

Géomatériaux

# Mise en évidence d'un mécanisme de carbonatation secondaire dans le manteau supérieur du Languedoc

Jean-Marie Dautria<sup>a,\*</sup>, Delphine Bosch<sup>a</sup>, Jean-Michel Liotard<sup>b</sup>

<sup>a</sup> *Tectonophysique (UMR 5568 CNRS), université de Montpellier-II, place Eugène-Bataillon, 34095 Montpellier cedex 05, France*

<sup>b</sup> *Dynamique de la lithosphère (UMR 5573 CNRS), université de Montpellier-II, place Eugène-Bataillon, 34095 Montpellier cedex 05, France*

Reçu le 17 mars 2005 ; accepté après révision le 21 février 2006

Disponible sur Internet le 24 mai 2006

Présenté par Zdenek Johan

## Résumé

Des enclaves de lherzolite, contenant des agrégats microcristallins secondaires (0,1–1 mm) riches en calcite, ont été récoltées dans un *pipe* bréchtique messinien des Cévennes. Leur étude montre que la calcite provient de la cristallisation, à basse pression, d'un liquide silicocarbonaté résultant de la fusion, en profondeur, de diopside et de spinelle. Cette fusion aurait été induite, peu avant l'éruption, par l'infiltration, probablement en relation avec la remontée du magma, de fluides riches en CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O stockés dans le manteau lithosphérique. Ces fluides pourraient résulter de la décarbonatation de niveaux métasomatés par des magmas carbonatitiques à plus grande profondeur. *Pour citer cet article : J.-M. Dautria et al., C. R. Geoscience 338 (2006).*

© 2006 Académie des sciences. Publié par Elsevier SAS. Tous droits réservés.

## Abstract

**Role of secondary carbonation mechanism in the upper mantle of Languedoc (South France).** Lherzolite xenoliths with calcite-rich microgranular secondary aggregates (0.1–1 mm) have been sampled in a Messinian breccia pipe from the northeastern part of the Languedoc volcanic province (South France). Their study shows that the carbonate crystallized at low pressure from a silico-carbonated melt resulting from partial melting of diopside and spinel at depth. This melting has been induced by injection, shortly before the eruption, of CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O-rich fluids, stored probably within the upper lithospheric mantle and reset in motion by the magma ascension. These fluids would derive from decarbonation of levels of deeper lithospheric mantle previously metasomatized by carbonatitic melts. *To cite this article : J.-M. Dautria et al., C. R. Geoscience 338 (2006).*

© 2006 Académie des sciences. Publié par Elsevier SAS. Tous droits réservés.

*Mots-clés* : Manteau supérieur ; Xénolite ; Carbonate ; Isotopes ; Languedoc ; France

*Keywords* : Upper mantle ; Xenolith ; Carbonate ; Isotopes ; Languedoc ; France

## Abridged English version

The existence of an upper mantle metasomatized by carbonated agents beneath the Neogene volcanic province of Languedoc (South France) has been previ-

\* Auteur correspondant.

Adresse e-mail : [dautria@dstu.univ-montp2.fr](mailto:dautria@dstu.univ-montp2.fr) (J.-M. Dautria).

ously proposed by Jakni et al. [17]. This hypothesis was supported by the presence of microgranular reactional aggregates (Al poor secondary diopside + chromite + forsterite,  $\pm$  amphibole) in some peridotitic xenoliths from nephelinites and basanites of the Lodévois district (South Languedoc). Lack of carbonate in these aggregates was explained by complete decarbonation of the reacting melt, in relation with the  $P$ – $T$  equilibrium conditions (near 1000 °C and 1.8 GPa) of the samples. A new set of xenoliths has been recently sampled in a Messinian phreatomagmatic breccia pipe from the northern part of the province (col de la Pierre Plantée, CPP; 3°23'15"E, 44°3'24"S) [12]. Some xenoliths contain secondary aggregates similar in size and shape to those described in Lodévois (Fig. 1), but significantly different in mineralogy, especially because of the presence of calcite. We have carried out petrological, geochemical and isotopical study on these rocks in order to bring new informations on the Languedoc lithospheric mantle.

The host lava is a sodic basanite similar in composition (major and trace elements, Sr, Nd, Pb isotopes) to the Languedoc Plio-Quaternary lavas [22] and, at larger scale, to the Cenozoic primary basalts from French Massif central (FMC) [6,26,27] (Figs. 2–4).

The calcite-bearing peridotites are always spinel lherzolites with porphyroclastic textures and have all been affected by annealing process of varying intensity. The temperatures of equilibration registered by both cores and rims of the pyroxenes are similar: between 850 and 890 °C according to the geothermometer of Wells [25], between 800 and 870 °C according to Brey and Kohler [2]. The olivine–spinel geothermometer of Li et al. [21] gives similar temperatures for the crystal cores (860–870 °C), but the rims have registered a slight but significant reheating (910–950 °C). According to the geotherm estimated for the South Languedoc by Jakni et al. [17], the equilibration pressure of the CPP lherzolites would range from 1.3 to 1.6 GPa. Therefore, they would come from more superficial lithospheric levels (43–53 km) than the carbonated peridotites from Lodévois (around 60 km).

The secondary microgranular aggregates are scattered throughout the samples, but only when diopside and spinel are in contact. Their sizes range from 0.1 to 1 mm and their shapes are variable: from triangle with thin apex for the smallest, to polylobate holly leaf for the largest (Fig. 1a). Moreover they are interconnected by a network of microveinlets (<100  $\mu$ m in width) occurring preferentially inside joints between olivine crystals. This ordering obviously results from percolation of a

low viscosity and high connectivity fluid as well as from its reaction with the rocks in specific sites. Moreover, the aggregate texture strongly reminds of a recrystallized glass (Fig. 1b). Five minerals are present (Table 3) in variable amounts:

- ferro-aluminous antigorite (60 to 80% in volume) as microcrysts (1 to 3  $\mu$ m in size) with tabular shapes;
- calcite (20–30%), sometimes as euhedral crystals (up to 200  $\mu$ m in diameter) (Fig. 1b), most often as interstitial between antigorite grains. Whatever the habit, its composition is homogeneous and particularly low in Mg (% MgO < 1) and Fe (% FeO < 0.3);
- spinel (5–30%), with variable shapes (from triangle to square for the crystals between 50 and 100  $\mu$ m in size, to skeletal rectangular shapes for these between 200 and 400  $\mu$ m, Fig. 1b) and compositions (9 < % Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> < 29.5, 0.14 < % TiO<sub>2</sub> < 1.6, for instance). For comparison, the lherzolite spinels have Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and TiO<sub>2</sub> amounts near 15 and 0.15%, respectively (Table 3);
- ilmenite (40 < % TiO<sub>2</sub> < 45), commonly as thin rims (<5  $\mu$ m in width) around the skeletal spinels, rarely as discrete microcrysts;
- unaltered Ni–Fe sulfide as ovoid droplets up to 100  $\mu$ m in diameter and with Ni/Fe ratios (near 1.7) similar to those of the lherzolite pentlandite.

The aggregates also include small diopsides with fringed shapes and round grains of brown spinel. Both have peridotitic compositions (Table 3) and they are commonly in optic continuity with the minerals surrounding the aggregates. Therefore they contain neither secondary diopside, nor amphibole, phyllosilicate and apatite, as often observed in peridotites percolated by carbonated melts [5,11,16,17]. This suggests that the aggregates of CPP xenoliths rather result from *in situ* melting of the lherzolite diopsides and spinels.

The incompatible trace element distribution in the selected calcite-bearing lherzolite PP2 (Table 1, Fig. 2) is not what could be expected if metasomatized by carbonated melts, as can be seen from the analysis of a peridotitic xenolith from Lodévois (SOU6, Table 1) supposedly affected by such a metasomatism. The SOU6 spider diagram (Fig. 1) differs from PP2 by typical strong negative anomalies in Nb, Ta, Zr and Hf classically ascribed to interaction with carbonated melts [7,15,20]. Spider diagrams similar to PP2 are well known in FMC where they are considered to represent a lithospheric

mantle affected by low degree of partial melting (<5%) and subsequently metasomatized by small volumes of alkali silicated and hydrated melts [20].

Isotopically, PP2 plots in the FMC xenolith field (Table 2, Fig. 3) and is significantly enriched in radiogenic Sr ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.704424 \pm 10$ ) and depleted in radiogenic Nd ( $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd} = 0.512554 \pm 14$ ) with regard to the host lava PP1 ( $0.703407 \pm 11$  and  $0.512944 \pm 15$ , respectively). The Sr and Nd isotopic difference between PP1 and PP2 is corroborated by the Pb isotopic ratios (Table 2, Fig. 4). The PP2 enrichment in radiogenic Sr can be related to the high  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratio ( $0.704533 \pm 10$ ) measured in its acidic lixiviate ( $\text{HCl}_{6\text{N}}$ ,  $60^\circ\text{C}$ , 30') (Table 3), which is probably near the calcite ratio (even if serpentine is probably also affected by some dissolution during lixiviation). It can be noticed that this Sr isotopic ratio is similar to ratios measured in carbonates from trachy-carbonatitic tuffs from FMC [4]. These isotopic observations imply an external component in the genesis of the PP2 calcite, which cannot be the host magma. This component is probably the fluid responsible for the melting of lherzolite diopsides and spinels.

In summary, the aggregates observed in the CPP lherzolitic xenoliths would represent low pressure and low temperature crystallization products of small melt pockets. From the relative amounts and the chemistry of the minerals (Table 3), the melt composition can be roughly estimated as silico-carbonated ( $25 < \% \text{SiO}_2 < 33$ ,  $11 < \% \text{CaO} < 17$ ,  $9 < \% \text{CO}_2 < 13$ ), rich in Mg and  $\text{H}_2\text{O}$  ( $22 < \% \text{MgO} < 30$ ,  $10 < \% \text{H}_2\text{O} < 13$ ) but without alkali that is near the composition of carbonate droplet measured in La Gomera peridotite [11]. As the relative percentage of the residual primary spinel with regard to the secondary one and the amount of ilmenite cannot be precisely evaluated in the aggregates, Al, Fe and Ti amounts cannot be estimated. The lack of alkali would result both from the low alkali content of the melting phases (Cpx, Sp) and from the lack of alkali in the fluid responsible for this melting. Melting of diopside and spinel dominated by diopside (50–70%) would give melts with such compositions. We suggest that the fluid responsible for this melting is a  $\text{CO}_2$  and  $\text{H}_2\text{O}$  mixture of deep origin.

All our observations indicate that the upper levels of the lithospheric mantle (near 50 km deep) of Languedoc was impregnated by a  $\text{H}_2\text{O}$ – $\text{CO}_2$ -rich melt (with amounts between 1 and 2%) when they were entrapped by magma. The infiltration of the  $\text{H}_2\text{O}$ – $\text{CO}_2$ -rich fluid responsible for melting probably happened just before the entrapment of xenolith and may be related to magma

raising (piston effect). This hypothesis implicates that the fluid was stored within the lithospheric mantle. It is well known that a carbonated melt interacting with peridotite at pressure lower than 2.1 GPa and temperature between 950 and  $1050^\circ\text{C}$  is subjected to decarbonation, leading to  $\text{CO}_2$  release [3,10,13,28], such as the Lodévois peridotites [17]. Therefore the lithospheric levels from where the Lodévois peridotites come (about 60 km depth) represent a high potential source for  $\text{CO}_2$  in the Languedoc upper mantle.

Presently it is not possible to propose an age for the event responsible for the carbonated magma injection and the constitution of the  $\text{CO}_2$ -rich lithospheric reservoir. The highly alkali and  $\text{SiO}_2$  undersaturated compositions of all Neogene lavas of the region suggest that these events would be directly related to the recent magmatism, as yet proposed for other districts of FMC [19], but an Hercynian age cannot be excluded [9,20]. In the first case, it could be consequence of thermal disturbance, which affected the FMC and Languedoc upper mantle during Cenozoic. Whatever the age of the  $\text{CO}_2$  reservoir, degassing probably continues, as indicated by high amounts of mantle  $\text{CO}_2$  measured in all  $\text{CO}_2$ -rich springs of Languedoc [14].

## 1. Introduction

L'existence, à l'aplomb de la province volcanique du Languedoc, d'un manteau lithosphérique carbonatité a été suggérée, il y a quelques années, par Jakni et al. [17]. Cette hypothèse était étayée par la présence, dans certaines enclaves de péridotite remontées par des néphélinites pliocènes du Sud de la province (Lodévois), d'agrégats microcristallins secondaires essentiellement constitués de diopside très pauvre en Al, de chromite et de forstérite,  $\pm$  amphibole. L'absence de carbonate dans ces échantillons était expliquée par la consommation intégrale des fluides carbonatés par les réactions conduisant à la formation des phases secondaires. L'étude présentée ici a été menée sur un nouveau lot d'enclaves de péridotite provenant d'un complexe volcanique du Nord-Est de la province (col de la Pierre Plantée). Certaines d'entre elles contiennent des agrégats microcristallins (Fig. 1), comparables en taille et en forme à ceux que Jakni et al. ont décrits, mais de minéralogie différente puisqu'ils renferment, entre autres, de la calcite. Cette nouvelle observation apporte des éléments intéressants permettant une meilleure compréhension des événements mantelliques qui ont précédé et/ou accompagné le magmatisme néogène du Languedoc.

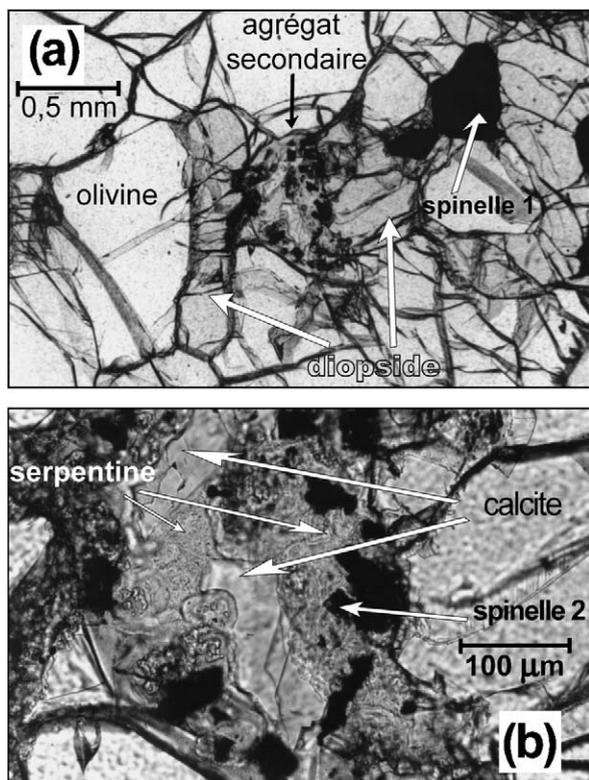


Fig. 1. Agrégat microcristallin de la lherzolite PP2, observé à faible (a) et fort (b) grossissement.

Fig. 1. Microgranular aggregate in lherzolite PP2 observed at low (a) and high (b) magnification.

## 2. Le complexe volcanique du col de la Pierre Plantée

Ce complexe, d'âge Messinien ( $6,35 \pm 0,15$  Ma) [12], est situé sur la bordure sud-ouest des Cévennes (carte IGN 1/25 000 de Nant,  $3^{\circ}23'15''E$ ,  $44^{\circ}3'24''S$ ). Il s'agit d'un *pipe* bréchiq ue phréatomagmatique, grossièrement elliptique ( $300 \times 200$  m), recoupant les schistes métamorphiques hercyniens [12]. Les brèches, par ailleurs riches en xénolites (socle, péridotite, ariégite, kaersutite) et en mégacristaux (augite alumineuse, kaersutite, plagioclase), le plus souvent très altérés, sont recoupées par une dizaine de dykes d'épaisseur métrique dont l'extension excède rarement quelques dizaines de mètres. Localement, l'un d'entre eux s'épaissit pour donner une intrusion plus massive évoquant un neck. C'est dans ce neck qu'ont été récoltées une vingtaine d'enclaves de péridotite parfaitement fraîches. Elles sont pour la plupart de taille modeste (entre 1 et 5 cm); seule une enclave décimétrique (PP2) a pu être dégagée. Il s'agit soit de lherzolites, soit de harzburgites, équilibrées dans le faciès à spinelle et de texture

porphyroclastique à granuloblastique. Toutes ont subi un recuit d'intensité variable suivant les échantillons. Ces enclaves se caractérisent aussi par l'absence totale de phase silicatée d'origine métasomatique. Les enclaves de lherzolite se sont, en revanche, avérées contenir de petits agrégats microcristallins secondaires, riches en carbonates. C'est sur ce type d'échantillon qu'ont porté nos investigations. Il est à noter qu'aucune des enclaves de harzburgite récoltées dans ce gisement ne présente de tels agrégats.

La lave hôte des enclaves est une basanite sodique ( $[mg] = 65$ ;  $Né_{(norm.)} = 15,3$ ; %  $SiO_2 = 45$ ; %  $(Na_2O + K_2O) = 6,1$ ; %  $(Na_2O/K_2O) = 2,5$ ), dont la composition, aussi bien en majeurs qu'en traces (Tableau 1, Fig. 2), et les rapports isotopiques du Sr, du Nd et du Pb (Tableau 2, Figs. 3, 4) sont comparables à ceux des basaltes du Languedoc [22] et, de manière plus générale, à ceux des basaltes du Massif central [6,26,27]. La minéralogie de cette lave est classique : phénocristaux d'olivine  $Fo_{72}$  (légèrement iddingsitisée en bordure) et d'augite très calcique ( $51 < \% Di < 59$ ;  $81 < [mg] < 0,84$ ; %  $TiO_2 \approx 2$ , %  $Al_2O_3 \approx 5$ ), à bordure enrichie en  $Al_2O_3$  ( $\approx 9\%$ ) et  $TiO_2$  ( $\approx 4\%$ ); mésostase constituée d'augite, de labrador et de titano-magnétite (%  $TiO_2 \approx 21$ ); phases interstitielles représentées par l'oligoclase, la néphéline et un verre brun violacé.

## 3. Les enclaves de lherzolite à calcite

### 3.1. Texture, minéralogie, conditions d'équilibre

Elles sont porphyroclastiques. Les porphyroclastes ont des longueurs comprises entre 5 et 10 mm et des largeurs entre 2,5 et 5 mm; les néoblastes, quant à eux, ont des formes le plus souvent polygonales et des diamètres compris entre 0,75 et 1,5 mm. La foliation et la linéation sont soulignées à la fois par l'allongement des porphyroclastes, des concentrations locales de néoblastes et l'habitus en chapelet des spinelles. L'olivine ( $89 < \% Fo < 89,5$ ), l'orthopyroxène ( $[mg] \approx 90$ ), le diopside ( $90 < [mg] < 91$ ) et le spinelle ( $50 < \% Al_2O_3 < 52$ ,  $13 < \% Cr_2O_3 < 15$ ) sont parfaitement en équilibre (Tableau 3).

Les cœurs des cristaux de pyroxène se sont équilibrés à des températures comprises entre 850 et 890 °C, si on se réfère au géothermomètre pyroxénique de Wells [25] et entre 800 et 870 °C, si on se réfère à celui de Brey et Kohler [2]. Les bordures, quant à elles, ont enregistré des températures comparables (entre 880 et 900 °C avec le premier géothermomètre, 850 et 880 °C avec le second). Le géothermomètre olivine–spinelle de Li et al. [21] donne des températures comparables pour le

Tableau 1

Composition chimique des échantillons étudiés. Les éléments majeurs ont été dosés par ICP-AES (CRPG, université de Nancy), les éléments traces par ICP-MS (ISTEEM, université Montpellier-2)

Table 1

Chemical characteristics for studied samples. PP1: host basanite; PP2: calcite lherzolite xenolith; SOU6: carbonated lherzolite xenolith from Lodévois (ISTEEM, University Montpellier-2, France)

%	PP1 basanite hôte de PP2	PP2 lherzolite à calcite de la Pierre Plantée	SOU6 lherzolite carbonatilisée (La Soumont)
SiO <sub>2</sub>	43,98	43,36	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	13,88	2,01	
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	12,55	9,14	
MnO	0,16	0,13	
MgO	10,02	42,40	
CaO	9,00	1,52	
Na <sub>2</sub> O	4,34	<LD	
K <sub>2</sub> O	1,73	<LD	
TiO <sub>2</sub>	2,56	<LD	
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0,69	<LD	
PF	1,07	0,30	
Total	99,98	98,86	
	[mg] = 65		
	Né <sub>(norm)</sub> = 15,3		
ppm			
Rb	32,4	0,57	1,76
Sr	889,5	15,0	15,2
Y	23,2	1,04	2,21
Zr	313,5	5,59	3,12
Nb	101,8	0,47	0,20
Cs	0,76	0,04	0,01
Ba	599	3,29	2,90
La	48,78	1,12	2,30
Ce	94,21	1,62	4,53
Pr	10,47	0,20	0,47
Nd	41,32	0,86	1,73
Sm	7,79	0,17	0,32
Eu	2,57	0,05	0,10
Gd	6,98	0,17	0,36
Tb	0,92	0,03	0,06
Dy	5,11	0,19	0,42
Ho	0,87	0,04	0,09
Er	2,27	0,13	0,28
Tm	0,26	0,02	0,04
Yb	1,48	0,14	0,29
Lu	0,22	0,02	0,05
Hf	6,78	0,21	0,13
Ta	6,17	0,04	0,01
Pb	3,44	0,20	0,82
Th	6,70	0,45	0,20
U	1,70	0,15	0,05

cœur des cristaux (860–870 °C), mais légèrement plus élevées pour les bords (910–950 °C). Compte tenu de la vitesse de rééquilibration de ces deux phases par rapport aux pyroxènes [18,23], ces dernières valeurs peuvent être interprétées comme l'effet d'un réchauffement

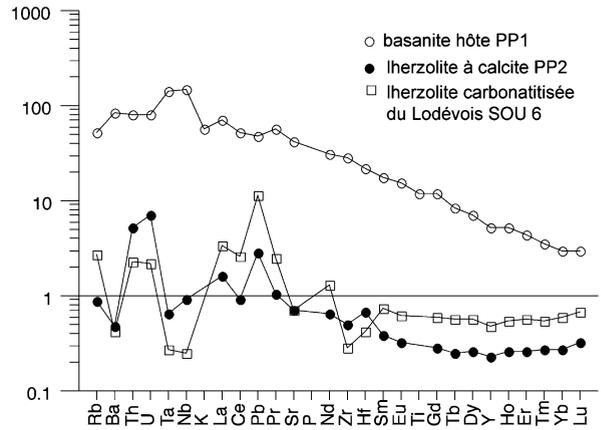


Fig. 2. Concentration des éléments traces incompatibles normalisés aux valeurs du manteau primitif [24] des échantillons étudiés.

Fig. 2. Incompatible trace element abundances in the studied samples normalized to Primitive Mantle values of Sun and McDonough [24].

d'une cinquantaine de degrés, légèrement antérieur à la remontée des échantillons. Si on se réfère à la géotherme estimée par Jakni et al. pour les enclaves du Lodévois [17], les lherzolites de la Pierre Plantée se seraient équilibrées à des pressions comprises entre 1,3 et 1,6 GPa (43–53 km). Il est à noter que les températures d'équilibration établies pour les enclaves du Lodévois, considérées comme carbonatilisées, avoisinent les 1000 °C et que leur profondeur d'origine a été estimée par ces auteurs entre 50 et 65 km.

### 3.2. Les agrégats microcristallins carbonatés

Ils représentent entre 1 et 2%, en volume, des échantillons étudiés et leur taille est comprise entre 0,1 et 1 mm (Fig. 1a). Leur forme varie entre celle d'un triangle aux pointes effilées, pour les plus petits, et celle d'une plage polylobée évoquant la géométrie d'une feuille de houx, pour les plus gros. Leur distribution au sein de la roche montre clairement que ces agrégats se sont développés uniquement là où des cristaux de diopside et de spinelle sont en contact et, d'après leur morphologie, il est clair que leur croissance s'est faite en utilisant les joints de grains adjacents.

La texture de ces agrégats évoque celle d'un verre recristallisé (Fig. 1b). Leur minéralogie est polyphasée et de relativement basse pression–basse température. Cinq phases y sont systématiquement associées, trois majeures (par ordre d'abondance, la serpentine, la calcite et le spinelle) et deux mineures (l'ilménite et un sulfure de nickel et de fer). Les compositions de ces phases, à l'exception de celle du sulfure, sont données dans le Tableau 3.

Tableau 2

Composition isotopique de la basanite PP1, de la lherzolite PP2, de son lessivat acide et de son résidu après lessivage acide. Les séparations chimiques des isotopes du Sr, du Nd et du Pb ont été effectuées au laboratoire de tectonophysique de l'université Montpellier-2. Les compositions isotopiques du Sr et du Nd ont été mesurées sur un spectromètre de masse à thermo-ionisation de type Finnigan-Mat 261 à l'université Paul-Sabatier de Toulouse. La moyenne de mesures des standards (NBS987 pour Sr et standard de Rennes pour Nd) analysés en alternance avec nos échantillons sont de  $0,710245 \pm 15$  ( $n = 6$ ) pour  $^{87}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}$  et  $0,511987 \pm 6$  ( $n = 3$ ) pour  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ . Les rapports isotopiques du plomb ont été mesurés à l'aide de l'ICP-MS multicollection de type VG P54 du service commun national à l'ENS de Lyon. La reproductibilité externe des mesures est contrôlée par l'analyse de standards NB5981, la reproductibilité interne est assurée en ajoutant une solution de Ti connue à la solution. La précision des rapports contenant l'échantillon mesuré est de 150–200 ppm pour les rapports isotopiques du Pb non dépendants du  $^{204}\text{Pb}$  et de l'ordre de 250 ppm pour les rapports  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  et  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$

Table 2

Isotopic composition of the host lava (PP1) and the calcite lherzolite (PP2). The composition of the lixiviated lherzolite and its acid lixiviate are also given

	$^{87}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}$	$\delta(2\sigma)$	$^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$	$\delta(2\sigma)$		
PP1	0,703417	0,000011	0,512949	7,69423E-06		
PP2						
non lessivée	0,704434	0,000008	0,512559	1,43517E-05		
résidu après lessivage	0,704469	0,000010				
lessivat	0,704533	0,000010	0,512693	3,3325E-05		
	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$\delta(2\sigma)$	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$\delta(2\sigma)$	$^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$\delta(2\sigma)$
PP1	38,9682	0,0046	15,6230	0,0036	19,1568	0,0037
PP2						
non lessivée	39,0408	0,0087	15,6115	0,0085	19,3530	0,0067
résidu après lessivage	38,9983	0,0095	15,6029	0,0087	19,3063	0,0065

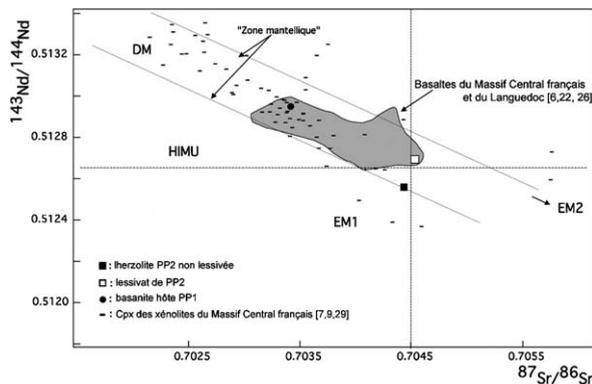
Fig. 3. Diagramme  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ – $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ .

Fig. 3. Nd vs. Sr isotopic diagram.

- (a) La serpentine représente entre 60 et 80% du volume des agrégats. Il s'agit d'une antigorite ferroalumineuse qui a cristallisé en microtablettes d'environ 1 à 3  $\mu\text{m}$  de taille. Sa richesse en Al ( $1,5 < \% \text{Al}_2\text{O}_3 < 7,5$ ) la distingue des antigorites classiques produites par altération des olivines.
- (b) La calcite (entre 20 et 30%) apparaît, soit en cristaux automorphes (Fig. 1b), soit en intercroissance avec la serpentine. Les plus gros cristaux (jusqu'à 200  $\mu\text{m}$ ) sont généralement subautomorphes et regroupés au cœur des agrégats. Quel que soit son *habitus*, la calcite est de composition homogène et

exempte de magnésium ( $\% \text{MgO} < 1$ ) et de fer ( $\% \text{FeO} < 0,3$ ).

- (c) Le spinelle (entre 5 et 30%) apparaît soit, pour les plus petits cristaux (entre 50 et 100  $\mu\text{m}$ ), avec des formes carrées (Fig. 1b) ou triangulaires, soit, pour le plus gros (entre 200 et 400  $\mu\text{m}$ ), avec une forme squelettique généralement inscrite dans un rectangle, les deux formes évoquant une cristallisation très rapide. Ces spinelles se distinguent de ceux de la roche par leur grande variabilité de composition ( $9 < \% \text{Cr}_2\text{O}_3 < 29,5$ , par exemple), et cela au sein même d'un agrégat, ainsi que par leurs relativement hautes teneurs en titane ( $0,14 < \% \text{TiO}_2 < 1,6$ ). Pour comparaison, les spinelles lherzolitiques ont des teneurs en  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  et  $\text{TiO}_2$  voisines, respectivement de 15 et de 0,15%.
- (d) L'ilménite ( $40 < \% \text{TiO}_2 < 45$ ) se rencontre sous deux formes : soit en petits cristaux indépendants de quelques dizaines de microns de taille, soit sous forme de fin liseré (moins de 5  $\mu\text{m}$  de large) autour des spinelles squelettiques. Compte tenu de la forme de ces derniers, l'ilménite peut parfois sembler incluse dans les spinelles.
- (e) Le sulfure de nickel et de fer cristallise en petites plages ovoïdes pouvant atteindre une centaine de microns de diamètre. Son rapport Ni/Fe, voisin de 1,7, est comparable à celui des pentlandites de la péridotite hôte.

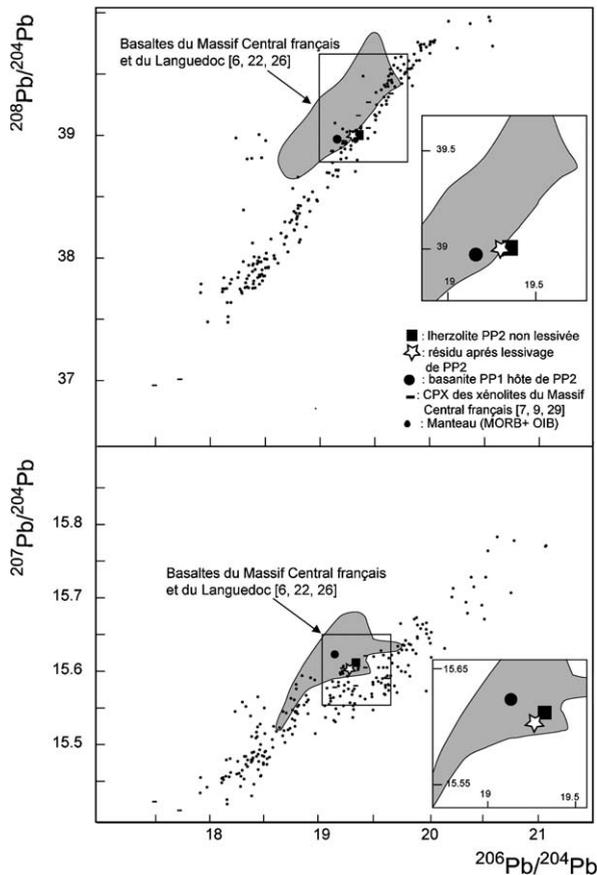


Fig. 4. Diagramme  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ – $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ .

Fig. 4.  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ – $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  diagram.

La répartition de toutes ces phases au sein des agrégats est variable et semble dépendre de la nature et de la

géométrie des minéraux qui les entourent. Par ailleurs, il est à noter que ces agrégats contiennent systématiquement des îlots arrondis de spinelle primaire, ainsi que de petites plages de diopside avec un aspect effiloché, une composition identique à celle des diopsides primaires qui bordent les agrégats et, souvent même, en continuité optique avec ces derniers. Ils ne contiennent donc ni de pyroxène secondaire au sens strict, ni d’amphibole, ni de phyllosilicate, ni d’apatite, comme cela a été souvent décrit dans des péridotites percolées par des magmas carbonatitiques [5,11,16,17]. Il est à noter que ces agrégats sont souvent interconnectés par des microveinules de quelques dizaines de microns d’épaisseur, remplies d’un mélange de calcite et de serpentine et utilisant préférentiellement les joints entre les cristaux d’olivine. Ce dispositif est de toute évidence la matérialisation d’un réseau d’infiltration d’un liquide.

Toutes ces observations nous conduisent à penser que les agrégats proviennent de la fusion *in situ* du diopside et du spinelle avec lesquels ils sont en contact, sous l’effet de l’injection d’un fluide très mouillant et très mobile.

### 3.3. Étude chimique et isotopique

Le spectre d’éléments incompatibles normalisé au manteau primitif de l’enclave de péridotite PP2 (Tableau 1, Fig. 2) est presque plat entre Lu et Eu, puis montre un enrichissement croissant depuis Eu jusqu’à La, auquel succède un appauvrissement progressif depuis La jusqu’à Rb. Hf présente une très légère anomalie positive par rapport à Zr, qui, lui, n’est pas anormale. Quant à Nb et Ta, ils ne présentent pas d’anomalies né-

Tableau 3

Composition chimique des phases de la lherzolite PP2 et de celles des agrégats microcristallins. Ces compositions ont été mesurées à la microsonde électronique du service commun de l’université Montpellier-2

Table 3

Chemical composition of the constitutive phases of lherzolite PP2 and secondary microgranular aggregates

%	lherzolite hôte PP2							agrégats microcristallins							
	olivine	2σ	enstatite	2σ	diopside	2σ	spinelle	2σ	serpentine	2σ	calcite	2σ	spinelle	2σ	ilménite
SiO <sub>2</sub>	40,61	0,29	55,38	0,2	51,79	0,36	0,13	0,01	41,94	1,45	0,22	0,32	0,92	1,85	1,44
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,01	0,01	3,25	0,09	4,46	0,23	50,89	0,34	2,31	1,71	0,02	0,01	49,12	6,09	0,48
TiO <sub>2</sub>			0,09	0,01	0,49	0,52	0,16	0,01	0,10	0,07	0,01	0,01	0,53	0,45	43,86
Na <sub>2</sub> O			0,05	0,01	1,03	0,15			0,03	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,07
CaO	0,08	0,05	0,54	0,05	21,97	0,25			0,20	0,15	55,69	0,63	0,16	0,37	0,33
MgO	48,62	0,67	33,41	0,16	25,98	0,21	19,77	0,24	33,46	2,32	0,26	0,35	19,27	2,36	2,87
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>			0,3	0,02	0,68	0,15	14,64	0,14	0,20	0,43	0,02	0,01	16,97	5,81	0,26
MnO	0,13	0,01	0,15	0,02	0,09	0,01	0,14	0,02	0,07	0,03	0,10	0,08	0,15	0,03	2,85
FeO	9,95	0,63	6,52	0,07	2,9	0,14	13,23	0,4	5,14	2,11	0,20	0,05	12,43	2,05	40,91
NiO	0,38	0,02	0,1	0,01	0,05	0,01	0,36	0,03	0,14	0,20			0,34	0,06	
K <sub>2</sub> O									0,16	0,28					
Total	99,88	0,47	99,78	0,48	99,43	0,45	99,35	0,37	83,76	1,74	56,54	0,28	99,89	2,00	93,07

gatives par rapport aux éléments adjacents. En revanche, Th, U et Pb présentent des anomalies positives très marquées. Ce spectre est très différent de ceux qu'on observe dans les péridotites du Lodévois, considérées comme carbonatitiques. Un échantillon de ce type de péridotite (SOU6) a été analysé à titre de comparaison (Tableau 1). Son spectre (Fig. 2) présente des anomalies négatives très fortes en Nb, Ta, Zr et Hf, généralement considérées comme caractéristiques d'une métasomatose carbonatitique [7,15,20]. Le spectre de PP2, en dépit de la présence de calcite, ne porte donc pas l'empreinte géochimique d'une telle métasomatose. En fait, le spectre de PP2 est bien connu dans le Massif central et caractériserait, d'après Lenoir et al. [20], un domaine lithosphérique affecté par de faibles taux de fusion partielle (taux <5%) et ultérieurement métasomatisé par de faibles fractions de liquide silicaté alcalin et hydraté.

Au point de vue isotopique (Tableau 2, Fig. 3), PP2 tombe dans le champ des enclaves du Massif central [8,9,29]. Les rapports  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ( $0,704424 \pm 10$ ) et  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  ( $0,512554 \pm 14$ ) montrent que les niveaux mantelliques d'où provient cette enclave sont significativement plus riches en Sr radiogénique et plus pauvres en Nd radiogénique que ceux à partir desquels le magma basanitique PP1 s'est formé (respectivement  $0,703407 \pm 11$  et  $0,512944 \pm 15$ ). L'enrichissement en Sr radiogénique de PP2 semble pouvoir être mis en relation avec la haute valeur du rapport  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ( $0,704533 \pm 10$ ) mesuré dans le produit de son lessivage acide ( $\text{HCl}_{6\text{N}}$ ,  $60^\circ\text{C}$ ,  $30'$ ), rapport qu'on peut considérer comme proche de celui de la calcite, et cela même si de la serpentine a certainement été aussi légèrement dissoute par le traitement acide. Il est à noter que cette composition isotopique tombe dans le domaine de variation ( $0,703922 < ^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} < 0,705109$ ) mesuré pour les carbonates des tufs trachy-carbonatitiques du Velay [4]. Compte tenu de ces valeurs, le magma basanitique ne peut en aucun cas être considéré comme la source des fluides responsables de la carbonatation de PP2. Cependant, les différences isotopiques observées entre cette enclave et son lessivat ne peuvent s'expliquer sans l'intervention d'un composant externe. Dans ce cas, le fluide identifié comme responsable de la fusion du diopside et du spinelle pourrait être ce composant. PP2 se caractérise aussi par des rapports isotopiques en Pb distincts de ceux de la lave hôte (Tableau 2, Fig. 4), ce qui renforce les conclusions précédentes. On notera aussi que les rapports isotopiques du plomb mesurés pour l'enclave et son résidu après lessivage acide fournissent des valeurs très voisines (Tableau 2, Fig. 4). Ceci témoigne de la faible participation des phases lessivées sur la signature isotopique du Pb de l'enclave. En re-

vanche, la composition isotopique du lessivat n'a pu être déterminée, en raison de sa trop faible concentration en cet élément, ce qui montre que la phase lessivée dominante est bien la calcite.

#### 4. Discussion et conclusions

De l'étude précédente, il ressort que les niveaux mantelliques situés autour de 50 km de profondeur sous le volcan de la Pierre Plantée étaient, avant leur remontée par la lave, imprégnés de liquide. Au cours de cette remontée, ce liquide, piégé sous forme de poches millimétriques, a subi une décompression et un refroidissement rapides aboutissant probablement à sa trempe, puis à sa recristallisation sous forme d'agrégats microcristallins, avec une paragenèse basse température–basse pression (serpentine + calcite + spinelle 2 + ilménite + sulfure). Si l'on se fie à la proportion modale des agrégats, on peut proposer une valeur comprise entre 1 et 2% pour la teneur minimale en liquide dans ces roches.

L'abondance relative des minéraux au sein des agrégats est très variable et, de ce fait, la composition du liquide dont il dérive est difficile à apprécier. Un calcul simpliste à partir des proportions modales permet, cependant, d'estimer ses tendances chimiques : il devait être pauvre en  $\text{SiO}_2$  (entre 25 et 33%), quasi exempt d'alcalins, en revanche riche en MgO (entre 22 et 30%), CaO (entre 11 et 17%),  $\text{H}_2\text{O}$  (entre 10 et 13%) et  $\text{CO}_2$  (entre 9 et 13%). Les teneurs Al, Fe et Ti sont difficilement appréciables, compte tenu de la difficulté d'estimation des proportions relatives de spinelle primaire résiduel, de spinelle 2 et d'ilménite.

Ces caractères chimiques confèrent à ce liquide une affinité silicocarbonatée indéniable qui le rapproche de celle des inclusions carbonatées décrites dans des enclaves de La Gomera [11]. Cependant, l'absence des marqueurs géochimiques habituels de la métasomatose carbonatitique (anomalies négatives en Nb, Ta, Zr et Hf) dans la péridotite PP2 rend peu probable la percolation–réaction d'un magma carbonatitique extérieur au système, comme cela a été proposé pour les péridotites de La Gomera [11] (et comme cela semble être le cas pour la péridotite SOU6 du Lodévois).

En accord avec nos observations microscopiques, l'infiltration aux joints de grains des péridotites d'un fluide essentiellement constitué de  $\text{CO}_2$  et d' $\text{H}_2\text{O}$ , déclenchant la fusion simultanée du diopside et du spinelle quand ils sont en contact, nous semble la meilleure explication pour rendre compte de la formation de ces poches de liquide. Une fusion impliquant le diopside à hauteur de 50 à 70% donnerait d'ailleurs un liquide chimiquement assez proche de celui estimé pour les

poches. Ceci est de plus en accord avec l'absence totale de phases alcalines dans la paragenèse des agrégats. En effet, les phases fondantes sont très pauvres en Na<sub>2</sub>O (autour de 1% pour le diopside) et exemptes de K. Cette pauvreté en alcalins implique par ailleurs que le fluide devait être lui-même très pauvre en alcalins. En revanche, il avait la capacité de remobiliser les sulfures des péridotites qu'il a traversées, ce qui est en accord avec sa richesse en CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O [1].

Les arguments isotopiques excluent le magma hôte des enclaves comme source des fluides responsables de la fusion. Il faut donc rechercher leur source au sein du manteau. Si le manteau lithosphérique supérieur de la Pierre Plantée était, comme nous le pensons, imprégné de liquide au moment de l'éruption, ceci implique que la fusion (et donc l'infiltration des fluides) ait été contemporaine de cette éruption, ou de peu antérieure. Si les arguments isotopiques excluent le magma hôte comme source des fluides, ils n'excluent pas que ce magma puisse être le moteur de leur injection dans les péridotites. Celle-ci pourrait résulter d'un effet de piston sous le contrôle d'une augmentation locale de porosité du milieu et de pression des fluides en relation avec la remontée de la colonne de lave. Ce qui conduirait à admettre que des fluides riches en CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O étaient présents et mobilisables, il y a environ 6 Ma, au sein du manteau lithosphérique des Cévennes méridionales.

Dans cette hypothèse, il reste à élucider la provenance de ces fluides. S'ils proviennent, comme nous le suggérons, du dégazage de niveaux mantelliques plus profonds que ceux affectés par leur infiltration, leur richesse en CO<sub>2</sub> conduit à envisager l'existence d'un composant carbonaté, par ailleurs enrichi en Sr isotopique, dans leur source. On sait que, lorsqu'un liquide carbonatitique interagit avec une péridotite, à des pressions inférieures à 2,1 GPa (donc au sein de la lithosphère) et des températures comprises entre 950 et 1050 °C, une décarbonatation a lieu et du CO<sub>2</sub> est libéré [3,10,13,28]. Les enclaves de péridotite du Lodévois étudiés par Jakni et al. [17] présentent toutes les traces minéralogiques et géochimiques (voir SOU6, Fig. 2) qu'on peut attendre d'une telle interaction et d'une telle décarbonatation. Les niveaux mantelliques qu'elles représentent, et qui, suivant les auteurs, seraient situés entre 50 et 65 km de profondeur, peuvent donc avoir libéré, au moment de leur métasomatose, une grande quantité de CO<sub>2</sub>. Dans ces conditions, un réservoir de fluides riche en CO<sub>2</sub> a pu se constituer sous le Languedoc, dans la partie supérieure du manteau lithosphérique.

Dans l'état actuel de nos connaissances, il est impossible de proposer un âge pour l'événement magmatique

responsable de la métasomatose carbonatitique et donc de la constitution de ce réservoir de fluides. Peut-être, comme le suggère la nature alcaline et très fortement sous-saturée de toutes les laves néogènes de cette région [22], cet événement est-il un précurseur direct du volcanisme. Il pourrait alors être, comme cela a été proposé pour le Forez [19], d'âge Paléocène ou Éocène et interprété comme une conséquence des perturbations thermiques qui, depuis la fin du Crétacé, ont affecté le manteau lithosphérique du Massif central et du Sud de la France. Cependant, si on se réfère aux travaux récents réalisés sur le Massif central [9,20], un âge Hercynien semble aussi tout à fait plausible pour cet événement. Quoi qu'il en soit, le dégazage de ce réservoir semble se poursuivre encore actuellement, comme le laissent supposer les très hautes teneurs en CO<sub>2</sub> mantellique qu'on observe dans toutes les sources carbo-gazeuses de la région [14]. Dans l'hypothèse d'un âge hercynien pour la métasomatose carbonatitique, il faudrait donc envisager que le stockage de fluides au sein du manteau supérieur du Languedoc perdure depuis au moins 300 Ma.

## Remerciements

Nous remercions O. Allard pour nous avoir fourni l'échantillon SOU6 et S. Pourtales pour les analyses à l'ICP-MS.

## Références

- [1] H.E.F. Amundsen, W.L. Griffin, S.Y. O'Reilly, The lower crust and upper mantle beneath northwestern Spitzbergen: evidence from xenoliths and geophysics, *Tectonophysics* 139 (1987) 169–185.
- [2] P. Brey, T. Kohler, Geothermometry in four phases lherzolites. II: New thermobarometers and practical assessment of existing thermobarometers, *J. Petrol.* 31 (1990) 1353–1378.
- [3] D. Canil, Experimental study bearing on the absence of carbonate in mantle derived xenoliths, *Geology* 8 (1995) 1011–1013.
- [4] G. Chazot, H. Bertrand, J. Mergoil, S.M.F. Sheppard, Mingling of immiscible dolomite carbonatite and trachyte in tuffs from the Massif central, France, *J. Petrol.* 44 (10) (2003) 1917–1936.
- [5] J.-M. Dautria, C. Dupuy, D. Takherist, J. Dostal, Carbonate metasomatism in the lithospheric mantle: peridotitic xenoliths from a melilititic district of the Sahara basin, *Contrib. Mineral Petrol.* 111 (1992) 37–52.
- [6] H. Downes, Sr and Nd isotope geochemistry of coexisting alkaline magma series, Cantal, Massif central, France, *Earth Planet. Sci. Lett.* 69 (1984) 321–334.
- [7] H. Downes, Formation and modification of the shallow subcontinental lithospheric mantle: A review of geochemical evidence from ultramafic xenolith suites and tectonically emplaced ultramafic massifs of western and central Europe, *J. Petrol.* 42 (2001) 233–250.
- [8] H. Downes, C. Dupuy, Textural, isotopic and REE variations in spinel peridotitic xenoliths, Massif central, France, *Earth Planet. Sci. Lett.* 82 (1987) 121–135.

- [9] H. Downes, M.K. Reichow, P.E.D. Mason, A.D. Beard, M.F. Thirlwall, Mantle domains in the lithosphere beneath the French Massif central: Trace element and isotopic evidence from mantle clinopyroxenes, *Chem. Geol.* 200 (2003) 71–87.
- [10] T.J. Falloon, D.H. Green, Solidus of carbonated fertile peridotite under fluid-saturated conditions, *Geology* 18 (1990) 195–199.
- [11] M.-L. Frezzotti, J.L.R. Touret, E.-R. Neumann, Ephemeral carbonate melts in the upper mantle: carbonate–silicate immiscibility in microveins and inclusions within spinel peridotite xenoliths, La Gomera, Canary Islands, *Eur. J. Mineral.* 14 (2002) 891–904.
- [12] P.Y. Gillot, *Chronométrie par la méthode potassium–argon des laves des Causses et du bas Languedoc : interprétations*, thèse de 3<sup>e</sup> cycle, université Paris-11, Orsay, 1974, p. 88.
- [13] D.H. Green, M.E. Wallace, Mantle metasomatism by ephemeral carbonate melts, *Nature* 336 (1988) 459–462.
- [14] J.-C. Grillot, M. Schoeller, Exemple d'approche pluridisciplinaire dans la caractérisation d'eaux thermales carbo-gazeuses, *Rev. Sci. Eau* 2 (1989) 211–228.
- [15] D.A. Ionov, C. Dupuy, S.Y. O'Reilly, M.G. Kopylova, Y.S. Genshaft, Carbonated peridotite xenoliths from Spitzbergen: Implications for trace element signature of mantle carbonate metasomatism, *Earth Planet. Sci. Lett.* 199 (1993) 283–297.
- [16] D. Ionov, R.E. Harmer, Trace element distribution in calcite–dolomite carbonatites from SpitsKop: inferences for differentiation of carbonatite magmas and the origin of carbonates in mantle xenoliths, *Earth Planet. Sci. Lett.* 198 (2002) 495–510.
- [17] B. Jakni, J.-M. Dautria, J.-M. Liotard, L. Briquieu, Mise en évidence d'un manteau carbonaté à l'aplomb du Bas-Languedoc : les xénolites péridotitiques du complexe volcanique de Grand-Magnon (Lodévois), *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. IIA* 323 (1996) 33–40.
- [18] J. Lehmann, Diffusion between olivine and spinel: Application to geothermometry, *Earth Planet. Sci. Lett.* 64 (1983) 123–138.
- [19] X. Lenoir, J.-M. Dautria, L. Briquieu, J.-M. Cantagrel, A. Michard, Nouvelles données géochronologiques, géochimiques et isotopiques sur le volcanisme du Forez : relation avec l'évolution cénozoïque du manteau du Massif central, *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. IIA* 330 (2000) 201–207.
- [20] X. Lenoir, C.J. Garrido, J.-L. Bodinier, J.-M. Dautria, Contrasting lithospheric mantle domains beneath the Massif Central (France) revealed by geochemistry of peridotite xenoliths, *Earth Planet. Sci. Lett.* 181 (2000) 359–375.
- [21] J. Li, J. Kornprobst, D. Vielzeuf, J. Fabries, An improved experimental calibration of the olivine–spinel geothermometer, *Chin. J. Geochem.* 14 (1995) 68–77.
- [22] J.-M. Liotard, L. Briquieu, J.-M. Dautria, B. Jakni, Basanites et néphélinites du bas Languedoc (France) : contamination crustale et hétérogénéité de la source mantellique, *Bull. Soc. géol. France* 170 (1999) 423–433.
- [23] K. Ozawa, Evaluation of olivine–spinel geothermometer as an indicator of thermal history for peridotites, *Contrib. Mineral. Petrol.* 82 (1983) 52–65.
- [24] S.S. Sun, W.F. McDonough, Chemical and isotopic systematics of oceanic basalts: implication for mantle composition and process, in: *Magmatism in the Ocean Basins*, Geol. Soc. Spec. Publ., Blackwell Science Publishers, Oxford, UK, 1989, pp. 387–405.
- [25] P.R.A. Wells, Pyroxene geothermometry in simple and complex systems, *Contrib. Mineral. Petrol.* 62 (1977) 129–139.
- [26] M. Wilson, H. Downes, Tertiary–Quaternary extension-related to alkaline magmatism in western and central Europe, *J. Petrol.* 32 (1991) 811–849.
- [27] M. Wilson, H. Downes, J.M. Cebria, Contrasting fractionation trends in coexisting continental alkaline magma series; Cantal, Massif Central, France, *J. Petrol.* 36 (1995) 1729–1753.
- [28] P.J. Wyllie, Origin of carbonatites: Evidence from phase equilibrium study, in: K. Bell (Ed.), *Carbonatite Genesis and Evolution*, Unwyn Hyman, London, 1989, pp. 500–540.
- [29] N.A. Zangana, H. Downes, M.F. Thirlwall, E. Hegner, Relationship between deformation, equilibration temperatures, REE and radiogenic isotopes in mantle xenoliths (Ray Pic, Massif Central, France): an example of plume–lithosphere interaction?, *Contrib. Mineral. Petrol.* 127 (1997) 187–203.