre en évidence l'intérêt d'étudier les variations des déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra de sédiments collectés à intervalle de distance régulier le long des rivières pour apporter des contraintes temporelles sur les processus d'érosion, d'altération et de transfert sédimentaire.

Dans la haute chaîne himalayenne, l'étude des sédiments grossiers transportés par la Kali Gandaki, l'une des principales rivières de la haute chaîne, a permis de déterminer des constantes de temps d'altération des sédiments dont la valeur varie de quelques milliers d'années dans les zones où la surrection est maximale d'années jusqu'à 350 ka en aval. Une des implications majeures de ce résultat est qu'avant érosion des sédiments, les roches sont altérées en place sur une longue période et sur une hauteur relativement homogène à l'échelle du bassin-versant de la Kali Gandaki, 120 à 160 mètres. Par ailleurs, la comparaison des isotopes de l'U et du Sr suggère la nature colloïdale de l'U transporté dans la phase dissoute des rivières (0.1-0.2 μ m), en particulier en période de mousson. Ce résultat soulève

l'importance de caractériser la nature réelle de l'uranium transporté dans les rivières en vue d'utiliser les nucléides des séries de l'uranium pour établir des bilans d'altération et caractériser si l'érosion agit à l'état stationnaire ou non.

Dans la plaine du Gange, l'étude des sédiments grossiers transportés par les principaux affluents du Gange, la Gandak et la Ghaghara, présente des variations systématiques des déséquilibres le long des rivières qui traduisent l'augmentation du degré de maturation des sédiments. Les constantes de temps de transfert des sédiments proposées sont remarquablement du même ordre de grandeur pour les ces deux affluents : environ 100 ka. Ces résultats ne peuvent être comparés avec l'étude des sédiments des affluents du Brahmapoutre car n'ayant été échantillonnés qu'à leur exutoire avant confluence avec le Brahmapoutre, seuls des temps de résidence moyens de ces sédiments ont pu être proposés correspondant au temps écoulé depuis le début de l'altération dans chacun des bassins versants des affluents du Brahmapoutre : de 110 ka 270 ka. L'approche, qui a été reprise pour le Gange et le Brahmapoutre, nécessite de s'affranchir des phénomènes de mélange puisque l'ajout de matériels sédimentaires depuis les affluents biaisent les valeurs de la systématique U-Th des sédiments transportés. Dans ce cas, les constantes de temps déterminées pour le transfert des sédiments dans ces deux fleuves sont particulièrement élevées : 160 ka pour le Brahmapoutre, et près de 575 ka pour le Gange. La validité de ces constantes de temps repose sur l'hypothèse, qui reste à démontrer par des investigations futures, que les proportions de mélange des sédiments grossiers sont proches des proportions de mélange des matières en suspension. Néanmoins, les constantes de temps proposées sont du même ordre de grandeur que les temps de réponse de ces fleuves déterminées par une approche géomorphologique indépendante, basée sur l'étude des sédiments de fond, et proposant des valeurs de 100 ka pour le Brahmapoutre et de 450 ka pour le Gange tout à fait cohérentes avec l'approche géochimique proposée dans cette étude. De manière générale, les constantes de temps de transfert et d'altération proposés sur la base de l'étude des sédiments grossiers sont systématiquement élevées traduisant l'importance des périodes de stockage provisoires à différents endroits du bassin liées en particulier à des phénomènes comme les avulsions. Par ailleurs, ces constantes de temps sont supérieures aux temps caractéristiques des oscillations climatiques quaternaires ce qui confirme que la plaine alluviale joue le rôle de tampon pour les variations de flux sédimentaire haute-fréquence de la chaîne. En conséquence, les cycles stratigraphiques haute-fréquence enregistrés dans les bassins sédimentaires renseignent sur les variations de facteurs de plaine (eustatisme, tectonique) plutôt que de changements climatiques ou tectoniques dans la haute chaîne.

Les temps obtenus étant relativement longs par rapport aux temps d'altération obtenues par l'étude de matières en suspension dans d'autres contextes climatiques et tectoniques, l'approche développée sur les sédiments grossiers a été naturellement reprise et appliquée à l'étude des matières en suspension transportées dans les rivières de la plaine du Gange. Les variations géochimiques U-Th observées traduisent le rôle des processus de mélange entre des sédiments grossiers et du matériel superficiel plus fin ayant des origines variées. En particulier, dans la plaine, ce matériel fin aurait pour origine les horizons les plus superficiels des sols enrichis en uranium grâce au recyclage des éléments par la végétation. Le rôle des processus de mélange semblant confirmé par les analyses préliminaires du ²²⁶Ra suggère que les temps de transfert des matières en suspension sont courts dans les rivières du bassin du Gange. Par ailleurs, les analyses de la systématique U-Th-Ra des matières en suspension présentent une variabilité importante à l'échelle de la colonne d'eau. Une des conséquences fondamentales est qu'il n'est pas possible, comme pour les études antérieures, de ne considérer que les matières en suspension de surface pour proposer des constantes de temps de transfert et établir des bilans de masse pour tester si l'érosion agit ou non à l'état stationnaire.

Le travail qui a été réalisé au cours de cette thèse permet, par l'analyse des matières en suspension et des sédiments grossiers transportés dans les rivières himalayennes, de compléter une base de données encore jeune sur les temps caractéristiques des processus d'érosion et d'altération. Il représente par conséquent une étape supplémentaire qui s'inscrit dans une des volontés actuelles de la communauté des Sciences de la Terre d'apporter des nouvelles contraintes sur les paramètres clefs à prendre en compte pour développer et calibrer des modèles d'évolution des reliefs.

Néanmoins, ce travail reste à compléter par l'analyse systématique des matières en suspension transportées par le Brahmapoutre et ses affluents. Il pourrait également s'élargir à l'étude d'autres réseaux hydrographiques himalayens que le Gange et le Brahmapoutre puisque le système himalayen dans son ensemble représente un terrain d'études idéal grâce à l'activité tectonique importante, à des précipitations abondantes, à un relief local très prononcé aux pentes abruptes, et à des sols très érodables. En conséquence, l'énorme charge solide de sédiments arrivant dans les océans de l'Asie du sud-est représente les deux tiers de la charge totale de sédiments transportés vers les océans, d'où l'importance d'étudier l'Indus, le Salween, le Mekong, le Yangtze et le Huang He.

8 Bibliographie

Abbas, N., Subramanian, V., 1984. Erosion and sediment transport in the Ganges river basin (India). J. Hydrol. 69, 173-182.

Adhikary, S. P., Shresta, P. B., Acharya L. M., 1992. Precipitation records of Nepal 1987-1990. H. M. G. of Nepal Ministry of Science and Technology, Department of Hydrology and Meteorology, Kathmandu, Nepal, 253.

Aitken, M.J., 1990. Science-based Dating in Archaeology, Longman, London, 274 pp.

Akovali, Y. A., 1994. Nuclear Data Sheets for A = 234. Nuclear Data Sheets 71, 18.

Alford, D., 1992. Hydrological aspects of the Himalayan region. ICIMOD Occasional paper.

Allard, T., Ildefonse, P., Beaucaire, C. and Galas, G., 1999. Structural chemistry of uranium associated with Si, Al, Fe gels in a granitic uranium mine. Chem. Geol., 158: 81-103.

Allègre, C.J., Dupré, B., Négrel, P., Gaillardet, J., 1996. Sr-Nd-Pb isotope systematics in Amazon and Congo River systems : Constraints about erosion processes. Chem. Geol. 131, 93-112.

Ames, L.L., McGarrah, J.E., Walker, B.A., 1983. Sorption of trace constituents from aqueous solutions onto secondary minerals. I Uranium. Clays Clays Miner. 31, 321-334.

Ames, L.L., McGarrah, J.E., Walker, B.A., 1983. Sorption of uranium and radium by biotite, muscovite and phlogopite. Clays Clays Miner. 31, 343-351.

Ames, L.L., McGarrah, J.E., Walker, B.A., Salter, P.F., 1983. Uranium and radium sorption on amorphous ferric oxyhydroxide. Chem. Geol. 40, 135-148.

Anderson, R.F., Bacon, M.P., Brewer, P.G., 1982. Elevated concentration of actinides in Mono Lake. Science 216, 514-516.

Andersson, P.S., Wasserburg, G.J., Chen, J.H. and Papanastassiou, D.A., 1995.²³⁸U-²³⁴U and ²³²Th-²³⁰Th in the Baltic Sea and in river water. Earth Planet. Sci. Lett. 130, 217-234.

Andersson, P. S., Porcelli, D., Wasserburg, G. J., Ingri, J., 1998. Particle transport of ²³⁴U-²³⁸U in the Kalix river and in the Baltic Sea. Geochim. Cosmochim. Acta 62, 385-392.

Attal, M., Lavé, J., 2006. Changes of bedload characteristics along the Marsyandi river (central Nepal): Implications for understanding hillslope sediment supply, sediment load evolution along fluvial networks, and denudation in active orogenic belts, in Willett, S.D., Hovius, N., Brandon, M.T., and Fisher, D., eds., Tectonics, Climate, and Landscape Evolution: Geological Society of America Special Paper 398, 143-171.

Bateman, H., 1910. Solution of system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations. Proc. Camb. Phil. Soc. 15, 423.

Beaumont, C., Kooi, H., Willett, S., 2000. Coupled tectonic-surface process models with applications to rifted margins and collisional orogens, in Geomorphology and Global Tectonics, edited by M.A. Summerfield, 29-55.

Benda, L., Dunne, T., 1997. Stochastic forcing of sediment routing and storage in channel networks. Water. Resour. Res. 33, 2865-2880.

Benda, L., Dunne, T., 1997. Stochastic forcing of sediment supply to channel networks from landsliding and debris flow. Water Resour. Res. 33, 2849-2863.

Benes, P., 1983. Physico-chemical forms and migration in continental waters of radium from uranium mining and milling, Environmental Migration of Long-Lived Radionuclides. IAEA VIENNA, 3-23.

Berner, E.K., Berner, R.A., 1995. Global environment: water, air and geochemical cycles, Prentice Hall.

Berner, R.A., 1995. Chemical weathering and its effect on atmospheric CO₂ and climate. Rev. Mineral 31, 565-583.

Berner, R.A., 1991. A model for atmospheric CO₂ over Phanerozoïc time. Am. J. Sci. 291, 339-376.

Berner, R.A., Lassaga, A.C., Garrels, R.M., 1983. The carbone-silicate geochemical cycle and its effect on atmospheric carbon dioxide over the past 100 million years. Am. J. Sci. 283, 641-683.

Bierman, P.R., 1995. Using in situ-produced cosmogenic isotopes to estimate rates of landscape evolution: a review from the geomorphic perspective. Journal of Geophysical Research 99, 885-896.

Bierman, P.R., Steig, E.J., 1996. Estimating rates of denudation using cosmogenic isotope abundances in sediment. Earth Surface Processes and Landforms 21, 125–139.

Borole, D.V., Krishnaswami, S., Somayajulu, B.L.K., 1982. Uranium isotopes in rivers, estuaries and adjacent coastal sediments of western India: their weathering, transport and oceanic budget. Geochimica et Cosmochimica Acta 46, 125-137.

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

Borovec, Z.,1981. The adsorption of uranyl species by fine clay. Chem. Geol. 32, 45-58.

Braam, R.R., Weiss, E.E.J., Burrough, P.A., 1987. Spatial and temporal analysis of mass movements using dendrochronology. Catena 14, 573–584.

Braam, R.R., Weiss, E.E.J., Burrough, P.A., 1987. Dendrogeomorphological analysis of mass movements. Catena 14, 585–589.

Broecker, W.S., Peng, T.H., 1994. Part III. Walker's world: CO₂, chemical traffic director? Greenhouse puzzles. Lamont-Doherty Geological Observatory, Columbia University, Palisades, N.Y.

Brook, E.J., Kurz, M.D., Ackert, R.P., Raisbeck, G., Yiou, F., 1995. Cosmogenic nuclide exposure ages and glacial history of late Quaternary Ross Sea drift in McMurdo Sound, Antarctica. Earth and Planetary Science Letters 131, 41–56.

Brown, E.T., Stallard, R.F., Larsen, M.C., Raisbeck, G.M., Yiou, F., 1995. Denudation rates determined from the accumulation of in situ-produced ¹⁰Be in the Luquillo Experimental Forest, Puerto Rico. Earth and Planetary Science Letters 129, 193–202.

Brunsden, D., Jones, D.K.C., 1976. The evolution of landslide slopes in Dorset. Phil. Trans. R. Soc. London: Series A 283, 605–631.

Buettner, A., Principe, C., Villa, I.M., 2003. Ar-Ar investigations on Quaternary volcanic sequences of Monte Vulture (Southern Italy). Geophysical Research Abstracts Vol. 5, 04981.

Buffle, J., Van Leeuwen, H.P., 1992. Environmental Particles. Lewis Publishers, Londres, 554p.

Burbank, D. W., Leland, J., Fielding, E., Anderson, R. S., Brozovic, N., Reid, M. R., Duncan, C., 1996. Bedrock incision, rock uplift, and threshold hillslopes in the northwestern Himalaya. Nature 379, 505-510.

Burg, J.P., 1983. Tectogenèse comparée de deux segments de chaîne de collision; le sud du Tibet (suture du Tsangpo), la chaîne hercynienne en Europe (sutures du Massif Central). Univ. Montpellier 2, 401 p.

Burg, J.-P., Nievergelt, P., Oberli, F., Seward, D., Davy, P., Maurin, J.-C., Diao, Z., Meier, M., 1998. The Namche Barwa syntaxis: evidence for exhumation related to compressional crustal folding. J. Asian Earth Sci. 16, 239-252.

Burg, J.P., Chen, G.M., 1984. Tectonics and structural zonation of southern Tibet, China. Nature 311, 219-223.

Burnett, W.C., Cowart, J.B. and Deetae, S., 1990. Radium in the Suwanee river and estuary. Biogeochemistry, 10, 237-255.

Burns, B.A., Heller, P.L., Marzo, M., Paola, C., 1997. Fluvial response in a sequence stratigraphic framework: example from the Montserrat fan delta, Spain. J. Sed. Res. 67, 311-321.

Caroll, J.L., Moore, W.S., 1993. Uranium removal during low discharge in the Ganga-Brahmaputra mixing zone. Geochim. Cosmochim. Acta 57, 4987-4995.

Castelltort, S., Davy, P., Van Den Driessche, J., 2003. Modelling river response to sediment supply changes. Geophysical Research Abstracts Vol. 5, 10022.

Castelltort, S., Van Den Driessche, J., 2003. How plausible are high-frequency sediment supply-driven cycles in the stratigraphic record?. Sedimentary Geology 157, 3-13.

Chabaux, F., 1993. Systématique ²³⁸U-²³⁰Th-²²⁶Ra dans les roches volcaniques: développements analytiques et étude des processus de fusion. PhD thesis, Université Paris 7.

Chabaux, F., Cohen, A.S., O'Nions, R.K., Hein, J.R., 1995. ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th chronometry of Fe-Mn crusts. Growth processes and recovery of Thorium isotopic ratios of sea water. Geochim. Cosmochim. Acta 59, 633-638.

Chabaux, F., Riotte, J., Clauer, N., France-Lanord, C., 2001. Isotopic tracing of the dissolved U fluxes of Himalayan rivers : implications for present and past U budgets of the Ganges-Brahmaputra system. Geochim. Cosmochim. Acta 65, 3201-3217.

Chabaux, F., Riotte, J., Dequincey, O., 2003. U-Th-Ra fractionation during weathering and river transport, in : B. Bourdon, G. M. Henderson, C.C. Lundstrom, S.P. Turner (Eds.), Uranium-series Geochemistry, Reviews in Mineralogy and Geochemistry, vol. 52, Geochemical Society-Mineralogical Society of America, Washington, 533-576.

Chabaux, F., Dequincey, O., Lévèque, J.-J., Leprun, J.-C., Clauer, N., Riotte, J., Paquet, H., 2003. Tracing and dating recent chemical transfers in weathering profiles by trace-element geochemistry and ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria: the example of the Kaya lateritic toposequence (Burkina-Faso). C. R. Geosciences 335, 1219-1231.

Chabaux, F., Dequincey, O., Lévèque, J.-J., Pelt, E., 2004. Modeling of recent chemical mobility in weathering profile through U-Th disequilibria : Example of the Kaya lateritic profiles. Eos Trans. AGU, 85(47), Fall Meet. Suppl., Abstract 861.

Chabaux, F., Riotte, J., Schmitt, A.D., Carignan, J., Herckes, P., Pierret, M.C., Wortham, H., 2005. Variations of U and Sr isotope ratios in Alsace and Luxembourg rain waters: origin and hydrogeochemical implications. Comptes Rendus Geosciences 337, 1447-1456.

Chabaux, F., Granet, M., Pelt, E., France-Lanord, C., Galy, V., 2006. ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria and timescale of sedimentary transfers in rivers: Clues from the Gangetic plain rivers. J. of Geochem. Expl. 88, 373-375.

Chabaux, F., Bourdon, B., Riotte, J., 2006. U-series Geochemistry in weathering profiles, River waters and lakes, in : S. Krishnaswami and J.K. Cochran (Eds.), U/Th Series Radionuclides in Aquatic Systems, Elsevier, submitted.

Chen, J.H., Lawrence Edwards, R., Wasserburg, G.J., 1986. ²³⁸U, ²³⁴U and ²³²Th in seawater. Earth Planet. Sci. Lett. 80, 241-251.

Cheng, H., Edwards, R. L., Hoff, J., Gallup, C. D., Richards, D. A., Asmerom, Y., 2000. The half-lives of uranium-234 and thorium-230. Chem. Geol. 169, 17-33.

Cherdyntsev, V.V., Chalov, P.I., Khaidarov, G.Z., 1955. Uranium series disequilibrium dating. In Trans. 3rd Sess. Commission for determining the absolute age of geological formations. Izd. Akad. Nauk, SSSR, 175-182.

Clague, J.J., Souther, J.G., 1982. The Dusty Creek landslide on Mount Cayley, British Columbia. Can. J. Earth Sci. 19, 524–539.

Clark, D.H., Bierman, P.R., Larsen, P., 1995. Improving in situ cosmogenic chronometers. Quaternary Research 44, 367–377.

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

Coleman, J.M., 1969. Brahmaputra river: channel processes and sedimentation. Sediment. Geol. 3, 129-239.

Crave, A., Davy, P., 2001. A stochastic "precipiton" model for simulating erosion/sedimentation dynamics, Computer and Geosciences 27, 815-827.

Craw, D., Koons, P.O., Zeitler, P.Z., Kidd, W.S.F., 2005. Fluid evolution and thermal structure in the rapidly exhuming gneiss complex of Namche Barwa-Gyala Peri, eastern Himalayan syntaxis. J. Metamorph. Geol. 23, 829-845.

Cromières, L., Moulin, V., Fourest, B., Guillaumont, R., Giffaut, E., 1998. Sorption of thorium onto hematite colloids. Radiochim. Acta 82, 249-255.

Culling, W.E.H., 1960. Analytical theory of erosion. J. Geol. 68, 336-344.

Czerwinski, K.R., Buckau, G., Scherbaum, F., Kim, J.I., 1994. Complexation of the uranyl ion with aquatic humic acid. Radiochim. Acta 65, 111-119.

Dearlove, J.P.L., Longworth, G., Ivanovich, M., Kim, J.I., Delakowitz, B., Zeh, P., 1991. A study of ground waters colloids and their geochemical interactions with natural radionuclides in Gorleben aquifer systems. Radiochim. Acta 52/53, 83-89.

Debon, F., Le Fort, P., Sheppard, S.M.F., Sonet, J., 1986. The four plutonic belts of the Transhimalaya-Himalaya: a chemical, mineralogical, isotopic and chronological synthesis along a Tibet-Nepal section. J. Petrol. 27, 219-250.

DeCelles, P.G., Gehrels, G.E., Quade J., Ojha, T.P., Kapp, P.A., Upreti, B.N., 1998. Neogene foreland basin deposits, erosional unroofing, and the kinematic history of the Himalayan fold-thrust belt, western Nepal. Geol. Soc. Amer. Bull. 110, 2-21.

Delcaillau, B., 1992. Les Siwalik de l'Himalaya du Népal Oriental. Fonctionnement et évolution d'un piémont. Editions du CNRS.

Deniel, C., Vidal, P., Le Fort, P., 1986. Les leucogranites himalayens et leur région source probable : les gneiss de la "Dalle du Tibet". Compte Rendu de l'Académie des Sciences, Paris 303, II(1), 57-60.

DePaolo, D.J., Maher, K., Christensen, J.N., McManus, J., 2006. Sediment transport time measured with U-series isotopes: Results from ODP North Atlantic drift site 984. Earth Planet. Sci. Lett. 248, 394-410.

Dequincey, O., Chabaux, F., Clauer, N., Liewig, N., Muller, J.-P., 1999. Dating of weathering profiles by radioactive disequilibria: Contribution of the study of authigenic mineral fractions. Comptes Rendus de l'Académie des Sciences 328, 679-685.

Dequincey, O., Chabaux, F., Clauer, N., Sigmarsson, O., Liewig, N., Leprun, J.-C., 2002. Chemical mobilizations in laterites : evidence from trace elements and ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria. Geochim. Cosmochim. Acta 66, 1197-1210.

De Terra, H., Teilhard de Chardin, P., 1936. Observations on the Upper Siwalik formation and Later Pleistocene deposits in India. Proceeding of the American Philosophical Society 76, 791-822.

Dewey, J.F., Cande, S., Pitman III, W.C., 1989. Tectonic evolution of the Indian/Eurasia Collision Zone. Eclogae geologicae Helvetiae 82, 717-734.

Dèzes, P., 1999. Tectonic and metamorphic evolution of the Central Himalayan Domain in Southeast Zanskar (Kashmir, India). Mémoires de Géologie (Lausanne) 32, 160 p.

Dickson, B.L., 1985. Radium isotopes in saline seepages, south-western Yilgarn, Western Australia. Geochimica et Cosmochimica Acta 49, 361-368.

Dockhorn, B., Neumaier, S., Hartmann, F.J., Petitjean, C., Faestermann, H., Korschinek, G., Morinaga, H., Nolte, E., 1991. Determination of erosion rates with cosmic ray produced ³⁶Cl. Zeitschrift fur Physik A: Hadrons and Nuclei 341, 117–119.

Dorale, J.A., Gonzales, L.A., Reagan, M.K., Pickett, D.A., Murrell, M.T., Baker, R.G., 1992. A high-resolution record of Holocene climate change in speleothem calcite from Cold Water Cave, nortwest Iowa. Science 258, 1626–1630.

Dosseto, A., Bourdon, B., Gaillardet, J., Maurice-Bourgoin, L., Allègre, C.J., 2006. Weathering and transport of sediments in the Bolivian Andes: Time constraints from uranium-series isotopes. Earth Planet. Sci. Lett. 248, 759-771.

Dosseto, A., Bourdon, B., Gaillardet, J., Allègre, C.J., Filizola, N., 2006. Time scale and conditions of weathering under tropical climate : Study of the Amazon basin with U-series. Geochim. Cosmochim. Acta 70, 71-89.

Dosseto, A., Turner, S.P., Douglas, G.B., 2006. Uranium-series isotopes in colloids and suspended sediments: Timescale for sediment production and transport in the Murray-Darling River system. Earth Planet. Sci. Lett. 246, 418-431.

Dosseto, A., 2003. Etude du magmatisme aux zones de subduction et de l'érosion continentale par les séries de l'uranium: contraintes sur les processus et leur temps caractéristique, Thèse, université Paris 7, 243 pp..

Duff, M.C., Amrhein, C., 1996. Uranium(VI) adsorption on goethite and soil in carbonate solutions. Soil Sci. Soc. Am. J. 60, 1393-1400.

Dupré, B., Viers, J., Dandurand, J.L., Polve, M., Bénézeth, P., Vervier, P., Braun, J.J., 1999. Major and trace elements associated with colloids in organic-rich river waters: ultrafiltration of natural and spiked solutions. Chemical Geology 160, 63-80.

Dupré, B., Gaillardet, J., Rousseau, D. and Allègre, C.J., 1996. Major and trace elements of river-borne material: The Congo Basin. Geochim. Cosmochim. Acta 60, 1301-1321.

Durand, S., Chabaux, F., Rihs, S., Duringer, P., Elsass, P., 2005. U isotope ratios as tracers of groundwater inputs into surface waters: Example of the Upper Rhine hydrosystem. Chemical Geology 220, 1-19.

Einsele, G., Ratschbacher, L., Wetzel, A., 1996. The Himalaya-Bengal Fan Denudation-Accumulation System during the Past 20 Ma. J. Geol. 104, 163-184.

Evans, M.J., Derry, L.A., Anderson, S.P., France-Lanord, C., 2001. Hydrothermal source of radiogenic Sr to Himalayan rivers. Geology 29, 803-806.

Fernandes, N.F., Dietrich, W.E., 1997. Hillslope evolution by diffusive processes: The timescale for equilibrium adjustments. WRR 33, 1307-1318.

Fleischer, R.L., Raabe, O.G., 1978. Recoiling alpha-emitting nuclei. Mechanisms for uranium-series disequilibrium. Geochimica et Cosmochimica Acta 42, 973-978.

Fleischer, R.L., 1980. Isotopic disequilibrium of uranium: alpha recoil damage and preferential solution effects. Science 207, 979-981.

Fort, M., Peulvast, J. P., 1995. Catastrophic mass-movements and morphogenesis in the peri-Tibetan ranges: examples from West Kunlun, East Pamir and Ladakh. In: Slaymaker, O. (Ed.), Steepland Geomorphology, 171-198.

France-Lanord, C., 1987. Chevauchement, métamorphisme et magmatisme en Himalaya du Népal central. Etude isotopique H, C, O. Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy.

France-Lanord, C., Derry, L. A., 1997. Organic carbon burial forcing of the carbon cycle from Himalayan erosion. Nature 390, 65-67.

France-Lanord, C., Le Fort, P., 1988. Crustal melting and granite genesis during the Himalayan collision orogenesis. Transactions of the Royal Society of Edinburgh Earth Sciences 79, 183-195.

France-Lanord, C., Sheppard, S.M.F., Le Fort, P., 1988. Hydrogen and oxygen isotope variations in the High Himalaya peraluminous Manaslu leucogranite : evidence for heterogeneous sedimentary sources. Geochimica et Cosmochimica Acta 52, 513-526.

France-Lanord, C., Evans, M., Hurtrez, J.-E., Riotte, J., 2003. Annual dissolved fluxes from Central Nepal rivers : budget of chemical erosion in the Himalayas. C. R. Geosciences 335, 1131-1140.

Fredrikson, J.K., Zachara, J.M., Kennedy, D.W., Duff, M.C., Gorby, Y.A., Li, S.M.W., Krupka, K.M., 2000. Reduction of U(VI) in goethite (α -FeOOH) suspensions by a dissimilatory metal-reducing bacterium. Geochim. Cosmochim. Acta 64, 3085-3098.

Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., 1995. A global geochemical mass budget applied to the Congo Basin rivers: Erosion rates and continental crust composition. Geochim. Cosmochim. Acta 59, 3469-3485.

Gaillardet, J., Dupré, B., Louvat, P., Allègre, C.J., 1999. Global silicate weathering and CO₂ consumption rates deduced from the chemistry of large rivers. Chem. Geol. 159, 3-30.

Galloway, W.E., 1989. Genetic stratigraphic sequences in basin analysis I: architecture and genesis of floodingsurface bounded depositional systems. Am. Assoc. Petr. Geol. Bull. 73, 125-142.

Galy, A., France-Lanord, Ch., Derry, L.A., 1999. The strontium isotopic budget of Himalayan rivers in Nepal and Bangladesh. Geochim. Cosmochim. Acta 63, 1905-1925.

Galy, A., France-Lanord, Ch., 1999. Weathering processes in the Ganges-Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget. Chem. Geol. 159, 31-60.

Galy, A., 1999. Etude géochimique de l'érosion actuelle de la chaîne himalayenne, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 464 p.

Galy, A., France-Lanord, C., 2001. Higher erosion rates in the Himalaya : Geochemical constraints on riverine fluxes. Geology 29, 23-26.

Galy, V., 2007. Transport du carbone organique lors de l'érosion continentale. Thèse du Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques, Nancy.

Galy, V., France-Lanord, C., Galy, A., Gaillardet, J., Gajurel, A., Lartiges, B., Rahman, M., Singh, S.K., subm. Anthropogenic increase of soil erosion in the Ganga floodplain.

Gansser, A., 1964. Geology of the Himalayas. London, Wiley Interscience, 289 p.

Garzanti, E., Vezzoli, G., Andò, S., France-Lanord, C., Singh, S.K., Foster, G., 2004. Sand petrology and focused erosion in collision orogens : the Brahmaputra. Earth Planet. Sci. Lett. 220, 157-174.

Gayscone, M., 1992. Geochemistry of the actinides and their daughters. In Uranium-series disequilibrium, Application to Earth, Marine and Environmental Sciences. 2nd edition, Oxford University press, 34-61.

Geickes, H., Klenze, R., Kim, J.I., 1999. Solid-water interface interface reactions of actinides and homologues: sorption onto mineral surfaces. Radiochim. Acta 87, 13-21.

Ghaleb, B., Hillaire-Marcel, C., Causse, C., Gariepy, C., Vallieres, S., 1990. Fractionation and recycling of U and Th isotopes in a semi-arid endoreic depression of central Syria. Geochimica et Cosmochimica Acta 54, 1025-1035.

Giaquinta, D.M., Soderholm, L., Yuchs, S.E., Wassermann, S.R., 1997. The speciation of uranium in a smectite clay: evidence for catalysed uranyl reduction. Radiochim. Acta 76, 113-121.

Gob, F., Petit, F., Bravard, J.P., Ozer, A., Gob, A., 2003. Lichenometric application to historical and subrecent dynamics and sediment transport of a Corsican stream (Figarella River – France). Quaternary Science Reviews 22, 2111-2124.

Goetz, C., 1990. Traçage isotopique et chronologie des processus d'altération et de sédimentation par l'étude des déséquilibres U et Th. Application aux systèmes lacustres de Magadi (Kenya) et Manyara (Tanzanie). PhD, Université d'Aix-Marseille, Marseille, France.

Goswami, D.C., 1985. Brahmaputra river, Assam India: physiography, basin denudation and channel aggradation. Water Resour. Res. 21, 959-978.

Grabs, W., De Couet, T., Pauler, J., 1996. Freshwater fluxes from continents into the world oceans based on data of the global runoff data base. Global Runoff Data Centre.

Granet, M., 2007. Constantes de temps des processus d'érosion et d'altération dans le système himalayen : Approche géochimique élémentaire et isotopique par les séries de l'uranium. Thèse de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg.

Granet, M., Chabaux, F., France-Lanord, C., Stille, P., Pelt, E., submitted. Time-scales of sedimentary transfer and weathering processes from U-series nuclides: Clues from the Himalayan rivers.

GRDC, 1994. Hydrological Regimes of the 20 largest rivers of the World - A compilation of the GRDC Database -. Global Runoff Data Centre.

Halbach, P., von Borstel, D., Gundermann, K.D., 1980. The uptake of uranium by organic substances in a peat bog environment on a granitic bedrock. Chem. Geol. 29, 117-138.

Hansen, R.O., 1970. Radioactivity of a California terrace soil. Soil Sci. 110, 31-38.

Hansen, R.O., Stout, P.R., 1968. Isotopic distribution of uranium and thorium in soils. Soil Sci. 105, 44-50.

Harvey, B.G., 1962. Introduction to Nuclear Physics and Chemistry. Prentice Hall Inc., New Jersey.

Hashemi-Nezhad, S.R., Durrani, S.A., 1981. Registration of alpha-recoil tracks in mica: the prospects for alpha-recoil dating method. Nucl. Tracks 5, 189-205.

Herczeg, A., Simpson, H.J., Anderson, R.F., Trier, R.M., Mathieu, G.G., Deck, B.L., 1988. Uranium and Radium mobility in groundwaters and brines within the Delaware basin, Southeastern New Mexico, USA. Chem. Geol. 72, 181-196.

Hillaire-Marcel, C., Vallières, S., Ghaleb, B., Mareschal, J.-C., 1990. Déséquilibres Th/U dans les sols carbonatés en climat subaride: estimation des flux d'uranium et vitesse d'érosion. Le cas du bassin de Palmyre (Syrie). CR Acad. Sci. Paris IIa 311, 233-238.

Hochstein, M.P., Regenauer-Lieb, K., 1998. Heat generation associated with collision of two plates : the Himalayan geothermal belt. J. Volcanol. Geotherm. Res. 83, 75-92.

Hovius, N., 1998. Controls on sediment supply by large rivers. In Relative Role of Eustasy, Climate, and Tectonism in Continental Rocks, edited by K.W.S.a.P.J. McCabe, 3-16.

Hovius, N., Starck, C. P., Allen, P. A., 1997. Sediment flux from a mountain belt derived by landslide mapping. Geology 25, 231-234.

Hovius, N., Stark, C.P., Hao-Tsu, C., Jiun-Chuan, L., 2000. Supply and Removal of Sediment in a Landslide-Dominated Mountain Belt: Central Range, Taiwan. Journal of Geology 108, 73-89.

Howard, A.D., 1994. A detachment-limited model of drainage basin evolution. Water Resour. Res. 30, 2261-2285.

Howard, A.D., Kerby, G., 1983. Channel changes in badlands. GSA Bull. 94, 739-752.

HPC, 1989. Karnali multipurpose project.

Hsi, C.D., Langmuir, D., 1985. Adsorption of uranyl onto ferric oxyhydroxydes : Application of the surface complexation site-binding model. Geochim. Cosmochim. Acta 49, 1931-1941.

Hu, M., Stallard, R.F., Edmond, J., 1982. Major ion chemistry of some large Chinese Rivers. Nature 298, 550-553.

Huang, W.H., Walker, R.M., 1967. Fossil alpha-particle recoil tracks: a new method of age determination. Science 155, 1103–1106.

Innes, J.L., 1983. Lichenometric dating of debris-flow deposits in the Scottish Highlands. Earth Surface Processes and Landforms 8, 579–588.

Innocent, C., Bollinger, C., Chabaux, F., Claude, C., Durand, N., Le Faouder, A., Kiefel, B., Pomies, C., 2004. Intercomparison of new Th isotopic standards : Preliminary results. In 14th Goldschmidt Conference, Copenhagen, Danemark.

Ivanovich, M., Harmon, R.S., 1992. Uranium-series disequilibrium, Application to Earth, Marine and Environmental Sciences. 2nd edition, Oxford University press, 910p.

Ivy-Ochs, S., Schluchter, C., Kubik, P., Beer, J., 1995. Das Alter der Egesen-Morane am Julierpaß. Geowissenschaften 13, 313–315.

Jackson, L.E., Phillips, F.M., Shimamura, K., Little, E.C., 1997. Cosmogenic ³⁶Cl dating of the Foothills erratics train, Alberta, Canada. Geology 25, 195–198.

Jain, V., Sinha, R., 2003. River systems in the Gangetic plains and their comparison with the Siwaliks: A review. Curr. Sci. 84, 1025-1033.

JICA, 1982. Feasibility study on Sapt Gandaki hydroelectric power development project. HMG, Nepal.

Julien, P.Y., 1994. Erosion and sedimentation. Cambridge University Press, 280 pp.

Kigoshi, K.,1971. Alpha-recoil thorium-234: dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. Science 173, 47-48.

Kirkby, M.J., 1971. Hillslope process-response models based on the continuity equation. Spec. Publ. Inst. Br. Geogr. 3, 15-30.

Koide, M., Goldberg, E.D., 1964. ²³⁴U/²³⁸U ratios in sea water. Progress in Oceanography, 3. Pergamon, Oxford, 173 pp.

Kooi, H., Beaumont, C., 1994. Escarpement evolution on high-elevation rifted margins: insights derived from a surface processes model that combines diffusion, advection, and reaction. J. Geophys. Res. 99, 12191-12209.
Korkisch, J., 1969. Modern methods for the separation of rarer metal ions. Pergamon Press, Oxford, pp 266.

Kraemer, T.F., Reid, D.F., 1984. The occurrence and behavior of radium in saline formation water of the U.S. Gulf Coast region. Chemical Geology 46, 153-174.

Krishnaswami, S., Graustein, W., Turekian, K., Dowd, J., 1982. Radium, thorium and radioactive lead isotopes in groundwaters: application to the *in-situ* determination of adsorption-desorption rate constants and retardation factors. Water Resour. Res. 18, 1633-1675.

Krishnaswami, S., Trivedi, J.R., Ramesh, R., Sharma, K.K., 1992. Sr isotopes and Rb in the Ganges-Brahmaputra river system: Weathering in the Himalaya, fluxes to the bay of Bengal and contributions to the evolution of oceanic ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr. Earth Planet. Sci. Lett. 109, 243-253.

Ku, T.H., Krauss, K.G., Mathieu, G.G., 1977. Uranium in open ocean: concentration and isotopic composition. Deep Sea Res. 24, 1005-1017.

Kumar, G., 1997. Geology of the Arunachal Pradesh. Geological Society of India.

Kumar, S., Parkash, B., Manchanda, M. L., Singhvi, A. K., Srivastava, P., 1996. Holocene landform and soil evolution of the Western Gangetic Plains: implications of neotectonics and climate. Z. Geomorph. N. F. 103, 283-812.

Kurz, M.D., Colodner, D., Trull, T.W., Moore, R.B., O'Brien, K., 1990. Cosmic ray exposure dating with in situ-produced cosmogenic ³He: results from young Hawaiian lava flows. Earth and Planetary Science Letters 97, 177–189.

Lahd Geagea, M., Stille, P., Millet, M., Perrone, Th., 2007. REE characteristics and Pb, Sr and Nd isotopic compositions of steel plant emissions. Sciences of the Total Environment. Science of the Total Environment, 404-419.

Lal, D., 1988. In situ-produced cosmogenic isotopes in terrestrial rocks. Annual Review Earth and Planetary Science 16, 355–388.

Lang, A., Wagner, G.A., 1996. Infrared stimulated luminescence dating of archaeosediments. Archaeometry 38, 129–141.

Lang, A., Wagner, G.A., 1997. Infrared stimulated luminescence dating of Holocene colluvial sediments using the 410 nm emission. Quaternary Geochronology Quaternary Science Reviews 16, 393–396.

Langmuir, D. and Herman, J.S., 1980. The mobility of thorium in natural waters at low temperatures. Geochim. Cosmochim. Acta 44, 1753-1766.

Langmuir, D., 1978. Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. Geochim. Cosmochim. Acta 42, 547-569.

Langmuir, D., Melchior, D., 1985. The geochemistry of Ca, Sr, Ba and Ra sulfates in some deep brines from the Palo Duro Basin, Texas. Geochimica et Cosmochimica Acta 49, 2423-2432.

Latham, A.G., Schwarcz, H.P., 1987. On the possibility of determining rates of removal of uranium from crystalline igneous rocks using U-series disequilibria-2: applicability of a U-leach model to mineral separates. App. Geochem. 2, 67-71.

Latham, A.G., Schwarcz, H.P., 1987. On the possibility of determining rates of removal of uranium from crystalline igneous rocks using U-series disequilibria-1a: U-leach model, and its applicability to whole-rock data. App. Geochem. 2, 55-65.

Latham, A.G., Schwarcz, H.P., 1987. The relative mobility of U, Th and Ra isotopes in the weathered zones of the eye-Dashwa Lakes granite pluton, northwestern Ontario, Canada, Geochim. Cosmochim. Acta 51, 2787-2793.

Lavé, J., Avouac, J. P., 2001. Fluvial incision and tectonic uplift across the Himalayas of central Nepal. J. Geophys. Res. B: Solid Earth and Planets 106, 26561-26591.

Lavé, J., Avouac, J. P., 2000. Active folding of Fluvial Terraces across the Siwaliks Hills (Himalayas of Central Nepal). J. Geophys. Res. 105, 5735-5770.

Lawrence, D.T., 1993. Evaluation of eustasy, subsidence, and sediment input as controls on depositional sequence geometries and the synchroneity of sequence boundaries, in Weimer, P., and Posamentier, H., eds., Siliciclastic Sequence Stratigraphy: Recent Developments and Applications, Volume 58: American Association of Petroleum Geologists Memoir, 337-367.

Le Fort, P., 1989. The Himalayan orogenic segment. In Tectonic evolution of the Tethyan regions. Proceedings of the NATO ASI meeting, Istanbul, October 1985 (ed. A.M.C. Sengör).

Le Fort, P., France-Lanord, C., 1995. Granites from Mustang and surrounding regions. J. of Nepal Geological Society 11 (Special Issue), 53-57.

Lenhart, J.J., Honeyman, B.D., 1999. Uranium (VI) sorption to hematite in the presence of humic acid. Geochim. Cosmochim. Acta 63, 2891-2901.

Lenhart, J.J., Cabaniss, S.E., McCarthy, P., Honeymann, B.D., 2000. Uranium(VI) complexation with citric, humic and fulvic acids. Radiochim. Acta 88, 345-353.

Lienert, C., Short, S.A., Gunten, H.R.V., 1994. Uranium infiltration from a river to shallow groundwater. Geochimica et Cosmochimica Acta 58, 5455-5463.

Lin, J.C., Broecker, W.S., Anderson, R.F., Hemming, S., Rubenstone, J.L., Bonani, G., 1996. New ²³⁰Th/U and ¹⁴C ages from lake Lahontan carbonates, Nevada, USA and a discussion of the origin of initial thorium. Geochim. Cosmochim. Acta 60, 2817-2832.

Liu, G., Einsele, G., 1994. Sedimentary history of the Tethyan basin in the Tibetan Himalayas. Geol. Rundsch. 83, 32-61.

Lopez-Blanco, M., Marzo, M., Piña, J., 2000. Transgressive-regressive sequence hierarchy of foreland, fandelta clastic wedges (Montserrat and Sant Llorenç del Munt, Middle Eocene, Ebro Basin, NE Spain). Sediment. Geol. 138, 41-69.

Lovley, D., Philips, E.J.P., Gorby, Y.A., Landa, E.R., 1991. Microbial reduction of uranium. Nature 350, 413-416.

Lovley, D., Phillips, E.J.P., 1992. Reduction of uranium by Desulfovibrio desulfuricans. Appl. Environ. Microbio. 58, 850-856.

Ludwig, K.R., Simmons, K.R., Szabo, B.J., Winograd, I.J., Landwehr, J.M., Riggs, A.C., Hoffman, R.J., 1992. Massspectrometric ²³⁰Th-²³⁴U-²³⁸U dating of the Devils Hole calcite vein. Science 258, 284–287.

Mangini, A., Sonntag, C., Bertsch, G., Müller, E., 1979. Evidence for a higher natural uranium content in world rivers. Nature 278, 337-339.

Martin, J.M., Nijampurkar, V., Salvadori, F., 1978. Uranium and Thorium isotope behavior in estuarine systems, Biogeochemistry of estuarine sediments. UNESCO, pp.111-127.

Marzo, M., Steel, R.J., 2000. Unusual features of sediment supply-dominated, transgressive-regressive sequences: Paleogene clastic wedges, SE Pyrenean foreland basin, Spain. Sediment. Geol. 138, 3-15.

Mathieu, D., Bernat, M., Nahon, D., 1995. Short-lived U and Th isotope distribution in a tropical laterite derived from granite (Pitinga river basin, Amazonia, Brazil): Application to assessment of weathering rate. Earth Planet. Sci. Lett. 136, 703-714.

Matthews, J.A., Brunsden, D., Frenzel, B., Glaser, B., Weiß, M.M., 1997. Rapid mass movement as a source of climatic evidence for the Holocene. Palaoklimaforschung 19 Gustav Fischer Verlag, Stuttgart, 441 pp.

McKee, B.A., DeMaster, D.J., Nittrouer, C.A., 1987. Uranium geochemistry on the Amazon shelf: Evidence for uranium release from bottom sediments. Geochimica et Cosmochimica Acta 51, 2779-2786.

Meigs, A.J., Burbank, D.W., Beck, R.A., 1995. Middle-late Miocene (> 10 Ma) formation of the Main Boundary thrust in the western Himalaya. Geology 23, 423-426.

Métivier, F., Gaudemer, Y., 1999. Stability of output fluxes of large rivers in South and East Asia during the last 2 million years: implications on floodplain processes. Basin Research 11, 293-303.

Milliman, J.D., Syvitski, J.P.M., 1992. Geomorphic/tectonic control of sediment discharge to the ocean: The importance of small mountaineous rivers. Journal of Geology 100, 525-544.

Mohindra, R., Parkash, B., 1992. Historical geomorphology and pedology of the Gandak megafan, Middle Gangetic Plains, India. Earth Surf. Proc. and Landforms 17, 643-662.

Molnar, P., England, P., 1990. Late Cenozoic uplift of moutain ranges and global climate change: chicken or egg? Nature 346, 29-34.

Molnar, P., Tapponnier, P., 1975. Cenozoic tectonics of Asia; effects of a continental collision. Science 189, 419-426.

Montavon, G., Mansel, A., Seibert, A., Keller, H., Kratz, J.V., Trautmann, N., 2000. Complexation studies of $UO_2^{2^+}$ with humic acid at low metal ion concentrations by indirect speciation methods. Radiochim. Acta 88, 17-24.

Montgomery, D.R., 1994. Valley incision and the uplift of mountain peaks. JGR 99, 13913-13921.

Moreira-Nordemann, L.M., 1977. Etude de la vitesse d'altération des roches au moyen de l'uranium utilisé comme traceur naturel. Application à deux bassins du Nord Est du Brésil. Thèse, Université Paris VI, France.

Moreira-Nordemann, L.M., 1980. Use of ²³⁴U/²³⁸U disequilibrium in measuring chemical weathering rate of rocks. Geochim. Cosmochim. Acta 44, 103-108.

Moulin, V., Ouzounian, G., 1992. Role of colloids and humic substances in the transport of radio-elements through the geosphere. Appl. Geochem. (Suppl. Issue), I, 179-186.

Mugnier, J.L., Leturmy, P., Mascle, G., Huyghe, P., Chalaron, E., Vidal, G., Husson, L., Delcaillau, B., 1999. The Siwaliks of western Nepal: I. Geometry and kinematics. Journal of Asian Earth Sciences 17, 629-642.

Mugnier, J.L., Leturmy, P., Huyghe, P., Chalaron, E., 1999. The Siwaliks of western Nepal: II. Mechanics of the thrust wedge. Journal of Asian Earth Sciences 17, 643-657.

Murphy, W.M., Shock, E.L., 1999. Environmental aqueous geochemistry of actinides. In: P.C. Burns and R. Finch (Editors), Uranium: mineralogy, geochemistry and the environment. Reviews in Mineralogy. Mineralogical Society of America, Washington, 221-253.

Nagy, B., Gauthier-Lafaye, F., Holliger, P., Davis, D.W., Mossman, D.J., Leventhal, J.S., Rigali, M.J., Parnell, J., 1991. Organic matter and containment of uranium and fissiogenic isotopes at the Oklo natural reactors. Nature 354, 472-475.

Nelson, K.D., Zhao, W., Brown, L.D., Kuo, J., Che, J., Liu, X., Klemperer, S.L., Makovsky, Y., Meissner, R., Mechie, J., Kind, R., Wenzel, F., Ni, J., Nabelek, J., Leshou, C., Tan, H., Wei, W., Jones, A.G., Booker, J., Unsworth, M., Kidd, W.S.F., Hauck, M., Alsdorf, D., Ross, A., Cogan, M., Wu, C., Sandvol, E., Edwards, M., 1996. Partially molten middle crust beneath Southern Tibet : Synthesis of project INDEPTH results. Science 274, 1684-1688.

Nesbitt, H.W., Young, G.M., 1982. Early Proterozoic climates and plate motions inferred from major element chemistry of lutites. Nature 299, 715–717.

Nishiizumi, K., Kohl, C.P., Arnold, J.R., Dorn, R., Klein, J., Fink, D., Middelton, R., Lal, D., 1993. Role of in situ cosmogenic nuclides ¹⁰Be and ²⁶Al in the study of diverse geomorphic processes. Earth Surface Processes and Landforms 18, 407–425.

Osmond, J.K., Cowart, J.B., 1976. The theory and uses of natural uranium isotopic variations in hydrology. Atomic Energy Rev. 14, 621-679.

Osmond, J.K. and Ivanovich, M., 1992. Uranium-series mobilization and surface hydrology. In: M. Ivanovich and R.S. Harmon (Editors), Uranium-series disequilibrium: Application to Earth, Marine, and environmental sciences. Oxford Sciences Publications, Oxford, 259-289.

Osterkamp, W.R., Hupp, C.R., 1987. Dating and interpretation of debris flows by geologic and botanical methods at Whitney Creek Gorge, Mount Shasta, California. Geological Society of America, Reviews in Engineering Geology 7, 157–163.

Palmer, M.R., Edmond, J.M., 1993. Uranium in river water. Geochim. Cosmochim. Acta 57, 4947-4955.

Pande, K., Sarin, M.M., Trivedi, J.R., Krishnaswami, S., Sharma, K.K., 1994. The Indus river system (India-Pakistan): Major-ion chemistry, uranium and strontium isotopes. Chem. Geol. 116, 245-259.

Pascoe, E.H., 1963. A Manual of the Geology of India and Burma, vol. 3. Government of India Press, Calcutta, 2073-2079.

Patriat, P., Achache, J., 1984. India-Eurasia collision chronology has implications for crustal shortening and driving mechanism of plates. Nature 311, 615-621.

Peate, D.W., Hawkesworth, C.J., van Calsteren, P.W., Taylor, R.N., Murton, B.J., 2001. ²³⁸U-²³⁰Th constraints on mantle upwelling and plume-ridge interaction along the Reykjanes Ridge. Earth and Planetary Science Letters 187, 259-272.

Pêcher, A., 1978. Déformation et métamorphisme associés à une zone de cisaillement. Exemple du grand chevauchement central himalayen (MCT), transversale des Annapurnas et du Manaslu, Népal. Université Scientifique et Médicale, Grenoble.

Pêcher, A., 1991. The contact between the higher Himalaya crystallines and the Tibetan sedimentary series; Miocene large-scale dextral shearing. Tectonics 10, 587-598.

Pelt, E., 2007. Mécanismes et constantes de temps des phénomènes d'altération. Thèse de l'Université Louis Pasteur, Strasbourg.

Pelt, E., Chabaux, F., Lucas, Y., Ghaleb, B., Allard, T., Fritsch, E., Balan, E., Selo, M., Innocent, C., 2006. ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra radioactive disequilibria and recent dynamic within weathering profiles : Example of an Amazon lateritic profile in Manaus, Brazil. In 3rd EGU General Assembly, Vienna, Austria.

Perlmutter, M.A., Matthews, M.D., 1989. Global cyclostratigraphy – A model, in Cross, T.A., ed., Quantitative Dynamic Stratigraphy: Englewood Cliffs, Prentice Hall, 233-260.

Perlmutter, M.A., Radovic, B.J., Matthews, M.D., Kendall, M.D., 1998. The impact of high-frequency sedimentation cycles on stratigraphic interpretation, in Gradstein, F.M., Sandvick, K.O., and Milton, N.Y., eds., Sequence Stratigraphy, Concepts and Applications, Volume 8, NPF Special Publications, 141-170.

Phillips, F.M., Zreda, M.G., Smith, S.S., Elmore, D., Kubik, P.W., Dorn, R., Roddy, D.J., 1991. Age and geomorphic history of Meteor Crater, Arizona, from cosmogenic 36Cl and 14C in rock varnish. Geochemica and Cosmochimica Acta 55, 2695–2698.

Phillips, F.M., Zreda, M.G., Smith, S.S., Elmore, D., Kubik, P.W., Sharma, P., 1990. Cosmogenic Chlorine-36 chronology for glacial deposits at Bloody Canyon, eastern Sierra Nevada. Science 248, 1529–1532. **Pilgrim, G.E., 1910**. Preliminary note on a revised classification of the Tertiary fresh water deposits of India. Records of the Geological Survey of India 40, 264-326.

Plater, A. J., Dugdale, R. E., Ivanovich, M., 1988. The application of uranium series disequilibrium concepts to sediment yield determination. Earth Surf. Process. Landforms 13, 171-182.

Plater, A. J., Dugdale, R. E., Ivanovich, M., 1994. Sediment yield determination using uranium-series radionuclides : the case of the Wash and Fenland drainage basin, eastern England. Geomorphology 11, 41-56.

Plater, A.J., Ivanovich, M., Dugdale, R.E., 1995. ²²⁶Ra contents and activity ratios of the Fenland rivers and The Wash, eastern England: spatial and seasonal trends. Chemical Geology 119, 275-292.

Plater, A. J., Ivanovich, M., Dugdale, R. E., 1992. Uranium series disequilibrium in river sediments and waters : the significance of anomalous activity ratios. Appl. Geochem. 7, 101-110.

Pliler, R., Adams, J.A.S., 1962. The distribution of thorium and uranium in a Pennsylvanian weathering profile. Geochimica et Cosmochimica Acta 26, 1137-1146.

Porcelli, D., Andersson, P.S., Baskaran, M., Wasserburg, G.J., 2001. Transport of U- and Th- series in a Baltic Shield watershed and the Baltic sea. Geochim. Cosmochim. Acta 65, 2439-2459.

Porcelli, D., Andersson, P.S., Wasserburg, G.J., Ingri, J., Baskaran, M., 1997. The importance of colloids and mires for the transport of uranium isotopes through the Kalix River watershed and Baltic Sea. Geochim. Cosmochim. Acta 61, 4095-4113.

Porcelli, D., Swarzenski, P.W., 2003. The behavior of U- and Th-series nuclides in groundwater. In: B. Bourdon, G.M. Henderson, C.C. Lundstrom and S.P. Turner (Editors), Uranium-series Geochemistry. Reviews in Mineralogy and Geochemistry. Geochemical Society - Mineralogical Society of America, Washington, 317-361.

Porter, S.C., Orombelli, G., 1981. Alpine rockfall hazards. American Sciencist 69, 67–75.

Prikryl, J.D., Jain, A., Turner, D.R., Pabalan, R.T., 2001. Uranium (VI) sorption behavior on silicate mixtures. J. Cont. Hydrol. 47, 241-253.

Quade, J., Roe, L., DeCelles, P.G., Ojha, T.P., 1997. The late Neogene ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr record of lowland Himalayan rivers. Science 276, 1828-1831.

Quidelleur, X., Grove, M., Lovera, O.M., Harrison, T.M., Yin, A., Ryerson, F.J., 1997. Thermal evolution and slip history of the Renbu Zedong thrust, southeastern Tibet. J. Geophys. Res. 102, 2659-2679.

Rama, Moore, W.S., 1984. Mechanism of transport of U-Th series radioisotopes from solids into groundwater. Geochimica et Cosmochimica Acta 48, 395-399.

Rao, K. L., 1979. India's water wealth. Orient Longman limited.

Rapp, A., Nyberg, R., 1981. Alpine debris flows in northern Scandinavia. Geografiska Annaler 63A, 183–196.

Raymo, M.E., Ruddiman, W.F., 1992. Tectonic forcing of late Cenozoic climate. Nature 359, 117-122.

Raymo, M.E., Ruddiman, W.F., Froelich, P.N., 1988. Influence of Late Cenozoic mountain building on ocean geochemical cycles. Geology 16, 649-653.

Read, D., Bennett, D.J., Hooker, P.J., Ivanovich, M., Longworth, G., Milodowski, A.E., Noy, D.J., 1993. The migration of uranium into peat-rich soils at Broubster, Caithness, Scotland, U.K. Journal of Contaminant Hydrology 13, 291-308.

Richards, A., Argles, T., Harris, N., Parrish, R., Ahmad, T., Darbyshire, F., Draganits, E., 2005. Himalayan architecture constrained by isotopic tracers from clastic sediments. Earth Planet. Sci. Lett. 236, 773-796.

Riotte, J., Chabaux, F., 1999. (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios in freshwaters as tracers of hydrological processes: the Strengbach watershed (Vosges, France). Geochim. Cosmochim. Acta 63, 1263-1275.

Riotte, J., 2001. Etude du déséquilibre ²³⁴U-²³⁸U dans les eaux de rivière. Cas du Strengbach, du Mont Cameroun et de l'Himalaya. Thèse de l'Université Louis Pasteur.

Riotte, J., Chabaux, F., Benedetti, M., Dia, A., Gérard, M., Boulègue, J., Etamé, J., 2003. U colloidal transport and origin of the ²³⁴U-²³⁸U fractionation in surface waters: New insights from Mount Cameroon. Chem. Geol. 202, 365-381.

Riotte, J., Chabaux, F., 1999. (²³⁴U/²³⁸U) activity ratios in freshwaters as tracers of hydrological processes: the Strengbach watershed (Vosges, France). Geochim. Cosmochim. Acta 63, 1263-1275.

Rosholt, J., 1982. Mobilization and weathering. In: M. Ivanovich and R.S. Harmon (Editors), Uranium-series disequilibrium: Application to environmental problems. Oxford Sciences Publications, Oxford, 167-180.

Rosholt, J., Doe, B., Tatsumoto, M., 1966. Evolution of the isotopic composition of uranium and thorium in soil profiles. Geol. Soc. Am. Bull. 77, 987-1004.

Rosholt, J.N., Shields, W.R., Garner, E.L., 1963. Isotopic fractionation of uranium in sandstone. Science 139, 224-226.

RSP, 1996. Spatial representation and analysis of hydraulic and morphological data. Water Resources Planning Organization (WARPO).

Rubin, K.H., 2001. Analysis of ²³²Th/²³⁰Th in volcanic rocks: a comparison of thermal ionization mass spectrometry and other methodologies. Chem. Geol. 175, 723-750.

Sarin, M. M., Krishnaswami, S., Somayajulu, B. L. K., Moore, W. S., 1990. Chemistry of uranium, thorium, and radium isotopes in the Ganga-Brahmaputra river system: Weathering processes and fluxes to the Bay of Bengal. Geochim. Cosmochim. Acta 54, 1387-1396.

Schelling, D., 1992. The tectonostratigraphy and structure of the Eastern Nepal Himalaya. Tectonics 11, 925-943.

Schlager, W., 1993. Accomodation and supply – a dual control on stratigraphic sequences. Sediment. Geol. 86, 111-136.

Schmeide, K., Pompe, S., Bubner, M., Heise, K.H., Bernhard, G., Nitsche, H., 2000. Uranium (VI) sorption onto phyllite and selected minerals in the presence of humic acid. Radiochim. Acta 88, 723-728.

Scott, M.R., 1982. The chemistry of U- and Th-series nuclides in rivers. In: M. Ivanovich and R.S. Harmon (Editors), Uranium series disequilibrium: Application to environmental problems. Oxford Science Publications, Oxford, 181-201.

Scott, R.D., MacKenzie, A.B., Alexander, W.R., 1992. The interpretation of ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th-²²⁶Ra disequilibria produced by rock-water interactions. Journal of Geochemical Exploration 45, 323-343.

Sharma, K.K., Choubey, V.M., Chatti, H.R., 1991. Geological setting of the ophiolites and magmatic arc of the Lohit Himalaya (Arunachal Pradesh), India with special reference to their petrochemistry. Phys. Chem. Earth 18, 277-292.

Sharma, K.K., Rao, D.R., Azmi, R.J., Gopalan, K., Pantulu, G.V.C., 1992. Precambrian-Cambrian boundary in the Tal Formation of Garhwal Lesser Himalaya: Rb-Sr age evidence from black shales underlying phosphorites. Current Science 62, 528-530.

Sheng, Z.Z., Kuroda, P.K., 1986. Further studies on the separation of acid residues with extremely high ²³⁴U/²³⁸U ratios from a Colorado Carnotite. Radiochim. Acta 40, 95-102.

Sheng, Z.Z., Kuroda, P.K., 1986. Isotopic fractionation of uranium: extremely high enrichments of ²³⁴U in the acid-residues of a Colorado Carnotite. Radiochim. Acta 39, 131-138.

Shepard, M.K., Arvidson, R.E., Caffee, M., Finkel, R., Harris, L., 1995. Cosmogenic exposure ages of basalt flows: Lunar Crater volcanic field, Nevada. Geology 23, 21–24.

Shirvington, P.J., 1983. Fixation of radionuclides in the ²³⁸U decay series in the vicinity of mineralized zones: 1. The Austatom Uranium Prospect, Northern Territory, Australia. Geochim. Cosmochim. Acta 47, 403-412.

Short, S.A., Lowson, R.T., Ellis, J., 1988. ²³⁴U/²³⁸U and ²³⁰Th/²³⁴U activity ratios in the colloidal phases of aquifers in lateritic weathered zones. Geochimica et Cosmochimica Acta 52, 2555-2563.

Shroder, J.F., 1978. Dendrogeomorphological analysis of mass movement on table cliffs plateau, Utah. Quaternary Research 9, 168–185.

Sigmarsson, O., Carn, S., Carracedo, J.C., 1998. Systematics of U-series nuclides in primitive lavas from the 1730-36 eruption on Lanzarote, Canary Islands, and implications for the role of garnet pyroxenites during oceanic basalt formations. Earth. Planet. Sci. Lett. 162, 137-151.

Singh, I. B., 1996. Geological evolution of Ganga plain - an overview, J. of the Palaeontological Society of India 41, 99-137.

Singh, I. B., Ghosh, D. K., 1994. Geomorphology and neotectonic features of Indo-Gangetic Plain. In: India: Geomorphological diversity, (Eds. Dikshit, K.R., Kale, V.S. and Kaul, M.N.), Rawat Publications, Jaipur, 270-286.

Singh, L. P., Parkash, B., Singhvi, A. K., 1998. Evolution of the Lower Gangetic Plain landforms and soils in West Bengal, India. Catena 33, 75-104.

Singh, S.K., France-Lanord, C., 2002. Tracing the distribution of erosion in the Brahmaputra watershed from isotopic compositions of stream sediments. Earth Planet. Sci. Lett. 202, 645-662.

Singh, S.K., Kumar, A., France-Lanord, C., 2006. Sr and ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr in waters and sediments of the Brahmaputra river system: Silicate weathering, CO₂ consumption and Sr flux. Chem. Geol. 234, 308-320.

Singh, S.K., Reisberg, L., France-Lanord, C., 2003. Re-Os systematics of sediments of the Brahmaputra River system. Geochim. Cosmochim. Acta 67, 4101-4111.

Singh, S.K., Sarin, M.M., France-Lanord, C., 2005. Chemical erosion in the Eastern Himalaya : major ion composition of the Brahmaputra and δ^{13} C of dissolved inorganic carbon. Geochim. Cosmochim. Acta 69, 3573-3588.

Singh, M., Sharma, M., Tobschall, H.J., 2005. Weathering of the Ganga alluvial plain, northern India: implications from fluvial geochemistry of the Gomati River. Applied Geochemistry 20, 1-21.

Sinha, R., Friend, P. F., 1994. River systems and their sediment flux, Indo-Gangetic plains, Northern Bihar, India. Sedimentology 41, 825-845.

Smith, T.R., Bretherton, F.P., 1972. Stability and the Conservation of Mass in Drainage Basin Evolution. WRR 8, 1506-1529.

Spear, J.R., Figueroa, L.A., Honeyman, B.D., 2000. Modeling the removal of uranium (VI) under variable sulfate concentrations by sulfate-reducing bacteria. Appl. Envir. Microbiology 66, 3711-3721.

Srivastava, P., Parkash, B. P., Sehgal, J. L., Kumar, S., 1994. Role of neotectonics and climate in development of the Holocene geomorphology and soils of the Gangetic plains between Ramganga and Rapti rivers. Sedim. Geol. 94, 129-151.

Stampfli, G.M., Borel, G.D., 2002. A plate tectonic model for the Paleozoic and Mesozoic constrained by dynamic plate boundaries and restored synthetic oceanic isochrons. Earth and Planetary Science Letters 196, 17-33.

Stampfli, G.M., Mosar, J., Favre, P., Pillevuit, A., Vannay, J.-C., 1998. Permo-Triassic evolution of the western Tethyan realm: the Neotethys/east-Mediterranean basin connection. Peri Thetys 3.

Staudacher, T., Allegre, C.J., 1993. Ages of the second caldera of Piton de la Fournaise volcano Reunion determined by cosmic ray produce ³He and ²¹Ne. Earth and Planetary Science Letters 119, 395–404.

Steinmann, M., Stille, P., 1997. Rare earth element behavior and Pb, Sr, Nd isotope systematics in a heavy metal contaminated soil. Appl. Geochem. 12, 607-623.

Strack, E., Heisinger, B., Dockhorn, B., Hartmann, F.J., Korschinek, G., Nolte, E., Morteani, G., Petitjean, C., Neumaier, S., 1994. Determination of erosion rates with cosmogenic ²⁶Al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 92, 317-320.

Sturchio, N.C., **Bohlke**, J.K., **Binz**, C., **1989**. Radium-Thorium disequilibrium and zeolite-water exchange in a Yellowstone hydrothermal environment. Geochim. Cosmochim. Acta 53, 1025-1034.

Sturchio, N.C., Bohlke, J.K., Markun, F.J., 1993. Radium isotope geochemistry of thermal waters, Yellowstone National Park, Wyoming, USA. Geochimica et Cosmochimica Acta 57, 1203-1214.

Suzuki, Y., Banfield, J.F., 1999. Geomicrobiology of uranium. In: P.C. Burns and R. Finch (Editors), Uranium: mineralogy, geochemistry and the environment. Reviews in Mineralogy. Mineralogical Society of America, Washington, 393-432.

Thakur, V.C., 1986. Tectonic zonation and regional framework of eastern Himalaya. Sci. Terre 47, 347-360.

Thiel, K., Vorwerk, R., Saager, R., Stupp, H.D., 1983. ²³⁵U fission tracks and ²³⁸U-series disequilibria as a means to study recent mobilization of uranium in Archaean pyritic conglomerates. Earth and Planetary Science Letters 65, 249-262.

Thurber, D.L., 1962. Anomalous ²³⁴U/²³⁸U in nature. J. Geophys. Res. 67, 4518-4523.

Tucker, G.E., Bras, R.L., 2000. A stochastic approach to modeling the role of rainfall variability in drainage basin evolution. Water Resources Research 36, 1953-1964.

Tucker, G.E., Slingerland, R.L., 1994. Erosional dynamics, flexural isostasy, and long-lived escarpments: a numerical modeling study. JGR 99, 229-243.

Turner, S., Hawkesworth, C., van Calsteren, P., Heath, E., Macdonald, R., Black, S., 1996. U-series isotopes and destructive plate margin magma genesis in the Lesser Antilles. Earth and Planet. Sci. Lett. 142, 191-207.

Van der Zwan, C.J., 2002. The impact of Milankovitch-scale climatic forcing on sediment supply. Sediment. Geol. 147, 271-294.

Vidal, P., Cocherie, A., Le Fort, P., 1982. Geochemical investigations of the origin of the Manaslu leucogranite (Himalaya, Nepal). Geochim. Cosmochim. Acta 46, 2279-2292.

Viers, J., Dupré, B., Polvé, M., Schott, J., Dandurand, J.L., Braun, J.J., 1997. Chemical weathering in the drainage basin of a tropical watershed (Nsimi-Zoetele site, Cameroon); comparison between organic-poor and organic-rich waters. Chem. Geol. 140, 181-206.

Vigier, N., Bourdon, B., Turner, S., Allègre, C.J., 2001. Erosion timescales derived from U-decay series measurements in rivers. Earth Planet. Sci. Lett. 193, 549-563.

Vigier, N., Bourdon, B., Lewin, E., Dupré, B., Turner, S., Chakrapani, G.J., van Calsteren, P., Allègre, C.J., 2005. Mobility of U-series nuclides during basalt weathering: An example from the Deccan Traps (India). Chemical Geology 219, 69-91.

Vigier, N., Burton, K.W., Gislason, S.R., Rogers, N.W., Duchene, S., Thomas, L., Hodge, E., Schaefer, B., 2006. The relationship between riverine U-series disequilibria and erosion rates in a basaltic terrain. Earth Planet. Sci. Lett. 249, 258-273.

Von Blanckenburg, 2005. The control mechanisms of erosion and weathering at basin scale from cosmogenic nuclides in river sediment. Earth and Planetary Science Letters 237, 462-479.

Wagner, G.A., 1995. Altersbestimmung von jungen Gesteinen und Artefakten: physikalische und chemische Uhren in Quartargeologie und Archaologie, Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 277 pp.

Webster, R. K., 1960. Mass spectrometric isotope dilution analysis. Methods in Geochemistry (Smales, A. A. and Wagner, L. R., eds.), 202–246, Interscience, New York.

Weltje, G.J., DeBoer, P.L., 1993. Astronomically induced paleoclimatic oscillations reflected in Pliocene turbidite deposits on Corfu (Greece): implications for the interpretation of higher order cyclicity in ancient turbidite systems. Geology 21, 307-310.

Weltje, G.J., VanAnsenwoude, S.O.K.J., DeBoer, P.L., 1996. High-frequency detrital signals in Eocene fandelta sandstones of mixed parentage (south-central Pyrenees, Spain): a reconstruction of chemical weathering in transit. J. Sed. Res. 66, 119-131.

Whipple, K.X., Tucker, G.E., 1999. Dynamics of the stream-power river incision model: Implications for height limits of mountain ranges, landscape response timescales, and research needs. Journal of Grophysical Research 104, 17,661-17,674.

Willgoose, G., Bras, R.L., Rodríguez-Iturbe, I., 1991. A Coupled Channel Network Growth and Hillslope Evolution Model 1. Theory. WRR 27, 1671-1684.

Wolman, M.G., Miller, J.P., 1960. Magnitude and frequency of forces in geomorphic processes. J. Geol. 68, 54-74.

Xu, R.-H., Scharer, U., Allegre, C.J., 1985. Magmatism and metamorphism in the Lhasa Bloch (Tibet) : A geochronological study. J. Geol. 93, 41-57.

Yalin, M.S., 1980. Mechanics of sediment transport, Pergamon Press, Oxford.

Zielinski, R.A., Simmons, K.R., Orem, W.H., 2000. Use of ²³⁴U and ²³⁸U isotopes to identify fertilizer-derived uranium in the Florida Everglades. Applied Geochemistry 15, 369-383.

Zreda, M.G., Phillips, F.M., 1995. Insights into alpine moraine development from cosmogenic ³⁶Cl buildup dating. Geomorphology 14, 149-156.

Zuyi, T., Huanxin, G., 1994. Use of the ion exchange method for determination of stability constants of thorium ions with humic and fulvic acids. Radiochim. Acta 65, 121-123.

Zuyi, T., Jinzhou, D., Jun, L., 1996. Use of the ion exchange method for determination of stability constants of uranyl ions with three soil fulvic acids. Radiochim. Acta 72, 51-54.

Annexe

²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th disequilibria and timescale of sedimentary transfers in rivers: Clues from the Gangetic plain rivers (2006)

François Chabaux, Mathieu Granet, Eric Pelt, Christian France-Lanord, Valier Galy

Journal of Geochemical Exploration 88, 373-375

Cette étude utilise les déséquilibres ²³⁸U-²³⁴U-²³⁰Th des sédiments de rivière pour contraindre les temps de transfert des sédiments dans les plaines alluviales de rivières d'Himalaya et de la plaine du Gange. A partir des variations observées, des temps de transfert de sédiments de l'ordre de 100 ka sont proposés dans la plaine du Gange pour les rivières prenant leur source dans la chaîne himalayenne, et de plus longs temps de 160-250 ka pour les rivières de Piedmont. Cette variabilité serait attribuée à la différence de dynamique de transport des sédiments pour ces deux types de rivières.

[Signalement bibliographique ajouté par : SICD Strasbourg - Département de la Documentation électronique Service des thèses électroniques]

$^{238}\text{U}-^{234}\text{U}-^{230}\text{Th}$ disequilibria and timescale of sedimentary transfers in rivers: Clues from the Gangetic plain rivers

François CHABAUX, Mathieu GRANET, Eric PELT, Christian FRANCE-LANORD and Valier GALY Journal of Geochemical Exploration, 2006, Vol. 88, Issues 1-3, Pages 373-375

Pages 264-266 :

La publication présentée ici dans la thèse est soumise à des droits détenus par un éditeur commercial.

Pour les utilisateurs ULP, il est possible de consulter cette publication sur le site de l'éditeur :

http://dx.doi.org/10.1016/j.gexplo.2005.08.078

La version imprimée de cette thèse peut être consultée à la bibliothèque ou dans un autre établissement via une demande de prêt entre bibliothèques (PEB) auprès de nos services : <u>http://www-sicd.u-strasbg.fr/services/peb/</u>







Constantes de temps des processus d'érosion et d'altération dans le système himalayen : approche géochimique élémentaire et isotopique par les séries de l'uranium.

La détermination des constantes de temps caractéristiques des processus d'érosion mécanique et d'altération chimique est une étape indispensable pour comprendre la réponse des reliefs vis-à-vis des forçages externes tels que la tectonique, le climat et les activités anthropiques. Cette problématique est abordée par l'analyse des nucléides des séries de l'uranium dans les sédiments et les matières en suspension transportés par les rivières himalayennes des bassins du Gange et du Brahmapoutre.

Dans le bassin du Gange, les constantes de temps d'altération déterminées dans la haute chaîne à partir de l'étude des sédiments grossiers de la Kali Gandaki varient de quelques milliers d'années, où la surrection est maximale, à 350 ka. Elles traduisent ainsi une durée d'altération très importante des roches en place avant que les produits d'altération ne soient transportés sous forme de sédiments dans les rivières.

En sortie de chaîne, ces sédiments sont transportés par les affluents du Gange, la Gandak et la Ghaghara, sur une période de transfert de l'ordre de 100 ka. L'étude des sédiments à l'exutoire des affluents du Brahmapoutre suggère quant à elle des périodes d'altération variant entre 110 et 270 ka. Ces temps longs confirment le rôle des périodes de stockage provisoires en différents endroits du bassin.

Dans le Gange et la Brahmapoutre, les constantes de temps déterminées pour le transfert des sédiments sont respectivement de 575 ka et de 160 ka, c'est-à-dire du même ordre de grandeur que les temps de réponse de ces deux fleuves. Ces temps longs étant supérieurs aux temps caractéristiques des oscillations climatiques quaternaires, ils confirment le pouvoir tampon des plaines alluviales asiatiques sur les variations de flux sédimentaire haute-fréquence en réponse aux forçages externes dans la haute chaîne.

L'étude des matières en suspension suggère que leurs compositions chimiques reflètent le rôle des processus de mélange entre des sédiments grossiers et du matériel superficiel plus fin, recyclé par la végétation et ayant des origines variées. A la différence des sédiments grossiers, les temps de transfert des matières en suspension seraient rapides ce qui suggère le potentiel des nucléides des séries de l'uranium pour aborder les lois de transport solide des particules en fonction de leurs tailles.

Time-scales of erosion and weathering processes in the Himalayan river system : element and isotope approach using the U-series.

The time-scales of erosion and weathering processes are key parameters which need to be determined to understand the response of the reliefs to external forcings like tectonics, climate and human activities. They were recovered by using U-series nuclides analyzed in sediments and suspended materials carried by the Himalayan rivers of the Ganges and Brahmaputra basins.

In the Ganges basin, the time-scales of weathering determined from the study of coarse sediments carried by the Kali Gandaki range from several ky, where the surrection is located, to 350 ky. Such values indicate that the bedrocks are in situ weathered for a long period before the weathering residual products get transported in the rivers as coarse sediments.

At the outlet of the high range, these sediments are carried by the tributaries of the Ganges, the Gandak and Ghaghara, during a transfer period of about 100 ka. The study of the sediments at the outlet of the Brahmaputra tributaries allows to propose time-scales of weathering ranging from 110 to 270 ky. Such long periods confirm that during their transfer in the plains, the sediments are temporarily trapped at several places in the basins.

In the Ganges and Brahmaputra rivers, the time-scales of sedimentary transfer are 575 and 160 ky, respectively. These values, which are of the same order as their response times, are much longer than the time-scales of the Quaternary climate oscillations. It confirms the buffering action of the asiatic alluvial plains for the high-frequency sediment flux variations in response to external forcings in the chain.

The study of suspended materials suggests that their chemical compositions result from the mixing of coarse river sediments with fine particles from various locations in the basin which are affected by vegetation recycling. By contrast to coarse sediments, the time-scales of transfer for the suspended materials are fast, e.g. a few ky, pointing the potential of U-series nuclides to assess particle transport laws as a function of their size.