UNIVERSITÉ DE LORRAINE | BIBLIOTHÈQUES UNIVERSITAIRES

AVERTISSEMENT

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

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

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

Contact bibliothèque : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr
(Cette adresse ne permet pas de contacter les auteurs)

LIENS

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

Thèse

Présentée et soutenue publiquement pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE

Mention : GEOSCIENCES

Par : **Thomas OBIN**

Mobilités du carbone et du soufre dans l'environnement du Bassin de l'Athabasca (Saskatchewan, Canada) et impact(s) sur la formation des gisements d'uranium de type discordance

Soutenance publique le 30/01/2025

Membres du jury :

Directeurs de thèse :	M. Julien MERCADIER	Directeur de recherche, CNRS, France
	M. Raymond MICHELS	Chargé de recherche, CNRS, France
Président de jury :	Mme Béatrice LEDESERT	Professeur, Cergy Paris Université, France
Rapporteurs :	M. Yannick BRANQUET	Maître de Conférences, Université de Rennes, France
	Mme Béatrice LEDESERT	Professeur, Cergy Paris Université, France
Examinateurs :	Mme Marianne CONIN	Professeur, Université de Lorraine, France
	M. Baptiste DEBRET	Chargé de recherche, CNRS, France
	M. Christophe THOMAZO	Professseur, Université de Bourgogne, France
	M. Laurent TRUCHE	Professeur, Université Grenoble Alpes, France
Membres invités :	M. Marc BROUAND	Docteur, Orano Châtillon, France
	M. Patrick LEDRU	Docteur, Chaire industrielle Orano-Université de Lorraine

Remerciements

Après plus de trois années passées en doctorat, voici une page qui se tourne. Et pour en être arrivé jusque là, j'ai beaucoup de personnes à remercier, sans qui cela n'aurait pas été possible. En premier lieu, je tiens à remercier mes directeurs de thèse, Julien Mercadier et Raymond Michels, et mon co-encadrant de thèse Patrick Ledru, pour m'avoir donné l'opportunité de travailler sur un sujet aussi stimulant, tant pour les enjeux scientifiques qu'il soulève et l'activité de recherche qu'il suscite que pour la problématique industrielle liée à l'exploration des ressources qui lui est associée. Merci à vous pour votre expertise, vos conseils avisés, votre disponibilité, votre esprit de synthèse qui m'a souvent aidé à y voir plus clair.

Julien, je te remercie tout d'abord pour ton investissement dans ce projet et pour ton encadrement qui m'a toujours tiré vers le haut. J'ai apprécié que tu dises les choses sans langue de bois, ce qui se fait de plus en plus rare ! Je retiendrai, entre autres, les discussions scientifiques enflammées, les semaines passées sur le terrain à écouter des « chanteurs morts » comme tu les appelles et les sessions pêche au brochet mémorables. J'ai apprécié travailler avec toi ainsi qu'avec l'équipe du Labcom CREGU, à laquelle tu as apporté une véritable dynamique. Merci pour cela !

Raymond, merci pour les interractions que l'on a pu avoir durant ma thèse. J'ai toujours apprécié ta manière d'aborder les choses et le recul que tu as pu avoir sur mes thématiques de recherche. Je garderai en tête la métaphore du doctorant au cirque chinois. En espérant que tu rencontres bientôt l'élu qui résoudra le mystère des billes de bitume !

Patrick, un grand merci pour ta pédagogie, pour ton expertise sur les gisements d'uranium de l'Athabasca et leur exploration, ainsi que pour toutes les discussions que nous avons eues. Cela m'a été d'une grande aide, notamment au début de ma thèse, je t'en suis très reconnaissant.

De la même manière, je tiens à remercier le partenaire industriel de cette thèse, Orano, ainsi que toutes les personnes qui ont collaboré avec moi dans ce projet, en France comme au Canada. Je pense en particulier à Marc Brouand, alias pépétrographe, à Olivier Gerbeaud — avec qui ce fut un vrai plaisir d'échanger et de travailler sur le terrain —, à Pierre Martz, Pierre Filleul et

Anthony Le Beux pour la partie française. Merci également aux membres de Orano Canada avec qui j'ai pu travailler : Magdalena Anderson, Charles Khairallah, Rémi Chemillac, Amber Doney, John Robbins, Dan Gerger, Brandon Eccles, Grant Harrison et Chase Carter.

Un tel projet n'aurait évidemment pas pu être mené à bien sans les experts des différentes plateformes analytiques sur lesquelles j'ai acquis des données. Pour la partie GeoRessources, merci à Andreï Lecomte pour tes formations et les nombreuses fois où tu m'as fait gagner beaucoup de temps sur le microscope, à Olivier Rouer, à Lise Salsi et à Jean Cauzid pour les travaux au service commun de microscopie électronique et microanalyses. Merci également à Marie-Camille Caumon pour ton expertise sur le spectromètre Raman, à Cécile Fabre pour les analyses LIBS et les superbes images qui en ressortent. Merci à Alexandre et John du service lithopréparation pour leur disponibilité et leur travail. Je tiens également à remercier Emeline Moreira et Odile Barres pour les tests réalisés sur graphite au LA-ICP-MS et en spectroscopie infrarouge.

Un grand merci à Nordine Bouden pour les nombreuses séances de microsconde ionique au CRPG, toujours agréables et dans la bonne humeur. Merci également à Etienne Deloule et Michel Champenois pour les échanges que nous avons pu avoir à ce sujet. Merci à Jacek Scibek pour les mesures de perméabilité sur le camp d'exploration à McClean Lake, ainsi que pour les discussions à propos du fonctionnement des failles. Je tiens à remercier également les géologues de Cameco avec qui j'ai pu travailler sur le terrain ou bien présenter mes résultats : Shawn Harvey, Andrew Kaczowka, Gerard Zaluski et Alexandre Aubin. Merci aux géologues du service géologique du Saskatchewan pour leur acueuil et les échanges que nous avons pu avoir : Colin Card, Sean Bosman et Arin Kitchen.

Merci aux membres de mon comité de suivi, Christophe Tomazo et Guillaume Paris, pour votre bienveillance et vos précieuses remarques. Je tiens aussi à remercier Mathieu Lazerges, Yann Foucaud, Antonin Richard, Michel Cathelineau et Michel Cuney pour les conseils que vous avez pu me donner. Merci à Anne-Sylvie André-Mayer et Stéphanie Trombini pour votre accueil au sein du laboratoire et votre disponibilité. Merci à Cédrice Demeurie pour ton accueil au labo, pour les cafés, les services rendus et les barbecues !

Merci à tous les copains de Nancy avec qui j'ai passé des super moments et qui ont rendu ces quelques années bien plus agréables. Tout d'abord, les copains de l'uranium : Paul, Martin,

Mehdi, Gaétan, Manon, Marie et Quentin. Courage à ceux qui doivent bientôt terminer ! Un merci particulier à Paul pour un tas de choses. Je retiendrai quelques-unes de tes nombreuses anecdotes, les services que tu m'as rendus (jusqu'à l'impression des manuscrits !), ta convivialité... Je te dédicace les bouliers d'ailleurs ! Un grand merci à Martin, compagnon dans les super moments comme dans les jours de galère. Toutes mes félicitations pour être arrivé au bout ! Merci à Mehdi, je retiendrai ces merveilleuses journées d'été en salle CREGU entre rédaction, bières, cafés, variété française et films médiocres, on ne pouvait rêver mieux ! Merci à Gaétan pour ta disponibilité, ta bonne humeur, tes blagues. Je réclame ma revanche au concours de pêche ! Merci à Christophe, membre non officiel du Labcom mais bizarrement toujours présent pour une bière ou un café. Evidemment, je n'oublie pas les autres, Paul Baville (mais bien-sûr !!), Salim, Metzger, Vincent, Esther, Saïd, Caroline, Ahmed et Célestine. Un grand merci à Analice, la meilleure des colocs !

Enfin, tout ça n'aurait pas été possible sans quelques moments d'évasion avec les copains de longues dates. Je pense tout d'abord aux plus authentiques spécimens que j'ai la chance de compter parmi mes amis : Philémon et Simon, avec qui j'ai partagé tant d'escapades en montagne, en cabane ou ailleurs, sans oublier ces soirées de nouvel an d'anthologie (mention spéciale à Théo). De la même manière, merci à Eric, tu as toujours présent même de loin, dans la joie et la bonne humeur ! Une pensée particulière pour Maxime, toujours dans les bons coups. Merci à Quentin R., à Quentin C., à Lucas, à Romane, à Caroline, à Laurine et à Thomas.

Pour terminer, merci à Laurie, rien de tout ça n'aurait été possible sans ton soutien. Merci à ma famille qui a toujours été là pour moi.

Résumé étendu

Les gisements d'uranium de type discordance sont des gisements formés au Proterozoïque dans différentes provinces mondiales, dont le Bassin de l'Athabasca situé au Canada (Saskatchewan). Ces gisements hydrothermaux, caractérisés par les plus fortes teneurs en uranium connues sur Terre, se forment à la discordance entre le bassin et son socle cristallin en association spatiale avec des zones de cisaillement du socle riches en graphite et pyrite. Le carbone (C) et le soufre (S) sont des éléments ubiquistes dans l'environnement de ces gisements et y sont présents sous différentes formes (minéraux, gaz) au sein du socle et du bassin, démontrant une mobilité de ces éléments depuis ces zones de cisaillement. Ces deux éléments sont considérés comme des acteurs clés dans la formation de ces gisements, sans qu'un consensus ait pu jusqu'ici être atteint quant à leur(s) rôle(s) respectif(s) dans les mécanismes aboutissant à ces gisements exceptionnels.

Dans ce contexte, cette thèse est consacrée à l'étude de la mobilité du C et du S au cours du temps dans le système métallogénique considéré via l'étude des différents porteurs minéraux et gazeux de C et S, depuis les premiers enrichissements en C et S dans les zones de cisaillement liées à l'orogène Trans-Hudsonnien (ca. 1,85-1,75 Ga) et jusqu'à la formation après le dépôt du bassin des minéralisations primaires d'uranium (ca. 1,6-1,3 Ga) et des phases hydrothermales contemporaines porteuses de C et S.

Deux projets d'exploration récemment forés par Orano dans l'est du bassin, McClean South et Waterfound, présentant des minéralisations uranifères de tailles variables, ont été choisis comme cas d'étude. Ces sites possèdent les caractéristiques des grands gisements, mais leur volume réduit et leurs structures mieux préservées des phénomènes d'altération tardifs permettent une étude plus complète du cycle de ces deux éléments. Les travaux s'appuient sur une approche combinant (i) des observations de terrain (levés de log sur forages, mesures structurales des différents objets structuraux pré- et post-bassin), (ii) des travaux en laboratoire (pétrographie, études microscopiques, analyses chimiques par microsonde électronique, analyses isotopiques du C et du S par microsonde ionique et analyses chimiques en roche totale) et (iii) des modélisations isotopiques des mobilités de ces deux éléments. Ce travail original permet d'aboutir à la déconvolution des conditions de mobilité successives du carbone et du soufre sur près de 500 millions d'années. Les implications de ces résultats sont ensuite discutées à l'échelle du bassin en intégrant les données disponibles pour les gisements de l'ouest. Cette discussion

globale permet ainsi de proposer des hypothèses quant aux mécanismes et rôles de ces deux éléments dans la formation des gisements de type discordance dans le Bassin de l'Athabasca.

Mots-clés : Uranium, Athabasca, Carbone, Soufre, Isotopie

Extended abstract

Unconformity-related uranium deposits are Proterozoic deposits formed in various provinces around the world, including the Athabasca Basin in Canada (Saskatchewan). These hydrothermal deposits, characterized by the highest uranium grades recorded on Earth, form at the unconformity between the basin and its crystalline basement, in spatial association with graphite- and pyrite-rich basement shear zones. Carbon (C) and sulfur (S) are ubiquitous elements in the environment of these deposits and are present in various forms (minerals, gases) within the basement and basin, reflecting their mobility from these shear zones. Both elements are considered key players in the formation of these deposits, although no consensus has yet been reached regarding their respective role(s) in the mechanisms leading to such exceptional deposits.

In this context, this thesis is dedicated to the study of C and S mobility over time in the metallogenic system under consideration via the study of the various mineral and gaseous C and S carriers, from the first C and S enrichments in the shear zones associated with the Trans-Hudsonnian orogen (ca. 1.85-1.75 Ga) to the post-basin emplacement of primary uranium mineralization (1.6-1.3 Ga) and contemporary C and S-bearing hydrothermal phases.

Two exploration projects recently drilled by Orano in the eastern part of the basin, McClean South and Waterfound, with uranium mineralization of varying sizes, were selected as case studies. These sites have the same characteristics as large deposits, but their smaller volume and structures better preserved from late-stage alteration phenomena enable a more comprehensive study of the mobility of both elements. The work is based on an approach combining (i) field observations (drillhole log surveys, structural measurements of various pre- and post-basin structural objects), (ii) laboratory work (petrography, microscopic studies, chemical analyses by electron microprobe, isotopic analyses of C and S by ion microprobe and whole rock chemical analyses) and (iii) isotopic modelling of the mobilities of these two elements. This original work enables us to deconvolve the successive mobility conditions of carbon and sulfur over nearly 500 million years. The implications of these results are then discussed on a basin-wide scale, integrating the data available for the western deposits. This overall discussion enables us to propose hypotheses as to the mechanisms and roles of these two elements in the formation of unconformity-related uranium deposits in the Athabasca Basin.

Keywords: Uranium, Athabasca, Carbon, Sulfur, Isotopy

Table des matières

1 INTRODUCTION GENERALE 16

2 CONTEXTE GEOLOGIQUE GENERAL 34

2.1 EVOLUTION GEODYNAMIQUE DE LA PROVINCE DE RAE (OROGENE THELON/ TALTSON) 34

2.2 EVOLUTION GEODYNAMIQUE DE LA PROVINCE DE HEARNE (THO) 36

2.3 ETAT DE L'ART SUR LES « CONDUCTEURS GRAPHITEUX » 38

2.4 BASSIN SEDIMENTAIRE DE L'ATHABASCA 40

2.5 METALLOGENIE DES GISEMENTS D'URANIUM DE L'ATHABASCA 43

2.5.1 Rôles des fluides 43

2.5.2 Conditions et âge de précipitation des oxydes d'uranium 45

2.5.3 Caractérisation des différents types de minéralisation uranifère dans le Bassin de l'Athabasca 47

2.5.4 Rôle du graphite dans la précipitation des oxydes d'uranium 49

2.5.5 Rôle de la pyrite dans la précipitation des oxydes d'uranium 50

<u>PARTIE A :</u> ORIGINE ET MOBILITES DU CARBONE ET DU SOUFRE AVANT LE DEPOT DU BASSIN DE L'ATHABASCA : FORMATION DES ZONES DE CISAILLEMENT GRAPHITEUSES ET PYRITEUSES DE L'OROGENE TRANS-HUDSON

CHAPITRE 1 : CONTROLE DE L'EVOLUTION DES ZONES DE CISAILLEMENT DANS UN CYCLE OROGENIQUE SUR LA DISTRIBUTION ET L'ENRICHISSEMENT DU GRAPHITE : EXEMPLE DE L'OROGENESE TRANS-HUDSONIENNE PALEOPROTEROZOÏQUE 59

3.1 GEOLOGICAL SETTINGS 60

3.1.1 Regional settings: Trans-Hudson Orogeny and the Wollaston-Mudjatik Transition Zone 60

3.1.1 Graphitic shear zones of the WMTZ 62

3.2 SAMPLING AND ANALYTICAL METHOD 62

3.2.1 Sampling strategy 62

3.2.2 Petrographic studies 64

3.2.1 Raman Spectroscopy of Carbonaceous Materials (RSCM) 66

3.3 RESULTS 66

3.3.1 Lithological composition and graphite content of graphite-rich intervals and related rocks at Waterfound and McClean South 66

3.3.2 Types of structures in graphite-rich intervals at Waterfound and McClean South and related distribution of graphite *72*
3.3.3 Morphologies and structural and paragenetic distribution of graphite *75*
3.3.4 Graphite crystallinity and temperatures estimation *78*
3.4 DISCUSSION 80
3.4.1 Variabilities of graphite types and morphologies in the Paleoproterozoic graphite-rich shear zones of the WMTZ *80*
3.4.2 Nature and origin of processes controlling carbon mobility and graphite enrichment in paleoproterozoic graphite-rich shear zones *81*
3.4.3 Evolution of deformational conditions for shear zones and their role on graphite localization and crystallinity *85*
3.4.4 Enhancing understanding of graphite-rich shear zones: insights from this comparative study *88*
3.5 CONCLUSION 91

CHAPITRE 2 : LES PORTEURS DE SOUFRE DANS LES ZONES DE CISAILLEMENT GRAPHITEUSES DU SOCLE DE L'OROGENE TRANS-HUDSON : MINERALOGIE, RELATION PARAGENETIQUE, POSITIONNEMENT STRUCTURAL ET DISTRIBUTION SPATIALE 96

4.1 METHODOLOGIE 96
4.1.1 Stratégie d'échantillonnage *96*
4.1.2 Observations de terrain : logging des lithologies et structures à pyrite *96*
4.1.3 Etude pétrographique *97*
4.1.4 Cartographie élémentaire *97*
4.2 RESULTATS 98
4.2.1 Observations de terrain : répartition des porteurs de soufre dans les lithologies et structures de déformation des zones de cisaillement de MCS et WF *98*
4.2.2 Observations macroscopiques et microscopiques *101*
4.3 DISCUSSION 112
4.3.1 Origine des différents types de pyrite *114*
4.4 LIEN GENETIQUE ENTRE GRAPHITE HYDROTHERMAL ET PYRITE HYDROTHERMALE 116
4.4.1 Comparaison entre MCS et WF *117*
4.5 ZONES DE FAILLES A PYRITE ANALOGUES 117
4.6 CONCLUSION 120

CHAPITRE 3 : COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DU CARBONE ET DU SOUFRE DANS LES ZONES DE CISAILLEMENT GRAPHITEUSES AVANT LE DEPOT DU BASSIN DE L'ATHABASCA : SOURCE(S) DE CES ELEMENTS ET CONDITIONS PHYSICO-CHIMIQUES POUR LEUR PRECIPITATION 124

5.1 MATERIEL ET METHODES 124
5.1.1 Mesures du ^{12}C et ^{13}C dans les graphites et calcul du $\delta^{13}C$ 124
5.1.2 Mesures du ^{12}C et ^{13}C, et ^{16}O et ^{18}O dans la dolomite 125
5.1.3 Mesures ^{32}S, ^{33}S et ^{34}S dans la pyrite 126
5.1.4 Mesure des concentrations élémentaires en roche totale 127
5.2 RESULTATS 128
5.2.1 Mesures des concentrations élémentaires en roche totale 128
5.2.2 Mesures du $\delta^{13}C$ dans le graphite 131
5.2.3 Mesures du $\delta^{13}C$ et $\delta^{18}O$ dans la dolomite 138
5.2.4 Mesures $\delta^{34}S$ et $\Delta^{33}S$ dans la pyrite (Py_1 à Py_3) 140
5.3 DISCUSSION 144
5.3.1 Une composition isotopique initiale différente entre MCS et WF 144
5.3.2 Fractionnement isotopique lors de la fusion partielle des lithologies à graphite (Gr_1) 145
5.3.3 Fractionnement isotopique lors de la précipitation du graphite hydrothermal (Gr_2) 146
5.3.4 Précipitation des dolomites dans les failles à partir des fluides à C issus du graphite. 150
5.3.5 Fractionnement isotopique du carbone dans le graphite post-précipitation, dans les failles (Gr_d) 151
5.3.6 Fractionnement isotopique du soufre dans la pyrite 155
5.4 CONCLUSION 156

PARTIE B : ORIGINE ET MOBILITES DU CARBONE ET DU SOUFRE APRES LE DEPOT DU BASSIN DE L'ATHABASCA

CHAPITRE 4 : PORTEURS DE C ET S FORMES EN CONTEXTE POST-ATHABASCA : CARACTERISATION MINERALOGIQUE, ASSOCIATION PARAGENETIQUE, CONTROLE STRUCTURAL ET DISTRIBUTION SPATIALE DANS LE SOCLE ET LE BASSIN 162

6.1 MATERIEL ET METHODE 163
6.2 RESULTATS 164
6.2.1 Logging et caractérisation pétrographique des phases minérales formées en contexte post-Athabasca 164
6.2.2 Caractérisation des structures post-Athabasca à MCS et WF 184
6.2.3 Paramètres structuraux des failles et fractures à MCS et WF 187
6.3 DISCUSSION 189
6.3.1 Synthèse des descriptions pétrographiques et structurales post-Athabasca 189
6.3.2 Localisation des porteurs de C et S dans le système de type discordance 194

6.3.3 Effet(s) des altérations oxydantes de surface pre-Athabasca sur les porteurs de C et S 195
6.3.4 Rôle des déformations post-Athabasca sur les mobilités de C et S 196
6.4 CONCLUSION 199

CHAPITRE 5 : CARACTERISATION ISOTOPIQUE DE LA SIDERITE ET DES PYRITES EN LIEN AVEC LES GISEMENTS D'URANIUM 202

7.1 MATERIEL ET METHODE 202
7.2 RESULTATS 203
7.2.1 Mesures du $\delta^{13}C$ et $\delta^{18}O$ dans la sidérite 203
7.2.2 Mesures $\delta^{34}S$ et $\Delta^{33}S$ dans la pyrite (Py_4 et Py_5) 204
7.3 DISCUSSION 206
7.3.1 Origine du carbone et précipitation de la sidérite 206
7.3.2 Signification(s) d'un fractionnement isotopique important dans les pyrites post-Athabasca 210
7.4 CONCLUSION 211

PARTIE C : DISCUSSION GENERALE

8 APPORTS DE L'ETUDE DES PROJETS D'EXPLORATION DE MCS ET WF SUR LE(S) ROLE(S) DU CARBONE ET DU SOUFRE DANS LA FORMATION DES GISEMENTS D'URANIUM 214

8.1 LA TERMINOLOGIE « CONDUCTEURS GRAPHITEUX » 215
8.1.1 Nature des lithologies et structures dans les conducteurs graphiteux 215
8.1.2 Taille et distribution des zones de faille à graphite ± pyrite 216
8.1.3 Comparaison des « conducteurs graphiteux » des grands gisements avec MCS et WF 218
8.2 LE ROLE FONDAMENTAL DES ZONES DE CISAILLEMENT A GRAPHITE DANS LA FORMATION DES GISEMENTS DE TYPE DISCORDANCE 221
8.2.1 Le rôle mécanique de la pré-structuration du socle 224
8.2.2 Le rôle thermique des zones de cisaillement à graphite 225
8.2.3 Un rôle de source en carbone et en soufre pour les fluides 225
8.3 DEVELOPPEMENT D'UN ENVIRONNEMENT FRACTURE ET ROLE SUR LA CIRCULATION DES FLUIDES 226
8.3.1 Expressions de la fracturation pré-Athabasca dans le socle 226
8.3.2 Formation des gouges de faille post-Athabasca 228
8.3.3 Circulation des fluides dans les environnements déformés 228
8.3.1 Comparaison des structures et altérations post-Athabasca des grands gisements avec MCS et WF 230
8.4 MOBILITES DU CARBONE ET DU SOUFRE LORS DE LA MISE EN PLACE DES MINERALISATIONS D'URANIUM EN ATHABASCA 233

8.4.1 Génération de fluides réducteurs à carbone en post-Athabasca *233*

8.4.2 Génération de fluides réducteurs à soufre en post-Athabasca *237*

8.4.3 Schéma des mobilités du carbone et du soufre dans les systèmes de type discordance du Bassin de l'Athabasca. *239*

9 CONCLUSIONS GENERALES **244**

10 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES **248**

11 ANNEXES **273**

Introduction générale

1 Introduction Générale

L'uranium apparaît aujourd'hui comme une ressource incontournable du XXIe siècle, et sa contribution à la production d'énergie nucléaire lui confère une position stratégique au sein du mix énergétique global. Actuellement, environ 10 % de l'électricité mondiale provient des centrales nucléaires, avec une proportion nettement plus élevée dans certains pays comme la France, où cette part atteint près de 70 %. Dans les prochaines décennies, sa production tend à augmenter ou *à minima* rester constante selon le scénario envisagé (Figure 1.1). Dans ce contexte l'énergie nucléaire présente plusieurs avantages économiques, parmi eux :

- Réduction des émissions de carbone : comparée aux centrales à combustibles fossiles, l'énergie nucléaire génère très peu de CO_2, ce qui en fait un vecteur crucial pour atteindre une production énergétique élevée à bas carbone.
- Stabilité et fiabilité de production : l'énergie nucléaire offre une production d'électricité constante et prévisible, en contraste avec les énergies renouvelables intermittentes comme l'éolien et le solaire.
- Sécurité énergétique : en développant leurs capacités nucléaires, les pays peuvent réduire leur dépendance vis-à-vis des importations de combustibles fossiles dont les prix sont souvent volatils et les approvisionnements peuvent être incertains.
- Disponibilité de l'uranium : les réserves d'uranium sont abondantes et suffisamment vastes pour soutenir les besoins énergétiques pendant plusieurs décennies (OECD-NEA & IAEA, 2022).

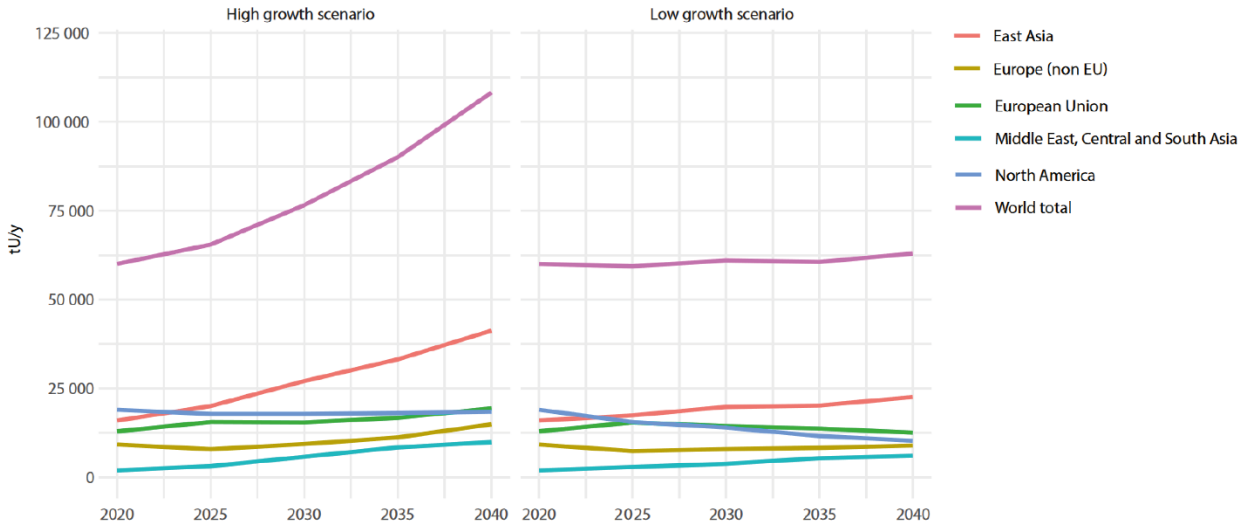
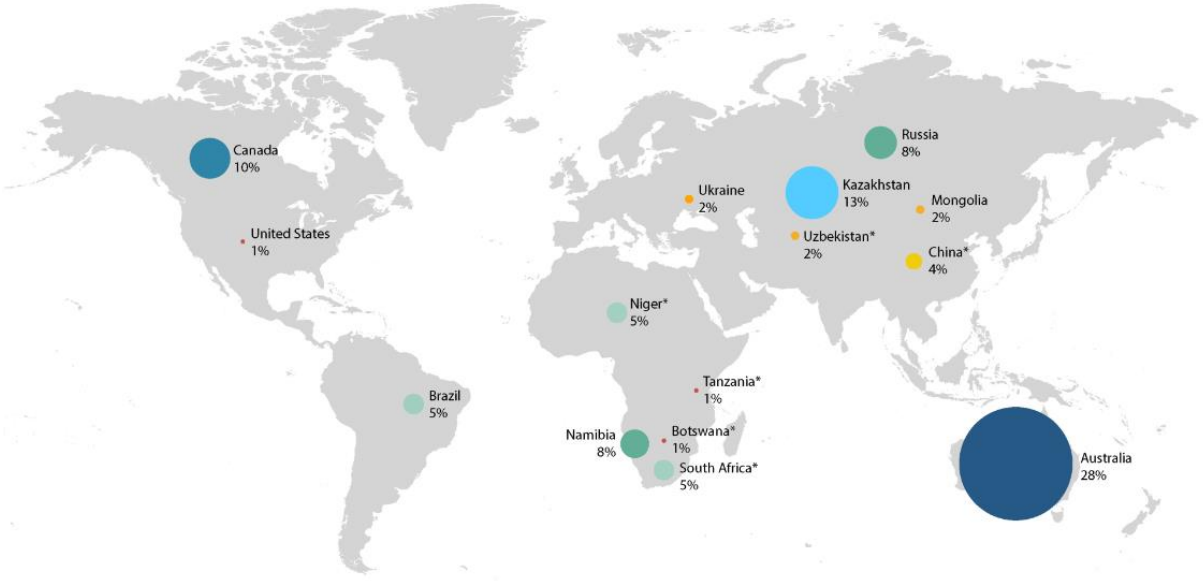


Figure 1.1 : Prévisions annuelles des besoins en uranium liés aux réacteurs jusqu'en 2040, projections basse et haute. D'après OECD-NEA & IAEA (2022).

Le Canada fait partie des grands producteurs mondiaux d'uranium (Figure 1.2). La majeure partie de sa production d'uranium est faite à partir de gisements liés à une discordance avec un bassin sédimentaire Protérozoïque, se situant dans le Bassin de l'Athabasca. Les ressources conventionnelles raisonnablement assurées par ce type de gisement au Canada s'élèvent à plus de 480 000 tonnes d'uranium récupérables, pour un prix inférieur à 130 USD par kilogramme d'U (OECD-NEA & IAEA, 2022).



**Estimation*

Figure 1.2 : Répartition mondiale des ressources en uranium conventionnel récupérables identifiées dans la catégorie de coût <130 USD/kgU parmi 15 pays, qui sont soit des producteurs majeurs d'uranium, soit ont des plans significatifs pour l'expansion de leur capacité de production d'énergie nucléaire, d'après OECD-NEA & IAEA (2022).

Depuis la découverte des premiers gisements d'uranium liés à une discordance dans le Bassin de l'Athabasca (Saskatchewan, Canada) dans les années 1960, et leur identification en tant que tels au milieu des années 1970, une exploration intensive a été menée par les compagnies minières conduisant à la découverte dans les années 1980 de gisements d'uranium de classe mondiale. Parmi eux, les gisements protérozoïques de Cigar Lake et McArthur River (Figure 1.3 et Figure 3.1) ont les teneurs les plus élevées jamais enregistrées pouvant dépasser 20 % de la roche totale en moyenne (Figure 1.4). Ce bassin demeure encore aujourd'hui une région stratégique pour l'exploration de l'uranium avec des découvertes régulières de gisements, et ce jusqu'à récemment, notamment celle de Triple R en 2012 (Figure 1.3).

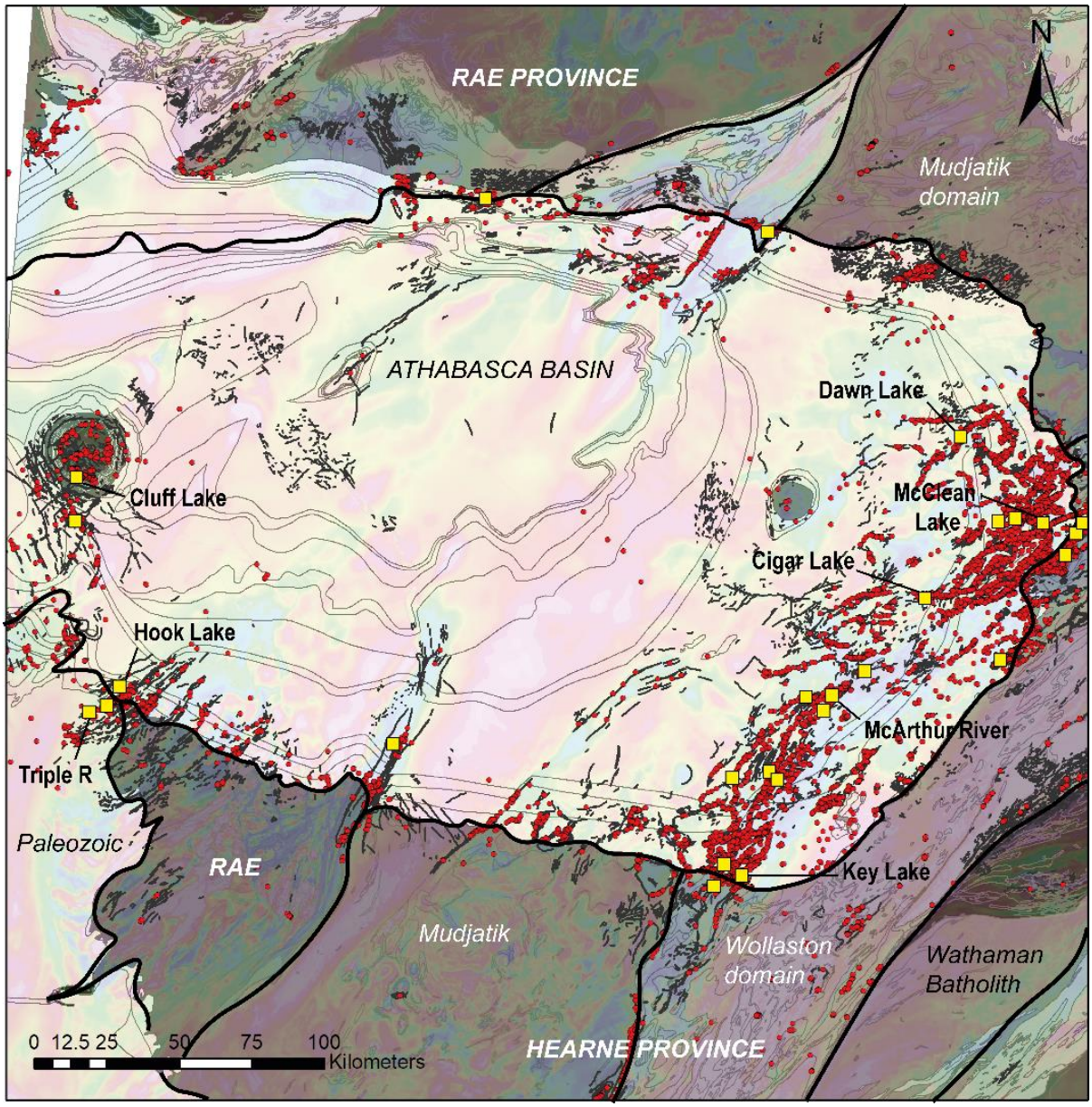


Figure 1.3 : Carte du Bassin de l'Athabasca (Saskatchewan, Canda) avec le tracé des différentes unités. Les traits gris foncé représentent les « conducteurs graphiteux » interprétés depuis les données électromagnétiques (EM). Les points rouges représentent l'ensemble des forages liés à l'exploration de l'uranium dans la région. Les carrés jaunes représentent les gisements ou les minéralisations à potentiel économique. Les données utilisées proviennent du Saskatchewan Geological Survey (SGS).

Le lien entre le carbone, le soufre et l'uranium est l'un des aspects les plus marquants de ces gisements, les minéralisations d'uranium étant (en grande majorité) spatialement associées à des intervalles de socle riches en graphite (principal minéral porteur de carbone, Figure 1.5) et/ou en pyrite (principal minéral porteur de soufre). Ces deux minéraux sont concentrés dans des zones de cisaillement et confèrent à ces dernières des propriétés électromagnétiques (EM)

singulières, les rendant identifiables depuis la surface grâce à des levés géophysiques aéroportées (Figure 1.3, Figure 3.1). Leur forte conductivité EM ainsi que leurs concentrations exceptionnelles en graphite leur ont valu la dénomination historique de « conducteurs graphiteux » (Figure 1.5).

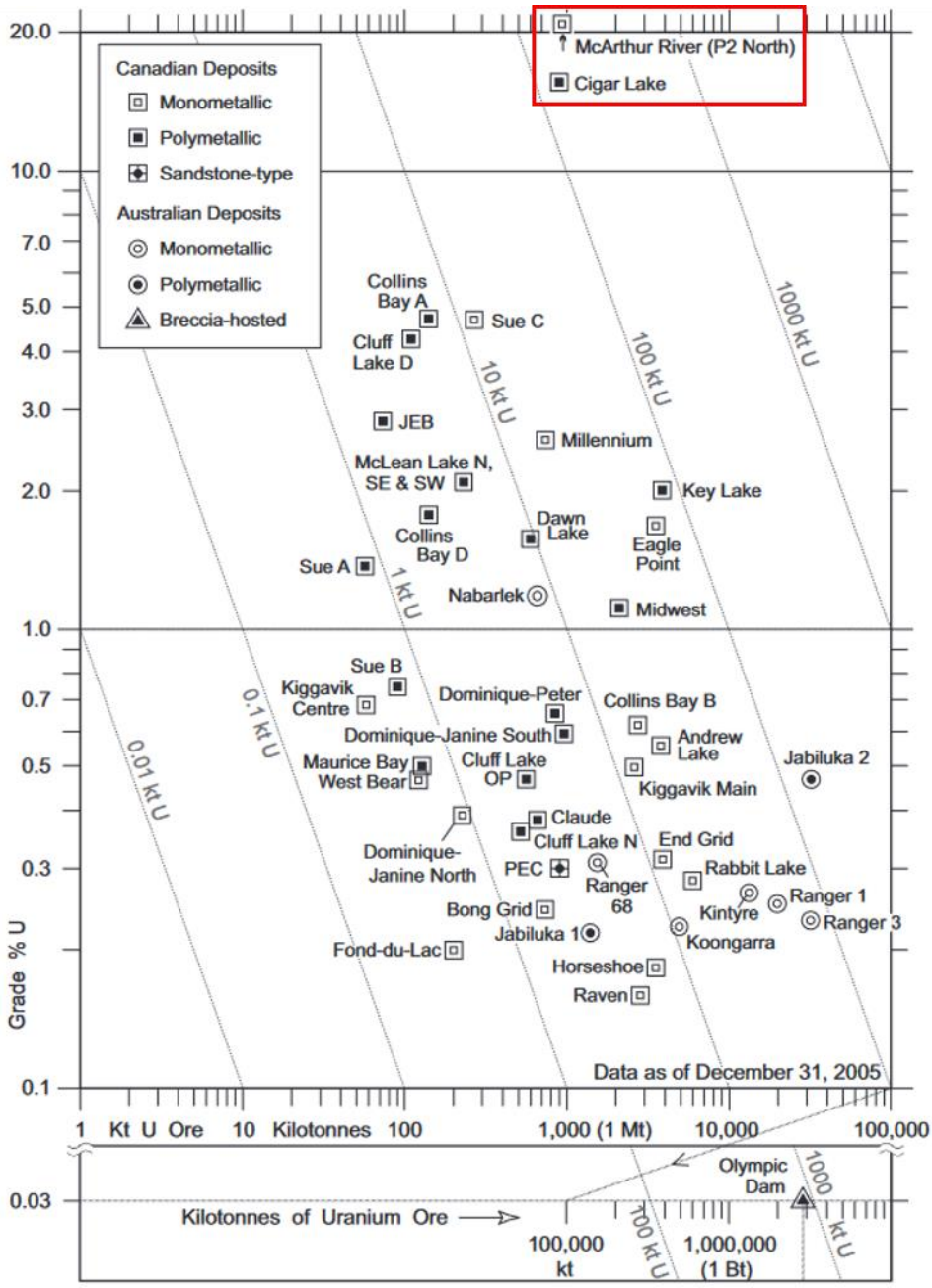


Figure 1.4 : Diagramme de la teneur en uranium en fonction du tonnage pour des gisements associés à une discordance au Canada et en Australie, modifié d'après Jefferson et al., 2007.

En raison de ces relations (lien spatial C-S-U et propriétés géophysiques), ces conducteurs ont été ciblés de manière intensive pour l'exploration de l'uranium dans le Bassin de l'Athabasca

depuis des décennies. Cependant, des dizaines d'années de forage dans des milliers de kilomètres de "conducteurs graphiteux" à l'échelle du bassin (Figure 1.3) ont démontré que la majorité est stérile et qu'il n'est actuellement pas possible de les différencier des conducteurs minéralisés. Pour ces derniers, seules certaines zones sont minéralisées et d'autres restent stériles (Figure 1.6) : il apparait qu'il y a eu des conditions spécifiques locales au sein de ces conducteurs pour permettre des circulations hydrothermales de très fortes intensités et des précipitations massives d'uranium. Par ailleurs, un nombre important des conducteurs sans gisement présentent des altérations hydrothermales similaires (à premier ordre) à celles observées dans les gisements, ce qui indique que des circulations hydrothermales y ont lieu mais qu'elles n'ont pas abouti à des concentrations importantes d'uranium.

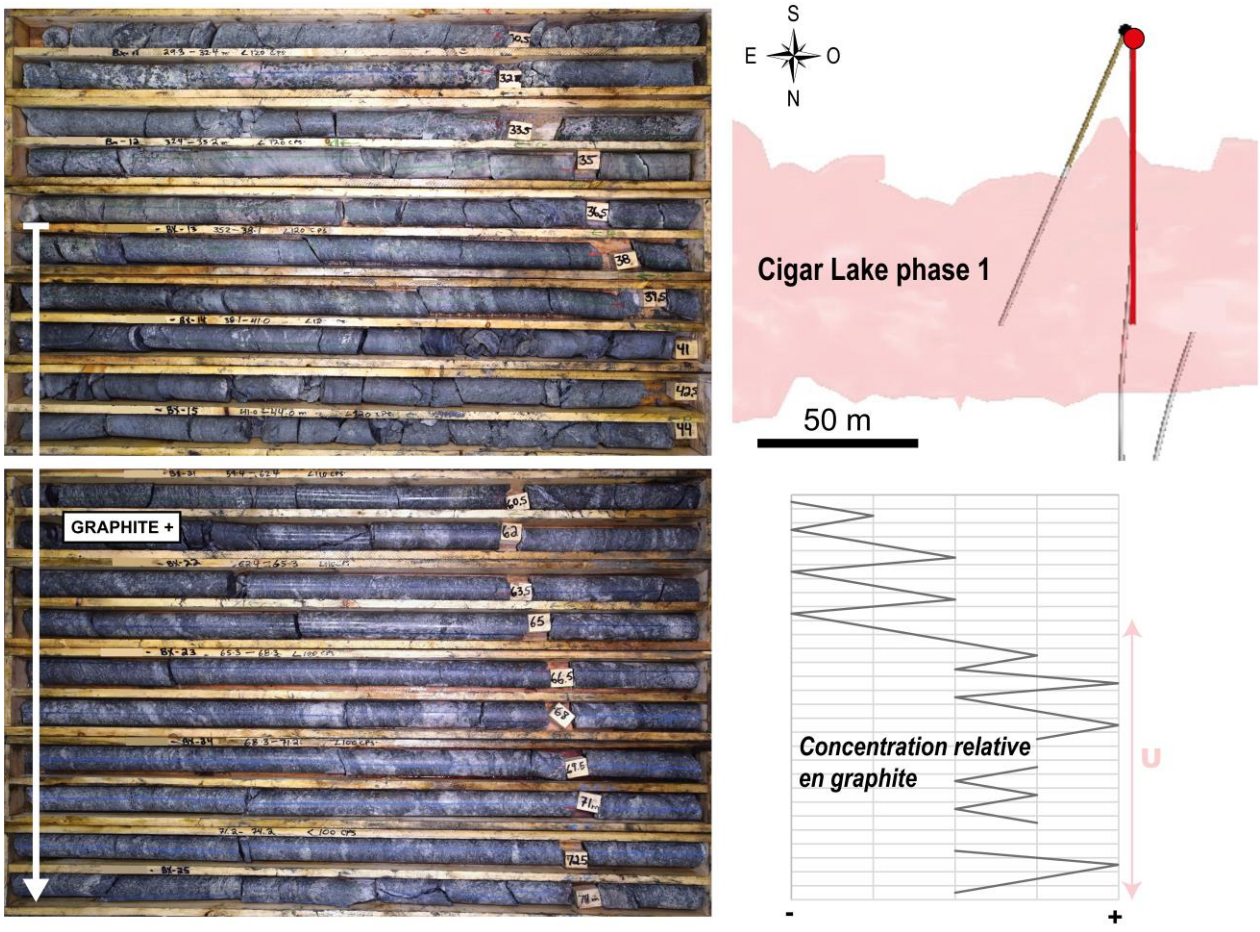


Figure 1.5 : Exemple de "conducteur graphiteux" dans le socle dans un forage horizontal (U-496) sous le gisement de Cigar Lake phase 1 (modifié d'après Cameco). La teneur relative en graphite a été évaluée à l'œil nu à partir des carottes de forage. La concentration est plus élevée sous le gisement (U).

La dénomination « conducteur graphiteux » est une terminologie géophysique simplificatrice, la nature réelle de ces objets et leur diversité est beaucoup plus complexe : ce sont des zones de cisaillement et des zones de faille avec toute la diversité que ces termes englobent (Figure 1.5). L'un des objectifs de ce travail est de comprendre l'architecture et la nature de ces zones de déformation paléoprotérozoïques afin d'appréhender leur diversité, d'effectuer des comparaisons entre les conducteurs et au sein même d'un conducteur unique.

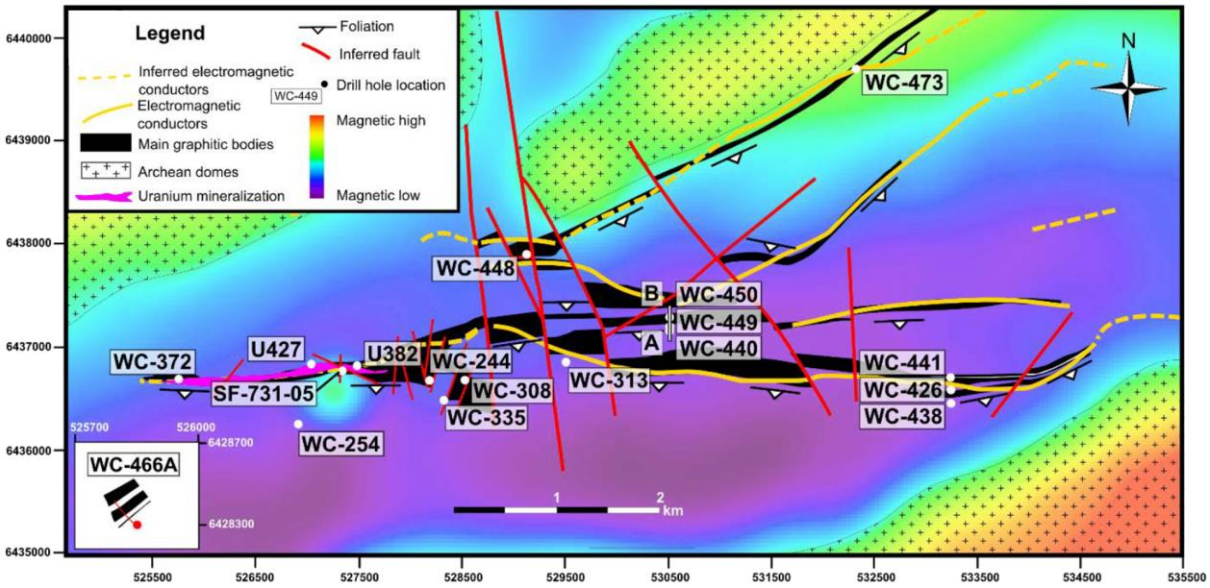


Figure 1.6 : Carte électromagnétique couplée à une carte géologique simplifiée des conducteurs de Cigar Lake, d'après Martz et al., 2017. L'uranium (en fuchsia) n'est localisé que sur un segment de l'ensemble des conducteurs présents dans la zone (traits orange).

Dans la partie est de la région Athabasca, au moins deux types de graphite ont été identifiés dans ces environnements (Martz et al., 2017, Figure 1.7) : le graphite métamorphique et le graphite hydrothermal. Une comparaison de la distribution de ces deux types de graphite, tant entre différents « conducteurs » qu'au sein d'une même zone de déformation, reste à réaliser. Par ailleurs, le rôle des différentes accumulations de graphite dans les processus post-bassin (par ex, réactivation des failles, source de carbone pour les fluides, etc.) reste à explorer.

Quelle est la réalité géologique derrière l'appellation « conducteur graphiteux » ?

Les blocs géologiques du socle à l'ouest (province de Rae, Figure 1.3) et à l'est (province de Hearne, Figure 1.3) sont différents et la nature des roches apparait également différente avec des lithologies essentiellement magmatiques et peu/pas de métasédiments dans la province de

Rae. Cependant, les « conducteurs graphiteux » sont tout aussi présents dans cette région de l'Athabasca (Figure 1.3), et le graphite paraît être étroitement lié à l'uranium.

Quelle est la nature du graphite dans les structures de la province de Hearne ? Est-il différent de celui de la province de Rae ?

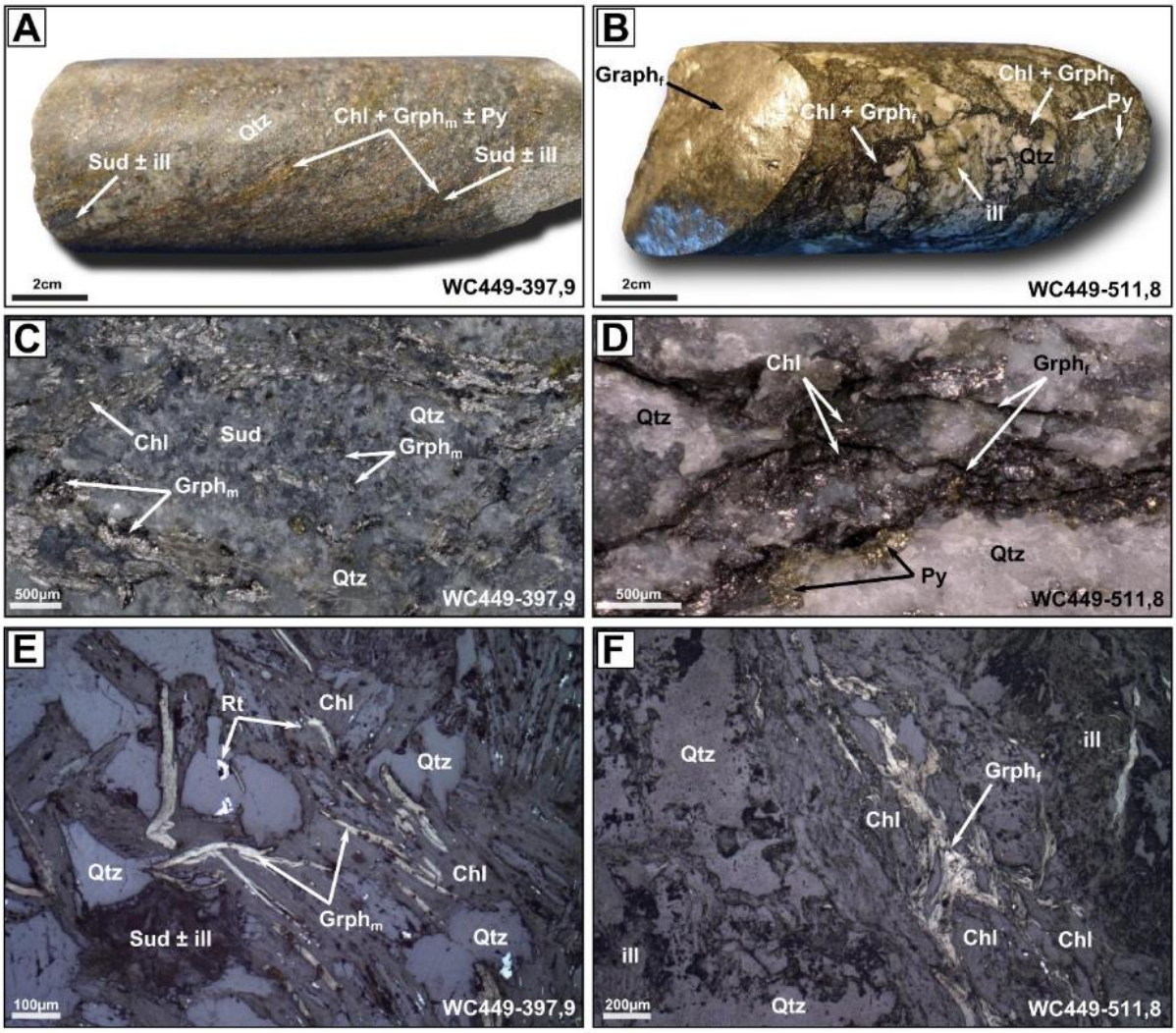


Figure 1.7 : Comparaison des deux types de graphite observés dans les zones de cisaillement à Cigar Lake, d'après Martz et al., 2017. À gauche : graphite métamorphique hautement cristallin (Grph$_m$), à droite : graphite faiblement cristallin déposé par les fluides (Grph$_f$). A) Photographie d'un gneiss métapélitique à cordiérite et graphite (Grph$_m$), faiblement déformé et altéré par de la sudoïte (sud) et de l'illite (ill) ; le graphite est associé à de la clinochlore (Chl) et de la pyrite (Py). B) Photographie d'une protocataclasite riche en graphite (Grph$_f$) ; la déformation cassante recoupe les structures ductiles, et les plans de cisaillement sont remplis de Grph$_f$. C) Porphyroblaste de cordiérite, remplacé par de la sudoïte et délimité par des couches à Graph$_m$ et clinochlore (Chl). D) Fracture à graphite hydrothermal (Grph$_f$), clinochlore (Chl) et pyrite automorphe (Py) recoupant du quartz métamorphique (Qtz). E) Photographie au microscope optique en lumière réfléchie montrant des minéraux de graphite (Grph$_m$) dans des niveaux métamorphiques. F)

Photographie au microscope optique en lumière réfléchie montrant des minéraux de graphite hydrothermal ($Grph_f$) microcristallin associé à de la chlorite (Chl) dans une fracture recoupant le quartz métamorphique.

En plus de leur présence dans les zones de cisaillement du socle, le carbone et le soufre se trouvent également dans divers minéraux entourant les minéralisations d'uranium, tant dans le socle que dans le bassin (Figure 1.8). Ces éléments, mobiles dans les systèmes de type discordance, ont également été identifiés en inclusions fluides aussi bien pour le soufre (par ex, Mercadier et al., 2010 ; Richard et al., 2011) que pour le carbone (par ex, Pascal et al., 2016b ; Martz et al., 2017). Bien que leur présence ait été fréquemment rapportée dans les environnements des gisements, le positionnement chronologique précis des différentes paragénèses minérales associées reste souvent mal défini. Les séquences paragénétiques rapportées dans les nombreux travaux (Figure 1.9) couvrent une large variété d'événements, tels que le métamorphisme, la diagenèse et plusieurs phases hydrothermales. Cependant, les liens entre ces études ne sont pas toujours évidents, et certaines comparaisons révèlent des contradictions. Malgré ces nombreuses années de recherche, la compréhension temporelle et paragénétique des mobilités du carbone et du soufre dans ces systèmes reste encore incomplète.

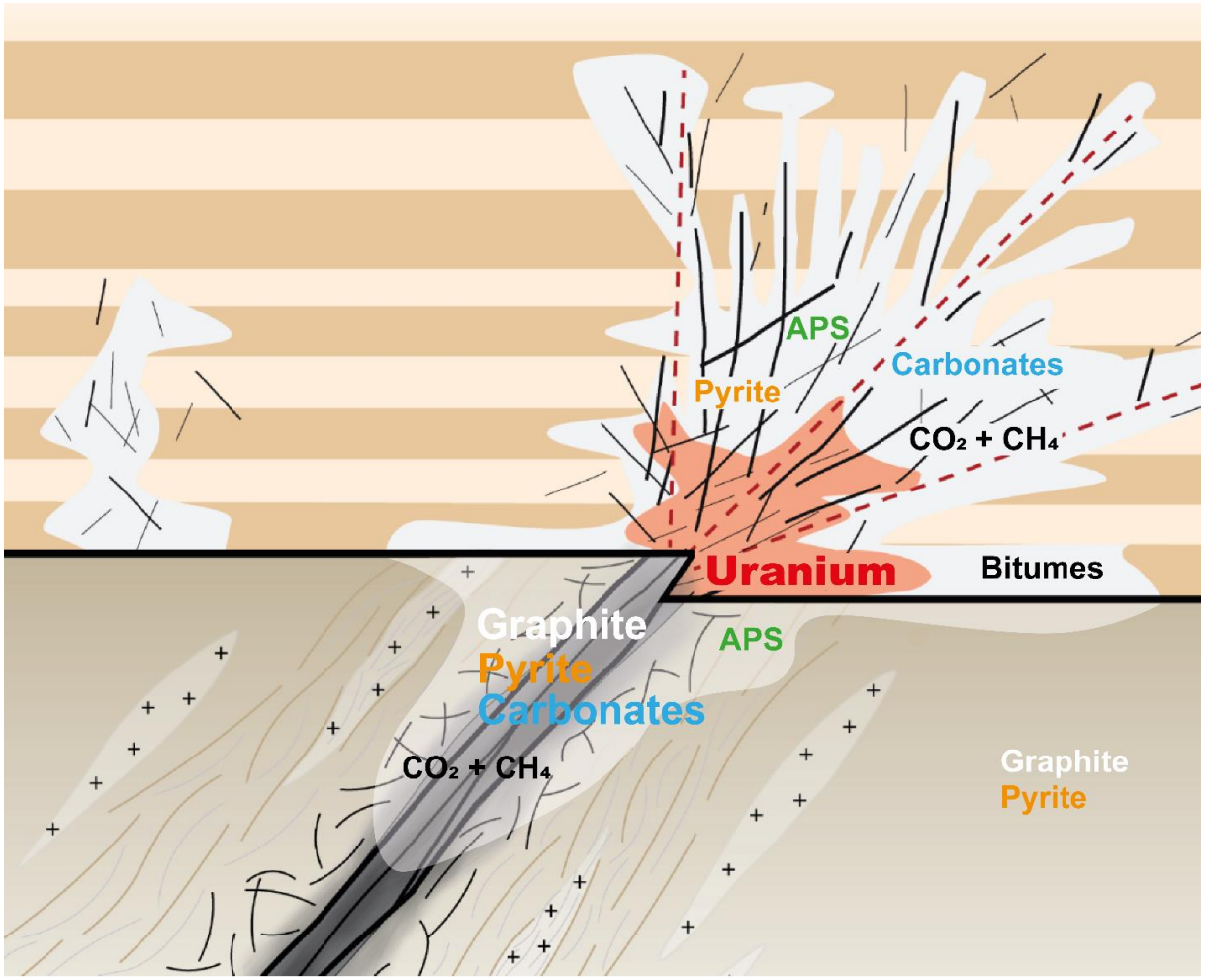


Figure 1.8 : Coupe géologique schématique d'un gisement d'uranium en Athabasca associé à une discordance (trait noir) entre un socle métamorphique et un bassin sédimentaire, et localisation des différents minéraux porteurs de carbone et de soufre dans les lithologies et structures de déformation.

Il y a-t-il des marqueurs parmi les porteurs de C et S permettant de discriminer les « conducteurs » minéralisés des conducteurs stériles ?

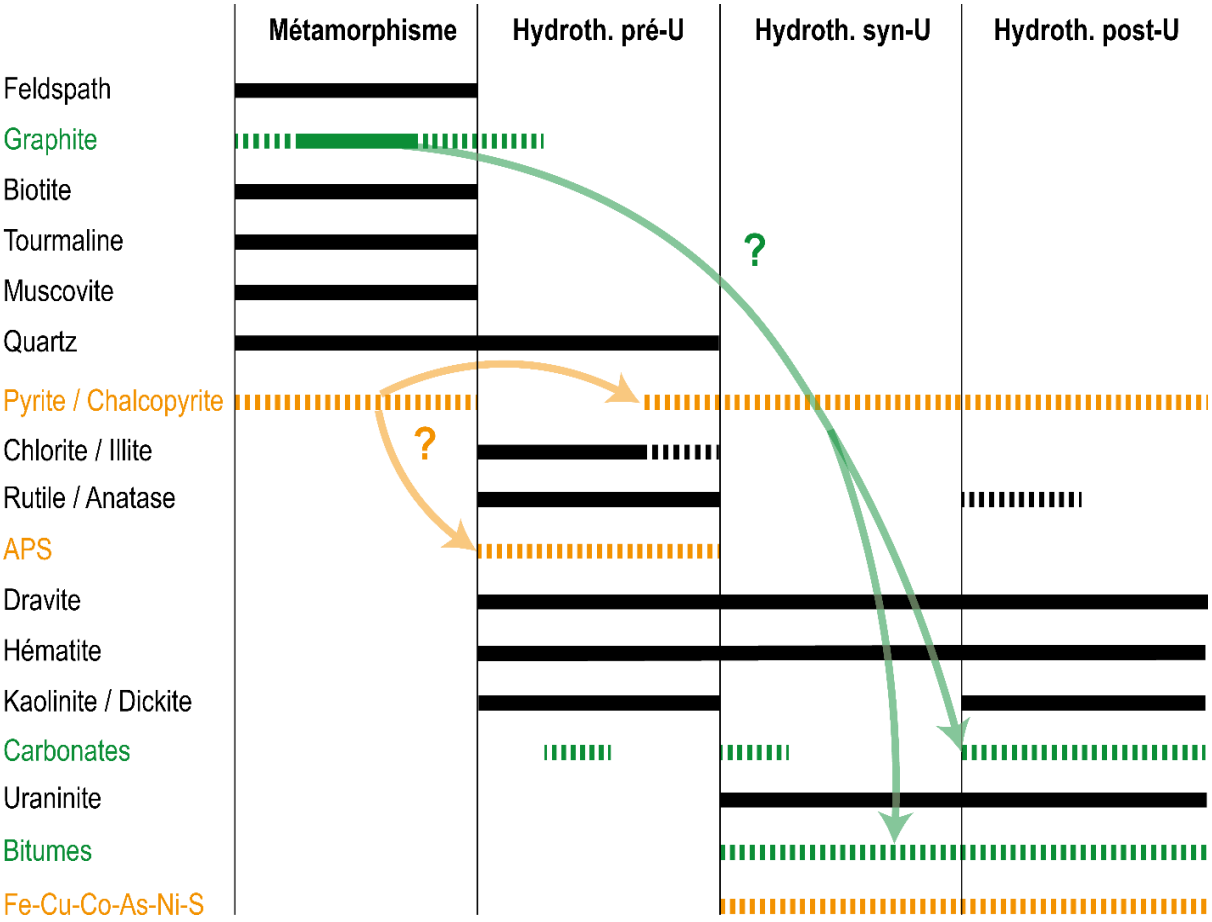


Figure 1.9 : Séquence paragénétique globale et simplifiée issue de la compilation des études de Alexandre et al. (2009), Alexandre et al. (2012), Cloutier et al. (2009), Cloutier et al. (2010), Fayek et Kyser (1997), Kaczowka (2017), Kotzer et Kyser (1995), Lorilleux et al. (2002), Ng et al. (2013), Ried et al. (2014), Sheahan et al. (2016). Les minéraux porteurs de carbone sont représentés en vert et ceux porteurs de soufre sont représentés en orange. Les pointillés marquent les incertitudes, les flèches indiquent les potentielles mobilités élémentaires.

Une analyse spécifique du traçage des sources de carbone et de soufre en contexte pré- et post-bassin est menée en s'appuyant sur des données isotopiques. Cette étape inclut une évaluation critique des hypothèses proposées par Song et al., 2022, qui suggèrent des processus de réduction impliquant du méthane profond en lien avec une activité sismique (Figure 1.10). Cependant, l'hypothèse de l'éventuelle contribution d'une source de carbone mantellique reste peu claire et mérite une investigation approfondie.

Quand et comment le carbone et le soufre deviennent mobiles dans les systèmes de type discordance en Athabasca ?

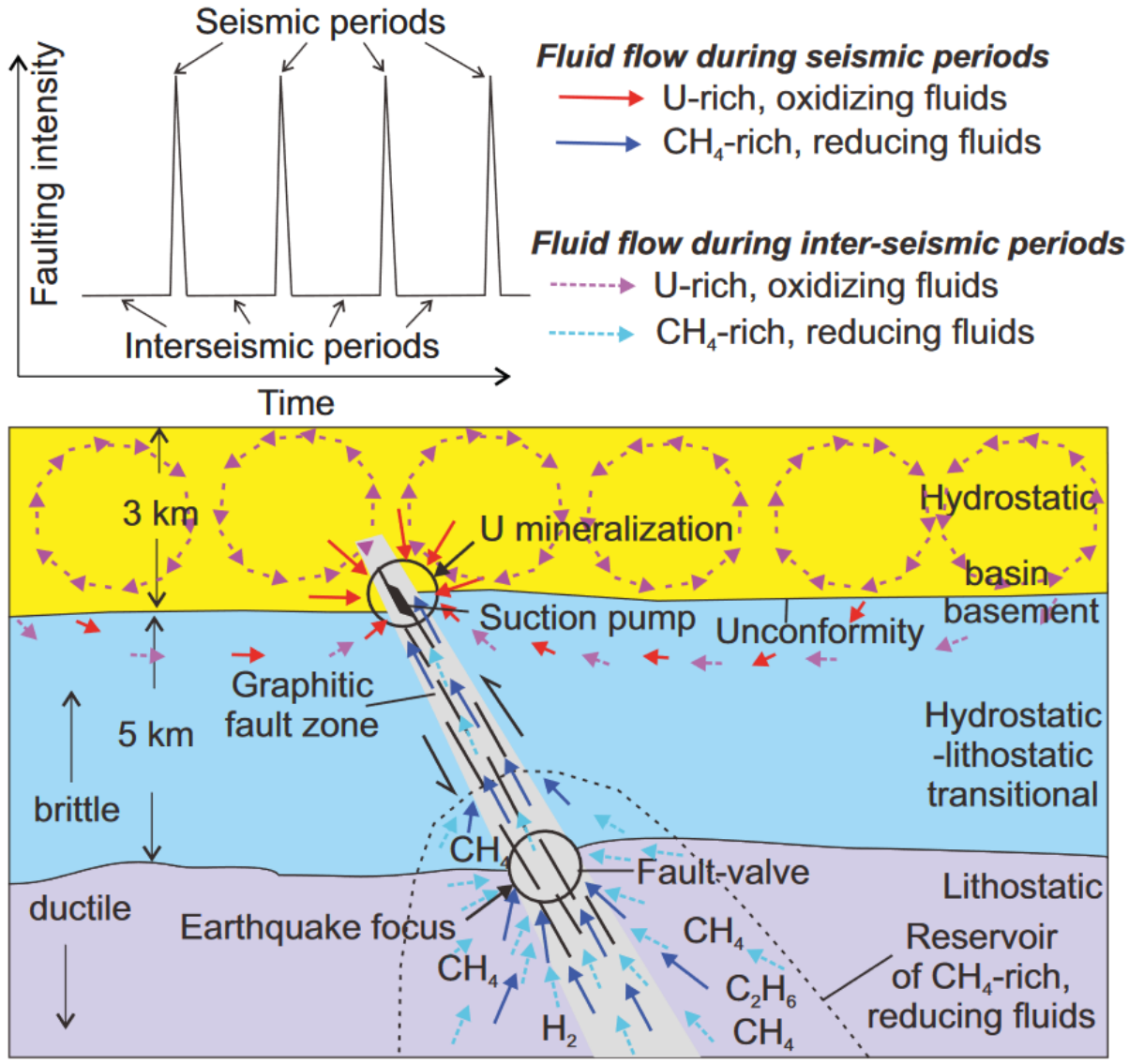


Figure 1.10 : Modèle schématique illustrant la relation génétique les zones de faille à graphite du socle et les minéralisations d'uranium à la discordance, d'après Song et al., 2022. Les fluides réducteurs du socle sont stockés en profondeurs et mis en contact avec les fluides dans le bassin lors des périodes d'activité sismique.

Malgré plus de 60 ans de travaux industriels et de recherche sur ces objets, des difficultés subsistent pour établir un calage temporel précis. Cela s'explique en grande partie par le fait que les études se sont principalement concentrées sur des gisements de très grande taille, où les processus étaient à la fois extrêmes et spatialement superposés. Ces zones ont en effet connu plusieurs événements hydrothermaux actifs depuis 1,7 milliard d'années, rendant l'interprétation des mobilités élémentaires particulièrement complexe.

La stratégie pour ce travail de thèse repose sur un angle d'approche différent : choisir les projets d'exploration de McClean South (MCS) et Waterfound (WF) comme sites d'étude, présentant des minéralisations de tailles variables sans pour autant répondre à la définition de gisements économiques (Figure 1.11). Ce choix repose sur la prise en compte de plusieurs paramètres :

- Ce sont deux zones d'étude d'importance majeure pour Orano Canada Inc., où de l'exploration a été menée historiquement et a repris depuis cinq ans.
- Deux missions de terrain menées sur deux années consécutives ont permis d'y recueillir des échantillons récemment forés, préservés des dégradations causées par les intempéries (pluie, neige), qui altèrent habituellement les sections argileuses des carottes de forage stockées sur les camps d'exploration.
- MCS et WF sont des projets d'exploration faiblement à moyennement minéralisés en uranium présentant une altération hydrothermale argileuse limitée. Les failles et fractures y sont bien conservées, avec des remplissages minéraux encore visibles (Figure 1.11), ce qui a permis de réaliser un travail pétrographique et de géologie structurale plus précis.
- Le carbone et le soufre apparaissent mobiles dans ces deux zones.
- MCS et WF se situent dans la Wollaston-Mudjatik Transition Zone (WMTZ), un domaine litho-structural où une grande proportion des gisements d'uranium du Bassin de l'Athabasca a été découverte.

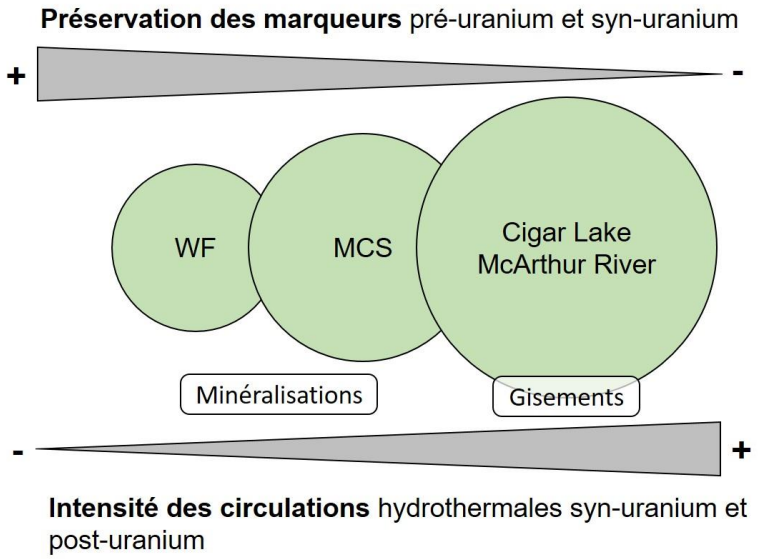


Figure 1.11 : Comparaison à premier ordre des projets d'exploration de Waterfound (WF), McClean South (MCS), Cigar Lake et McArthur River selon trois critères : la teneur en uranium (proportionnelle au diamètre du cercle vert), l'intensité des circulations hydrothermales liées à la mise en place de l'uranium ou postdatant celle-ci, et la préservation des marqueurs minéralogiques ou structuraux présents avant et/ou pendant la mise en place des minéralisations uranifères.

En somme, cette thèse s'articule autour de deux grandes étapes :

- Un travail approfondi sur deux petites zones permettant un calage précis et une comparaison détaillée des processus ;
- Un changement d'échelle visant à intégrer ces résultats aux données des grands gisements, afin d'identifier les points communs et différences entre ces systèmes. Ces distinctions pourraient ensuite servir à définir des vecteurs d'exploration, ouvrant la voie à de nouvelles stratégies de prospection.

Les observations réalisées à MCS et WF sont-elles généralisables à l'ensemble des conducteurs graphiteux minéralisés de l'Athabasca ? Aux gisements d'uranium « géants » comme Cigar Lake et McArthur River ?

Pour répondre à cette interrogation, un travail important a été dédié à la caractérisation des carottes de forage sur le terrain, dans le socle et pour les 50 premiers mètres de bassin, avec un total de **20** logs de forage à MCS, **22** logs à WF, **21** logs à Cigar Lake et **14** logs à McArthur River. Cela représente un total de plus de **6** km de carottes décrites lors de deux missions de terrain les étés de 2022 et 2023. Un total de **380** échantillons récupérés suite aux missions ou déjà stockés au laboratoire GeoRessources à Nancy afin de pousser les descriptions macroscopiques et d'y réaliser les différentes lames minces et analyses géochimiques. Plus de **200** lames minces ont été passées en revue par des observations au microscope optique et/ou au microscope électronique à balayage (MEB), les échantillons présentés dans les chapitres de ce manuscrit constituant des exemples pertinents parmi beaucoup d'autres observés.

Une exploration des implications du carbone et du soufre dans la précipitation de l'uranium dans ces systèmes est proposée à partir des observations de terrain et des analyses de laboratoire. Ce point s'appuie notamment sur les travaux expérimentaux de Dargent (2014) qui a mis en évidence plusieurs facteurs favorisant la précipitation d'uranium comme l'implication de gaz carbonés, ainsi que sur le travail de De Decker (2019) évoquant le rôle de la pyrite comme moteur de la précipitation. Ce travail de thèse vise à faire avancer la compréhension mécanistique de ces processus. Dans ce contexte, l'objectif de ce travail est de proposer une caractérisation détaillée des typologies et des propriétés physicochimiques des phases minérales porteuses de C et S à la fois dans le socle et le bassin, ainsi que d'étudier les lithologies et structures de déformation associées dans les « petits » projets d'exploration que sont MCS et WF, et d'y mettre

en avant des paramètres généraux transposables / applicables sur les plus gros gisements de l'est du bassin, voire généralisables à l'ensemble de la région.

Plan du manuscrit

Le manuscrit est divisé en trois grandes parties :

La Partie A se concentre sur l'étude des processus géologiques pré-Athabasca dans le socle sous la discordance à MCS et WF. Cette étude dresse un bilan pétrographique, structural et isotopique des porteurs de carbone et de soufre présents avant le dépôt des séries sédimentaires du Groupe Athabasca et des altérations diagénétiques et hydrothermales qui leur sont associées. Les objets définis comme pré-Athabasca ne sont rencontrés que dans le socle sous la discordance, ils sont liés au métamorphisme et déformations à hautes pressions et hautes températures, conditions n'ayant pu être atteintes qu'avant le dépôt des séries sédimentaires du Groupe Athabasca. Les zones de faille dans le socle pouvant atteindre plusieurs mètres d'épaisseur, qui contiennent les porteurs de carbone et de soufre identifiés comme pré-Athabasca dans cette *Partie A*, témoignent de déformations liées à des déplacements verticaux maximum de l'ordre de plusieurs centaines de mètres à plusieurs kilomètres (Shipton et al., 2006). Le bassin situé au-dessus de la discordance présente une topographie relativement plane à l'échelle des projets d'exploration et les plus grands déplacements enregistrés sont de l'ordre de quelques mètres à quelques dizaines de mètres. Ces déplacements ne peuvent être associés aux larges zones de mylonites et cataclasites observées dans le socle.

La Partie B étudie, de la même manière, les porteurs de carbone et de soufre associés aux évènements hydrothermaux post-Athabasca en lien avec la formation des gisements, à la fois dans le socle et dans le bassin. Les objets qualifiés de post-Athabasca dans cette section sont définis sur la base de critères pétrographiques et structuraux :
i) ils sont localisés dans le bassin ;
ii) des paragénèses caractéristiques sont associées à des processus hydrothermaux postérieurs au dépôt du bassin, comme la sudoïte (chlorite magnésienne) qui précipite à partir de saumures (Cloutier et al., 2011 ; Percival et Kodoma, 1989), des conditions n'ayant pu être atteintes qu'après la mise en place du bassin de l'Athabasca (par ex, Ng et al., 2013) ;
iii) l'illite se forme exclusivement après le dépôt du bassin (Kotzer et Kyser, 1995) ;

iv) les déformations post-Athabasca aboutissent à la formation de roches de failles argileuses, généralement composées d'illite et/ou de sudoïte, non cohésives en raison de leur développement à des températures insuffisantes pour assurer une recristallisation du quartz (i.e., < 250°C), conditions typiques des évènements post-Athabasca.
Les lithologies du bassin étant plus vulnérables aux altérations par les fluides et aux déformations dues au carottage, l'exploitation des données dans le bassin par rapport au socle est de fait plus compliquée. Cette différence explique en partie le léger déséquilibre dans la quantité de données disponibles entre la Partie A et la Partie B.

La partie C met en relation les observations et interprétations des deux premières parties afin de discuter d'un modèle métallogénique pour l'uranium à l'échelle de la WMTZ, en comparant et appliquant les résultats obtenus pour MCS et WF aux gisements de Cigar Lake et McArthur River. Cette partie explore également la province magmatique de Rae située géographiquement à l'ouest du Bassin de l'Athabasca, et propose une interprétation quant à l'origine du graphite dans cette zone.

Contexte géologique

2 Contexte géologique général

Le Bassin de l'Athabasca et les gisements d'uranium associés se situent dans le bouclier canadien (craton de la Laurentia, Figure 2.1). Ce craton peut être subdivisé en trois principaux blocs, avec d'ouest en est : le craton Slave, le craton Churchill-Wyoming et le craton Supérieur. A l'ouest, la collision entre les cratons Slave et Churchill-Wyoming lors de l'orogénèse de Taltson a donné naissance à la province magmatique de Taltson-Thelon entre 2,0 et 1,9 Ga (Card et al., 2014 ; Hanmer et al., 1992 ; Hoffman, 1988 ; McNicoll et al., 2000), tandis que la collision entre les cratons Supérieur et Churchill-Wyoming à l'est a formé l'orogène trans-hudsonien (THO) entre 1,84 et 1,78 Ga (Annesley et al., 2005 ; Hoffman, 1988). Le craton de Churchill-Wyoming se divise en deux provinces : la province de Rae au nord-ouest et la province de Hearne au sud-est, sur lesquelles repose en discordance le bassin sédimentaire protérozoïque de l'Athabasca.

2.1 Evolution géodynamique de la province de Rae (Orogène Thelon/ Taltson)

La province de Rae au nord-ouest du Bouclier canadien est principalement composée d'une croûte archéenne, dominée par des roches magmatiques de composition granitique à dioritique (Bickford et al., 1994). Son évolution géodynamique est attribuée à la collision entre le craton de Rae et ses blocs voisins tels que le bloc tectonique Buffalo Head et le craton Slave lors des orogénèses de Taltson et Thelon entre 2,0 et 1,9 Ga (Card et al., 2014)

La zone magmatique de Taltson, qui couvre plus de 18 000 km² dans les Territoires du Nord-Ouest (Figure 2.1), est principalement composée de granitoïdes archéens et paléoprotérozoïques. Ces intrusions magmatiques se répartissent en séries distinctes datées entre 1,99 et 1,94 Ga, et constituent un arc continental marqué par un épaississement crustal lié à la collision (Thériault, 1992). Contrairement à l'hypothèse de magmatisme en marge de plaque, les isotopes Nd-Pb-O des granitoïdes de Taltson indiquent un contexte tectonique compressif où l'épaississement crustal est intracontinental, proche de celui des chaînes de montagnes actuelles d'Asie centrale (De et al., 2000). L'orogénèse de Thelon est associée à des structures de cisaillement majeures, telles que la zone de cisaillement de Great Slave Lake, témoignant de l'évolution cinématique et thermique de la province au Paléoprotérozoïque entre 2.0 et 1,9 Ga (Hanmer et al., 1992).

Le socle sous le Bassin de l'Athabasca est recoupé par des zones de cisaillements liées aux orogénèses de Taltson et Thelon. Les orthogneiss, incluant des gneiss tonalitiques et granitiques, constituent le socle primaire (Crocker et al., 1993). Des intervalles supracrustaux à paragneiss sont également décrits (Crocker et al., 1993).

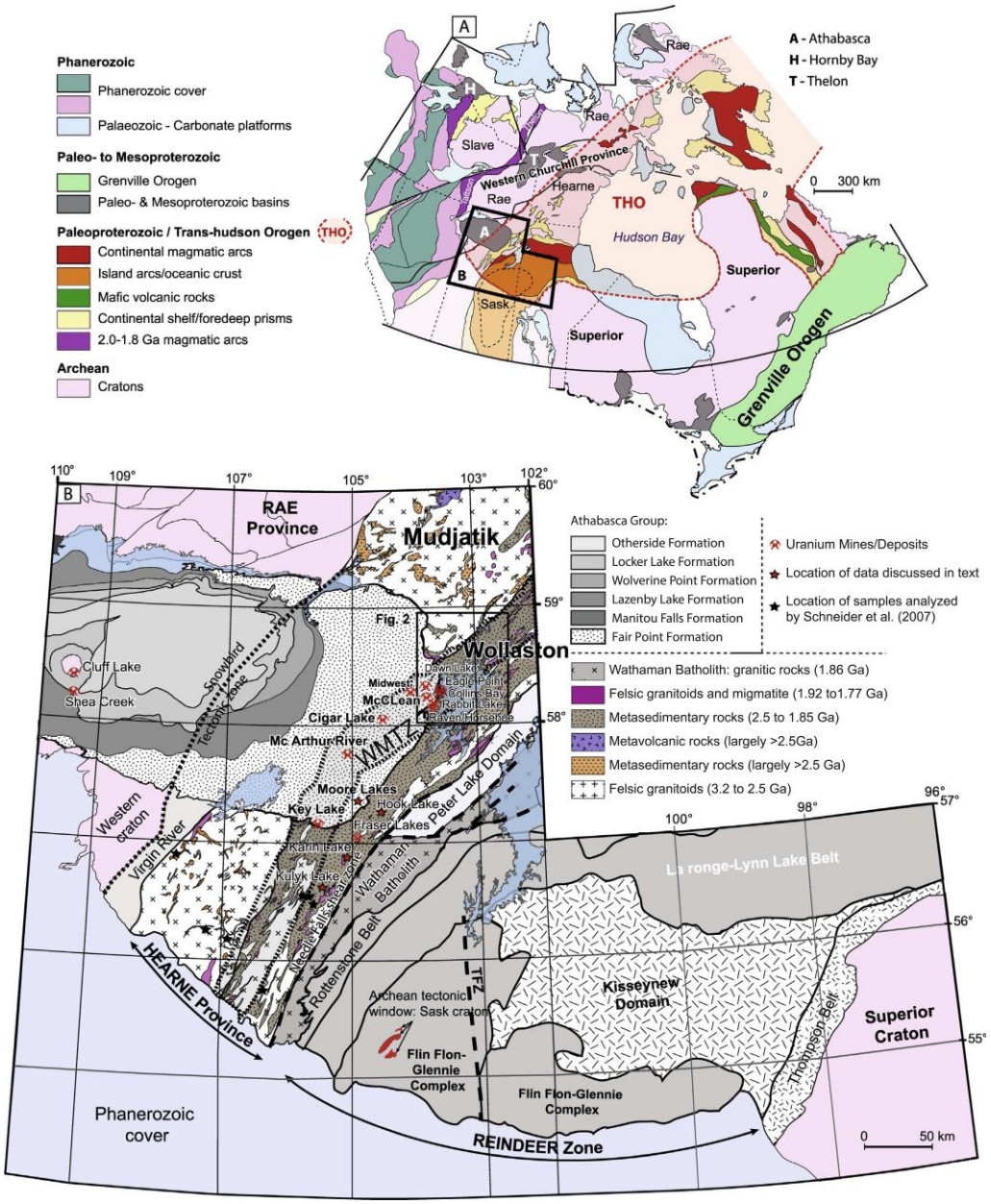


Figure 2.1 : Carte géologique du Bouclier Canadien montrant la localisation du bassin de l'Athabasca, d'après Jeanneret et al., 2017. A : Ensemble du Bouclier Canadien avec position de l'orogène Trans-Hudson (THO). B : Position du Bassin de l'Athabasca par rapport aux provinces de Rae, Hearne et à la Reindeer Zone.

2.2 Evolution géodynamique de la province de Hearne (THO)

L'ouverture de l'océan Manikewan, avec la formation d'une marge passive vers 2,1 Ga au sein de la province de Hearne (Ansdell, 2005), a favorisé le dépôt de séries sédimentaires du groupe Wollaston, riches en matière organique, entre 2,1 et 1,92 Ga (Tran et al., 2003 ; Figure 2.2). La fermeture de cet océan, initiée à partir de 1,92 Ga et se prolongeant jusqu'à environ 1,85 Ga (Ansdell, 2005), a conduit au dépôt de nouvelles séries sédimentaires au sein du groupe Wollaston (Figure 2.2), incluant notamment des formations carbonatées (Tran et al., 2003). La fermeture de l'océan Manikewan est marquée par une phase de collision continentale (orogénèse transhudsonienne) conduisant à un épaississement crustal et au métamorphisme des sédiments du Wollaston entre 1,82 et 1,78 Ga (Jeanneret et al., 2016).

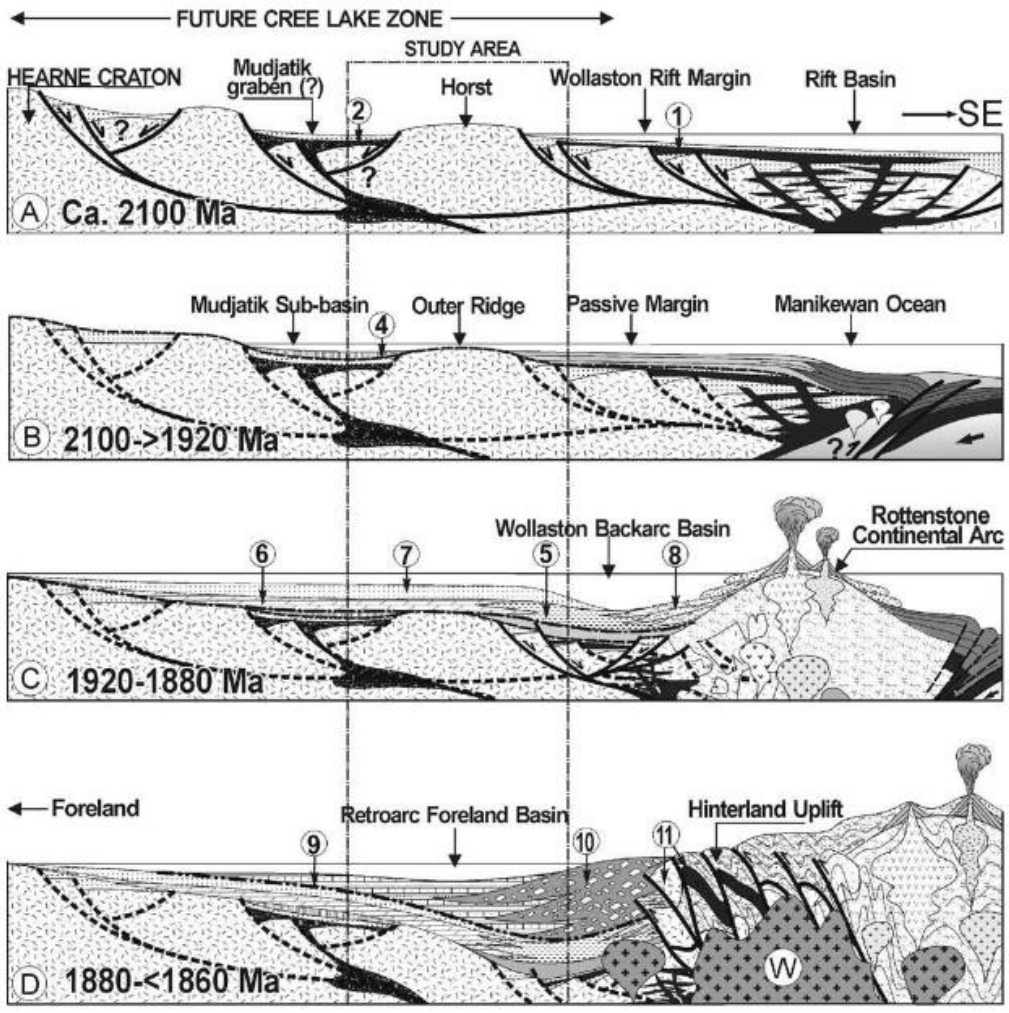


Figure 2.2 : Modèle schématique illustrant la géodynamique du Groupe de Wollaston en relation avec l'évolution tectonique paléoprotérozoïque en marge du craton de Hearne (d'après Tran et al., 2003).

La province de Hearne résulte de la collision entre le domaine Mudjatik, principalement constitué de gneiss felsiques migmatitisés archéens (Lewry and Sibbald, 1977, 1980), et le domaine Wollaston composé de gneiss psammitiques, psammopélitiques et pélitiques (Annesley et al., 2005 ; Tran et al., 2003). La transition lithologique et structurale entre ces deux domaines est appelée la zone de transition Wollaston-Mudjatik (WMTZ), elle est épaisse de plusieurs kilomètres et contient la majorité des gisements d'uranium de type discordance dans l'est de l'Athabasca.

Les deux domaines ont subi une intense déformation polyphasée et un métamorphisme de haut degré au cours de la THO, conduisant à la formation de structures verticales d'échelle crustale s'étendant sur plusieurs centaines de kilomètres (Card, 2021 ; Ledru et al., 2023). Jeanneret et al. (2016) ont mis en évidence deux événements tectono-métamorphiques distincts au cours de la THO, expliquant la foliation marquée NE-SO dans la WMTZ : (i) l'événement D1, qui correspond au pic de métamorphisme et au développement d'une foliation subhorizontale, orientée N90°–N100° lors de la phase primaire de la collision, et (ii) l'événement D2, un régime tectonique transpressif senestre associé au dernier stade de collision de la THO. Ce dernier événement, daté entre 1,82 et 1,805 Ga, se marque par le développement d'une foliation NE-SO marquée par l'orientation de la biotite, du graphite et de la sillimanite (Annesley et al., 2005). Un troisième évènement de déformation ductile (D3) est associé à un raccourcissement NE-SO entre 1,805 – 1,775 Ga (Annesley et al., 2005 ; Harper et al., 2005). Ces déformations ductiles ont été suivies de plusieurs phases post-collisionnelles au cours desquelles les failles ductiles ont été réactivées d'abord sous forme de failles ductile-fragiles, puis de failles fragiles avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca, jusqu'à 1,72 Ga (Annesley et al., 2005). Postérieurement au dépôt du bassin, la réactivation de certaines de ces failles se marque par un décalage de la discordance et par une extension de ces structures dans les séries sédimentaires du Bassin de l'Athabasca.

Bien que les structures orientées NE-SO soient dominantes au sein de la WMTZ (Figure 2.3), plusieurs gisements et minéralisations d'uranium se trouvent le long de segments structuraux orientés E-O. Parmi eux se trouvent le gisement de Cigar Lake et les minéralisations de MCS et WF. L'orientation de ces corridors mylonitiques, présentant également des déformations en domaines ductile-fragile et fragile (Bruneton, 1987), est attribuée à un événement tectonique survenu lors du refroidissement et de la réactivation des zones de cisaillement primaires du socle (Annesley et al., 2005).

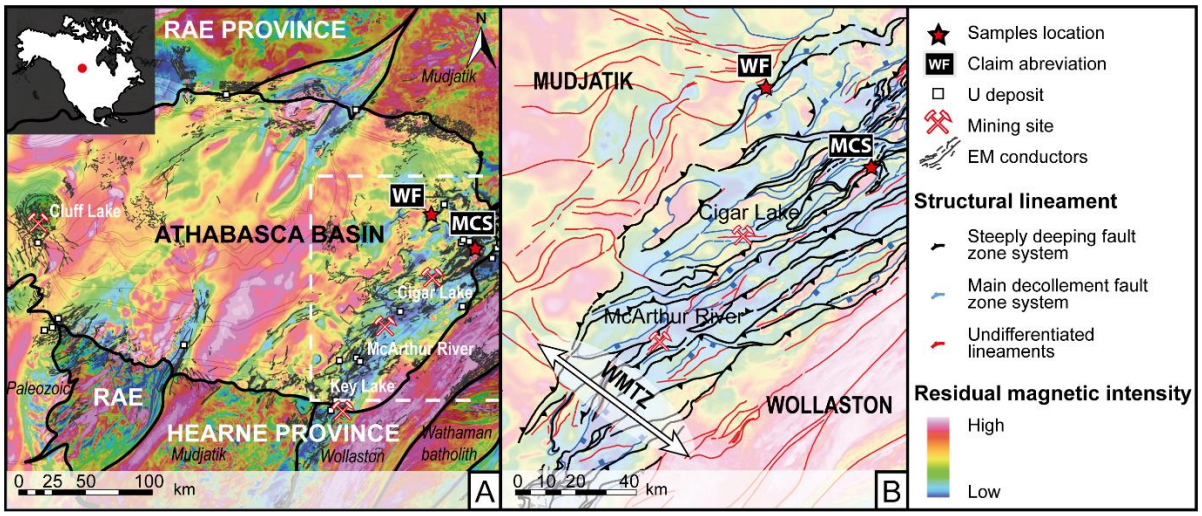


Figure 2.3 : A : Carte géophysique de la dérivée verticale première de l'intensité magnétique totale du socle cristallin dans la région du Bassin de l'Athabasca (Saskatchewan, Canada). Le socle est divisé en deux grandes provinces (d'est en ouest : la province de Hearne comprenant les domaines de Wollaston et de Mudjatik, et la province de Rae). Les lignes noires fines correspondent à des conducteurs électromagnétiques (EM) interprétés par le Saskatchewan Geological Survey (SGS) à partir de relevés aéroportés EM. Les zones de Waterfound (WF) et de McClean South (MCS) sont représentées par des étoiles rouges. Le rectangle en pointillés blancs correspond à l'étendue de la figure B. B : Zoom sur la zone de transition Wollaston-Mudjatik (WMTZ, modifiée d'après Ledru et al., 2023).

2.3 Etat de l'art sur les « conducteurs graphiteux »

Un conducteur graphiteux désigne une structure géologique riche en graphite, fréquemment associée à des roches métasédimentaires telles que les gneiss pélitiques du domaine Wollaston, ou à des zones de cisaillement enrichies en graphite et autres minéraux conducteurs comme les sulfures (cf. *Chapitre 1* et *Chapitre 2*). Ces conducteurs se distinguent par leur faible résistivité et leur haute conductivité électrique, des propriétés cruciales pour la détection électromagnétique. Ce sont sur ces caractéristiques que l'exploration de l'uranium est basée depuis des décennies, la plupart des gisements d'uranium de type discordance du Bassin de l'Athabasca étant spatialement, associés à des « conducteurs graphiteux » dans le socle. Si c'est au Paléoprotérozoïque qu'ont eu lieu les plus importants mouvements le long de ces zones de cisaillement constituant les « conducteurs graphiteux », les déformations se sont poursuivies depuis le Mésoprotérozoïque jusqu'à aujourd'hui dans des conditions fragiles et ont influé sur l'évolution du Bassin de l'Athabasca et sur les processus d'altération hydrothermale et de

minéralisation uranifère qui s'y sont déroulés (par exemple, Györfi et al., 2007 ; Jefferson et al., 2007 ; Tourigny et al., 2007).

Le graphite joue un rôle de lubrifiant au sein des zones de faille, réduisant grandement le coefficient de friction (i.e., quantifie la résistance au glissement entre deux surfaces en contact et est défini par le rapport entre une force de friction s'opposant au mouvement d'une et une force normale, il varie entre 0 et 1). Pour une zone de faille « classique » sans graphite et constituée principalement de quartz et de feldspath, les coefficients de friction varient généralement entre 0,6 et 0,85 (Goldsby and Tullis, 2002 ; Kato and Hirono, 2016). Le graphite dans les zones de faille permet de réduire la friction jusqu'à des coefficients aussi bas que 0,1 – 0,2 (Kirilova et al., 2018 ; Morrow et al., 2000). Cette propriété du graphite est principalement attribuée à sa structure cristalline en couche, où « feuillets » sont liés par des forces de Van der Waals et peuvent facilement glisser les uns sur les autres (Oohashi et al., 2013). Ainsi, les failles préalablement enrichies en graphite sont plus susceptibles d'être réactivées au cours de l'histoire géodynamique d'une région (Cao and Neubauer, 2019 ; Martz et al., 2017 ; Oohashi et al., 2012). La présence de graphite dans les failles peut être liée aux processus de graphitisation de matériaux carbonés amorphes sous haute pression et température, ou issue de précipitation hydrothermale. Ces aspects seront discutés dans le *Chapitre 1*.

Les études menées sur le système C-H-O (French, 1966) montrent que l'eau et le graphite réagissent sous différentes températures et pressions pour produire du dioxyde de carbone, du monoxyde de carbone, du méthane et de l'hydrogène, les proportions dépendant de la fugacité de l'oxygène. Pour des températures < 400 °C et dans des conditions réductrices, le méthane est le principal produit de réaction, tandis que dans des conditions plus oxydantes l'eau et le dioxyde de carbone deviennent majoritaires (French, 1966). Par ailleurs, la réactivité du graphite en contact prolongé avec différents fluides a été étudiée :

- Ziegenbein and Johannes, (1980) ont montré que le graphite réagissait très lentement avec les fluides composés de CO_2 et CH_4 à 700°C sans atteindre l'équilibre chimique ;
- Moissette and Dubessy, (1992) ont étudié la réactivité du graphite en conditions hydrothermales à 250°C et 500 bars en présence de solutions d'acide sulfurique et ont montré que des réactions de dissolution mineures intervenaient, sans non plus atteindre l'équilibre chimique. Cependant, les résultats expérimentaux ont permis de proposer une réaction : $C_{Gr} + 2H^+ + 2HSO_4^- \rightarrow CO_2 + 2SO_2 + 2H_2O$.

La connaissance de la réactivité du graphite avec les fluides géologiques est essentielle puisque le graphite peut contrôler partiellement la variance du système C-O-H-N-S et donc l'état redox du fluide (Moissette et Dubessy, 1992). Du graphite altéré est régulièrement observé sous les gisements d'uranium de type discordance du Bassin de l'Athabasca, avec une altération apparaissant comme synchrone des évènements minéralisateurs à uranium (Hoeve and Quirt, 1987 ; Hoeve and Sibbald, 1978 ; Landais et al., 1993 ; Wang et al., 1989). Les températures liées à ces altérations sont présentées en *sous-partie 3.2* de ce chapitre. La présence d'environnements géologiques riches en graphite, comme les "conducteurs graphiteux" situés sous le bassin sédimentaire de l'Athabasca, pourrait avoir contribué de manière significative à la formation des gisements d'uranium (cf. *sous-partie 2.5.4*).

2.4 Bassin sédimentaire de l'Athabasca

Le Bassin de l'Athabasca est un bassin sédimentaire intracontinental qui occupe aujourd'hui une superficie d'environ 100 000 km² (Jefferson et al., 2007) avec une épaisseur maximale de 1500 m (Ramaekers et al., 2007 ; Figure 2.4). Ce bassin s'est déposé durant le Protérozoïque supérieur en lien avec l'exhumation et l'érosion de l'orogène transhudsonien (Alexandre and Kyser, 2006 ; Kyser et al., 2000). Le début de la sédimentation du bassin est estimé à ca. 1710 Ma (Cumming et Krstic, 1992 ; Kyser et al., 2000) à l'est. Les derniers évènements pré-bassin ont été enregistrés par des datations U-Th-Pb sur des grains de monazite des paragneiss migmatitiques en bordure est et donnent un âge à 1718 ± 12 Ma (Jeanneret et al., 2017), et les datations $^{207}Pb/^{206}Pb$ sur grains de rutile des gneiss prélevé dans le gisement de McArthur River donnent un âge à 1713 ± 10 Ma (Adlakha and Hattori, 2022). L'âge à 1541 ± 13 Ma obtenu par la datation Re-Os de matière organique déposée dans la Douglas Formation (Creaser and Stasiuk, 2007), considérée comme parmi les dernières formations sédimentaires dans le bassin, représente une limite supérieure pour le dépôt de la séquence 3 et de la base de la séquence 4 (cf. ci-dessous).

- **La séquence 1** comprend les roches silicoclastiques constituant la Formation de Fair Point. Ces roches ont été conservées dans la partie occidentale du Bassin de l'Athabasca (Figure 2.4 et Figure 2.5), érodées et en partie recouvertes par les dépôts de la deuxième séquence.

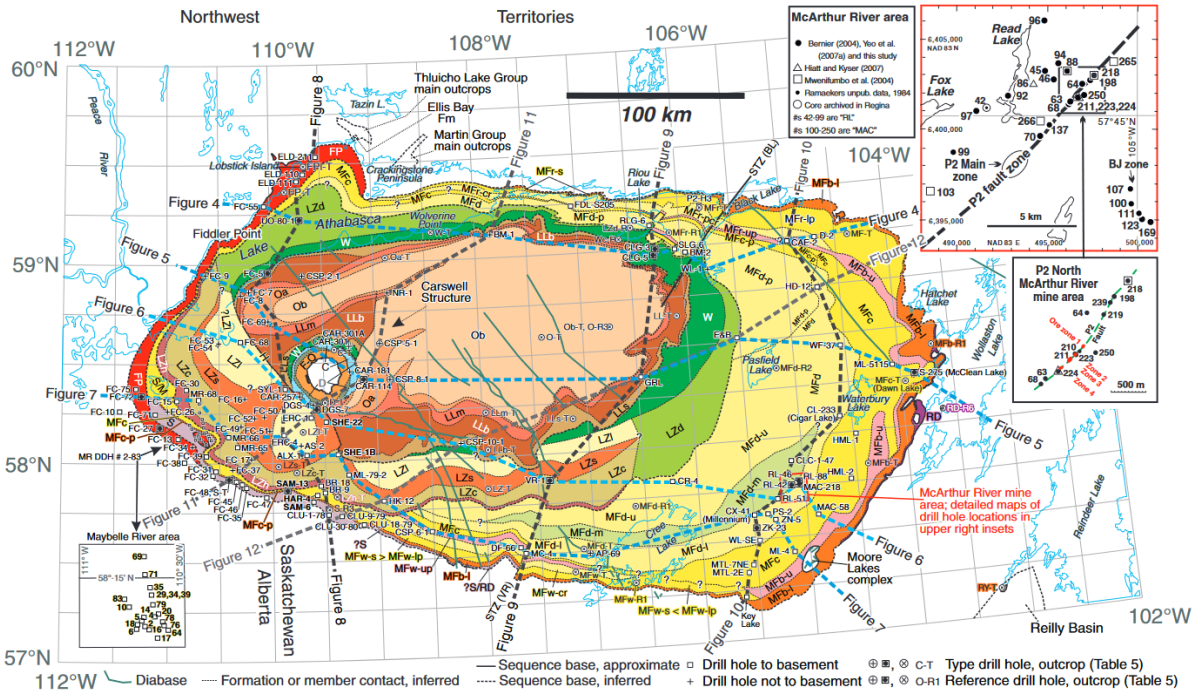


Figure 2.4 : Carte géologique des formations du Groupe Athabasca d'après Ramaekers et al., 2007. Les contacts entre formations sont définis par les données granulométriques provenant des affleurements et des carottes de forage les plus proches. Les abréviations des unités stratigraphiques sont expliquées dans le tableau 1 de Ramaekers et al., 2007. Les lignes pointillées épaisses modifiées et mises en évidence pour les transects est-ouest (bleu) et nord-sud (noir) indiquent les emplacements des Figure 2.5 et Figure 2.6.

- **La séquence 2** regroupe les formations silicoclastiques de Reilly, de Read, de Smart et de Manitou Falls. La phase initiale de sédimentation a été fortement influencée par la paléotopographie, notamment la présence de vallées dans les secteurs de McClean Lake (Long, 2007) au nord-est et de Key Lake (Harvey and Bethune, 2000) au sud-est du bassin (Figure 1.3). Les débris de cette première sédimentation se sont accumulés sous forme d'un immense cône alluvial, où les unités constitutives présentent une épaisseur et un grain diminuant vers l'ouest. Le cône de Kosi s'étendant sur 150 km sur le versant sud de l'Himalaya constitue le plus vaste analogue actuel (Ramaekers et al., 2007). La formation sédimentaire de Manitou Falls, la plus épaisse à l'est du Bassin de l'Athabasca, était de nature proximale dans le sous-bassin de Cree (Figure 2.4, Figure 2.5 et Figure 2.6). Cette zone était marquée par des cônes alluviaux, notamment au nord, à l'est et au sud. La sédimentation s'est ensuite étendue vers l'ouest recouvrant le sous-bassin de Jackfish (Hiatt and Kyser, 2007 ; Ramaekers et al., 2007 ; Yeo et al., 2007 ; Figure 2.4 et Figure 2.5). La formation se compose principalement de grès et de conglomérats subhorizontaux de nature arénitique non

métamorphisés (Hiatt et Kyser, 2007). Les conglomérats se limitent aux premières séries sédimentaires du sous-bassin de Cree et tendent à disparaitre à l'ouest des zones de cisaillement de Virgin River et de Black Lake (Ramaekers et al., 2007).

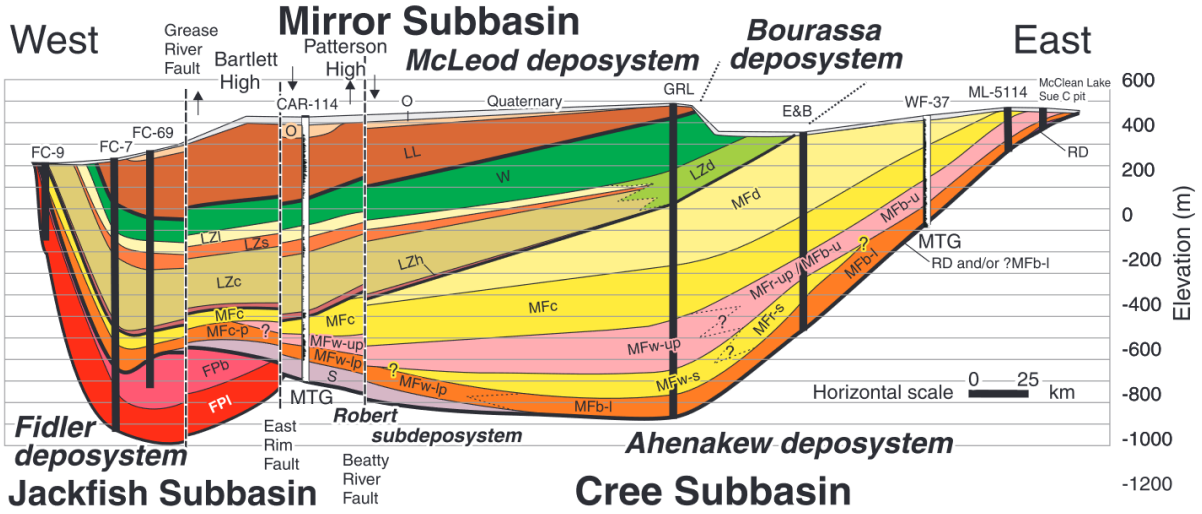


Figure 2.5 : Coupe ouest-est à travers le Bassin de l'Athabasca d'après Ramaekers et al., 2007. La ligne de coupe correspond au tracé en pointillés bleu de la Figure 2.4 et les emplacements des forages correspondent également à la Figure 2.4. Les données lithologiques issues des forages carottés sont représentées par des barres noires.

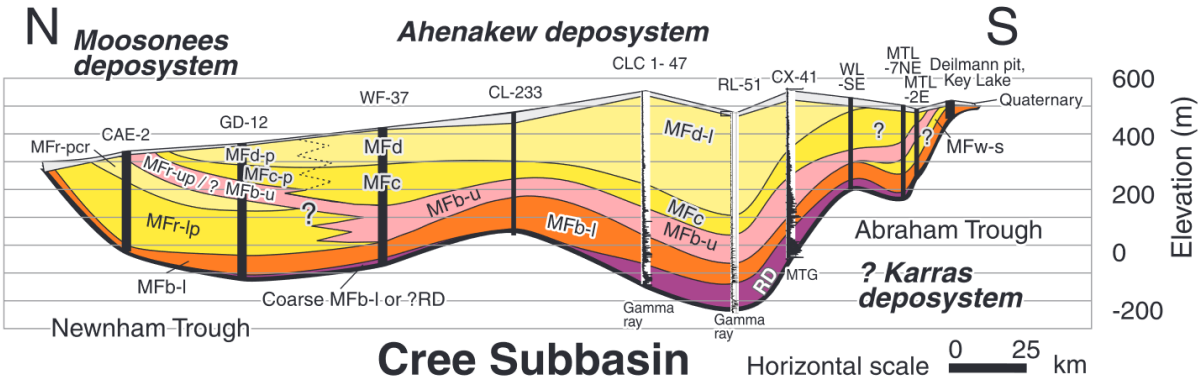


Figure 2.6 : Coupe nord-sud à travers le Bassin de l'Athabasca d'après Ramaekers et al., 2007. La ligne de coupe correspond au tracé en pointillés noir de la Figure 2.4 et les emplacements des forages correspondent également à la Figure 2.4. Les données lithologiques issues des forages carottés sont représentées par des barres noires. Les différentes séries sédimentaires silicoclastiques du bassin constituent le Groupe Athabasca, déposé dans des paléoenvironnements fluviatiles (Rainbird et al., 2007). Il peut être subdivisé en quatre séquences sédimentaires majeures (Ramaekers et al., 2007 ; Figure 2.4, Figure 2.5 et Figure 2.6)

- **La séquence 3** se compose des formations de Lazenby Lake (LZ, Figure 2.4 et Figure 2.5) et de Wolverine Point (W, Figure 2.4 et Figure 2.5) représentant la première phase de la sédimentation dans le sous-bassin de Mirror. La séquence 3 forme un mégaprisme de cône alluvial, multicyclique, dont l'épaisseur et la granulométrie des dépôts sédimentaires diminuent progressivement vers le nord (Ramaekers et al., 2007 et références associées).

- **La séquence 4** correspond à la seconde phase de sédimentation dans le sous-bassin de Mirror. Elle comprend quatre formations : les formations de Locker Lake (LL, Figure 2.4 et Figure 2.5) et d'Otherside (O, Figure 2.4 et Figure 2.5) sont composées d'arénites quartziques et d'une faible proportion de conglomérats, la formation de Douglas est majoritairement composée de shales carbonés d'origine lacustre à marine, et la formation de Carswell de dolomie stromatolitique-oolitique (Ramaekers et al., 2007 et références associées).

2.5 Métallogénie des gisements d'uranium de l'Athabasca

Le Bassin de l'Athabasca contient les gisements d'uranium les plus riches au monde. Les premiers gisements ont été découverts à la fin des années 1960 avec Rabbit Lake (Hoeve et Sibbald, 1978) dans l'est du bassin et Cluff Lake (Harper, 1983) à l'ouest. Rapidement, l'exploration de la ressource s'est intensifiée et de nouveaux gisements de classe mondiale ont été trouvés. La concentration en oxydes d'uranium peut dépasser 20% de la roche totale dans les gisements de McArthur River et Cigar Lake (Jefferson et al., 2007).

2.5.1 Rôles des fluides

La minéralisation est contrôlée par deux types de structures majeures : la discordance qui sépare les séries sédimentaires d'âge paléo- à mésoprotérozoïque (cf. sous-partie précédente) du socle cristallin, et les zones de failles affectant à la fois le socle et la base du bassin. Ces dernières ont subi de multiples réactivations, certaines après le dépôt du bassin, qui ont contrôlé la mise en place des minéralisations uranifères (Baudemont and Fedorowich, 1996 ; Ruhrmann, 1987 ; Tourigny et al., 2007). Dans les systèmes de type discordance, les failles agissent comme des conduits structuraux permettant le transport et la mise en contact des fluides métamorphiques réducteurs du socle (Martz et al., 2017 ; Mercadier et al., 2010) et des saumures oxydantes enrichies en uranium du bassin (Fayek and Kyser, 1997 ; Martz et al., 2019a ; Mercadier et al.,

2010 ; Richard et al., 2012). Les modèles génétiques les plus acceptés suggèrent (i) une précipitation des oxydes d'uranium par réaction avec des phases minérales réductrices dans le socle cristallin (Fayek and Kyser, 1997 ; Hoeve and Quirt, 1984), et/ou (ii) par le mélange de saumures de bassins oxydantes avec des fluides réducteurs provenant du socle (Hoeve and Sibbald, 1978 ; Jefferson et al., 2007 ; Kotzer and Kyser, 1995). Les halos d'altération hydrothermale suggèrent une circulation des fluides de type « ingress » impliquée dans les minéralisations du socle, c'est-à-dire des fluides pénétrant depuis le bassin jusque dans le socle. A contrario, la morphologie des halos d'altération autour des gisements dans le bassin suggère une circulation des fluides de type « egress », c'est-à-dire des fluides remontant du socle vers le bassin (Fayek and Kyser, 1997 ; Li et al., 2018 ; Sheahan et al., 2016 ; Figure 2.7).

La convection à grande échelle associée à un gradient géothermique normal a été proposée par Hoeve and Sibbald, (1978) et Boiron et al., (2010) comme le principal mécanisme responsable de la circulation des fluides et montrée possible grâce à des modélisations numériques (Raffensperger and Garven, 1995a, 1995b). D'autres études ont évoqué une circulation contrôlée par la topographie (par exemple, Derome et al., 2005 ; Hiatt and Kyser, 2007).

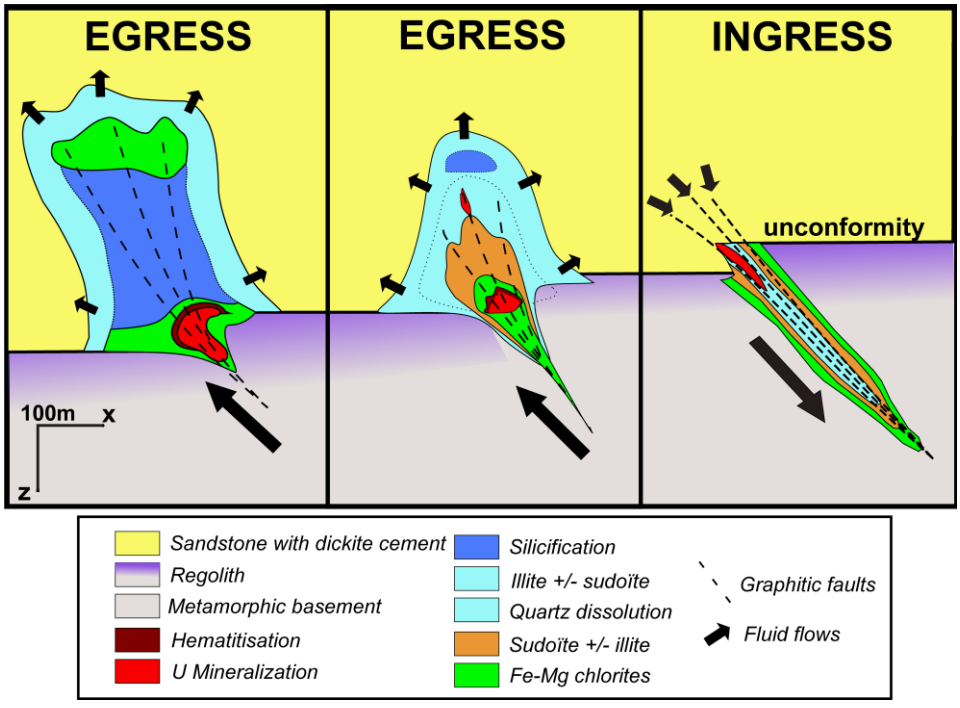


Figure 2.7 : Explication schématique des zones d'altération de type « egress » et « ingress » pour les gisements d'uranium de type discordance d'après thèse Marchal et al. in prep. Les fluides circulant depuis le socle sont réducteurs ; les fluides provenant du bassin sont oxydants et contenaient de l'uranium en solution. Les modèles proposent que le mélange de ces fluides au niveau de la discordance ait permis la précipitation de l'uranium.

2.5.2 Conditions et âge de précipitation des oxydes d'uranium

Les premières estimations de températures en base du bassin de l'Athabasca proviennent de Pagel (1975). L'auteur a étudié les inclusions fluides piégées dans des surcroissances de quartz dans des grès à la base d'un forage au centre du bassin (Rumpel Lake), et à la base d'un forage près de la structure de Carswell. Il a montré que les températures d'enfouissement atteignaient 180°C et 220°C respectivement. D'autres données obtenues sur des objets similaires pour le forage de Rumpel Lake montrent des températures comprises entre 200° et 250 °C (Chu and Chi, 2016 et références associées). Par ailleurs des températures maximales d'enfouissement entre 160° et 200 °C ont été obtenues grâce à une étude de la réflectance de la vitrinite sur la Formation de Douglas (cf. *sous-partie 2.4* – séquence 4), située près du sommet actuel du Bassin de l'Athabasca, par Stasiuk et al., (2001). La majorité des modèles métallogéniques proposent une formation des gisements d'uranium dans le bassin à partir de saumures circulant dans ces gammes de températures, comprises entre 120 et 250°C (par exemple, Boiron et al., 2010 ; Derome et al., 2005 ; Martz et al., 2019 ; Rabiei et al., 2021).

Pour un gradient thermique de 35 °C/km en supposant un régime de pression lithostatique et aux températures atteintes en base de bassin, Pagel (1975) a déduit une profondeur maximale d'enfouissement de 4,8 km au niveau de la structure de Carswell et de 3,2 km au niveau de Rumpel Lake. Depuis, les nombreux modèles du bassin utilisent ce gradient géothermique. De récentes études ont montré que les profondeurs d'enfouissement ont peut-être été surestimées et suggèrent une profondeur maximale d'enfouissement des sédiments < 3 km (Chi et al., 2018). Cette plus faible profondeur est associée à une élévation locale ou à l'échelle du bassin des gradients géothermiques et à une pression de fluide hydrostatique ou sub-hydrostatique au moment de la précipitation des minéralisations uranifères (Chi et al., 2018 ; Song et al., 2022 ; Wang et al., 2018).

Les minéralisations primaires d'oxydes d'uranium en Athabasca ont à ce jour été datées entre 1590 Ma et 1330 Ma (Alexandre et al., 2009 ; Cumming and Krstic, 1992). Ces épisodes minéralisateurs coïncident avec des événements tectoniques régionaux tels que l'orogenèse Mazatzal et la mise en place des dykes mafiques de McKenzie à ca. 1600 – 1400 Ma et ca. 1267 Ma respectivement (Alexandre et al., 2009). De nombreuses phases de remobilisation des minéralisations primaires ont été identifiées jusqu'il y a quelques centaines de million d'années, reflétant des circulations hydrothermales tardives liées aux réactivations tectoniques (par

exemple, Carl et al., 1992 ; Fayek and Kyser, 1997 ; Jefferson et al., 2007 ; Martz et al., 2019b ; Figure 2.8). Une frise chronologique de Chi et al. (2018) synthétise les différents âges obtenus pour les minéralisations U (Figure 2.8).

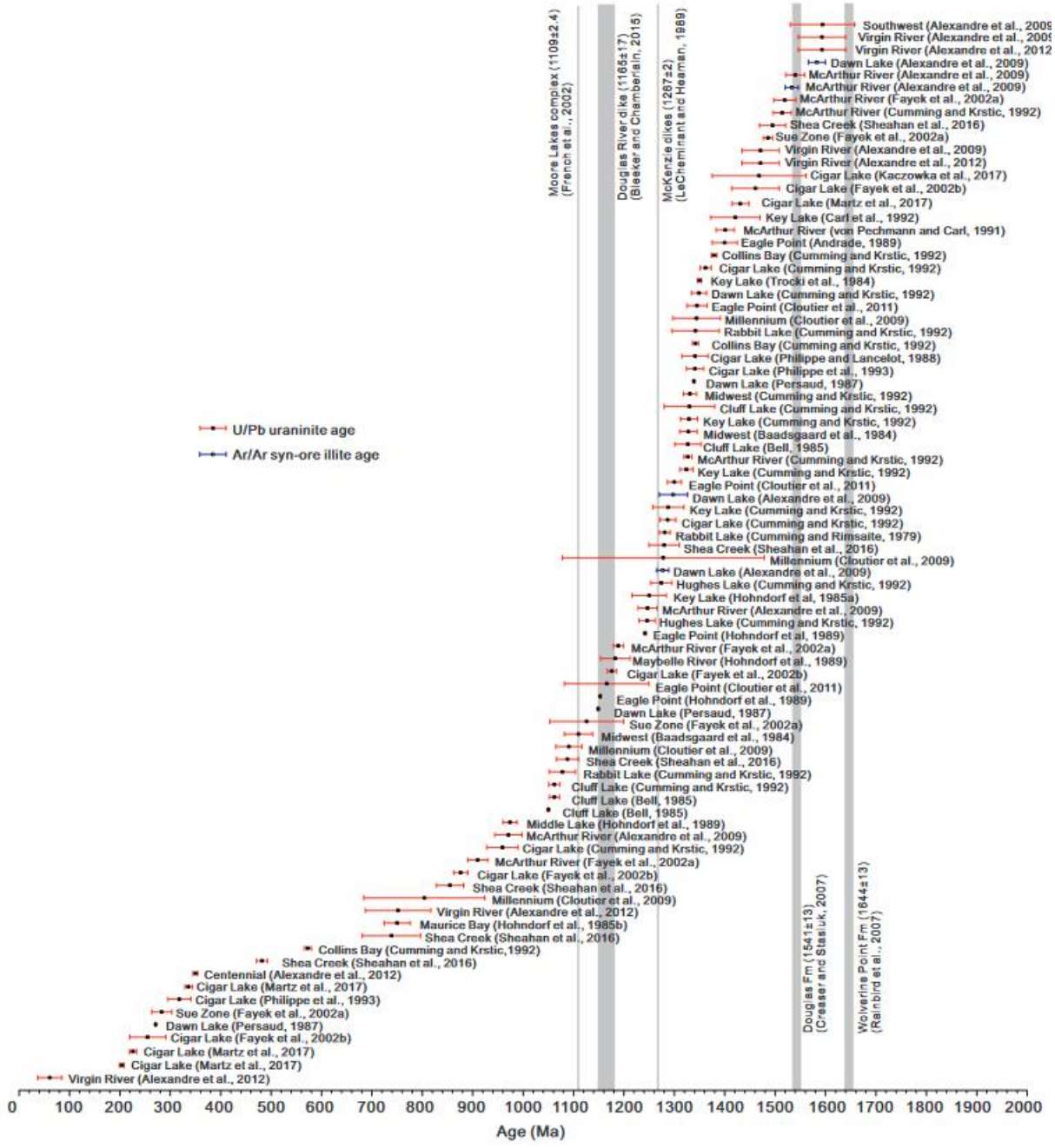


Figure 2.8 : Compilation des âges U-Pb de l'uraninite et des âges Ar-Ar de l'illite associés aux minéralisations en uranium dans le Bassin de l'Athabasca, d'après Chi et al., 2018. Sont également indiqués les âges de certaines unités stratigraphiques du bassin et des événements magmatiques ayant affecté la région.

2.5.3 Caractérisation des différents types de minéralisation uranifère dans le Bassin de l'Athabasca

Les minéralisations d'uranium du bassin de l'Athabasca présentent des morphologies variées, associées à des structures et des zones d'altération spécifiques :

- Les gisements situés dans le socle jusqu'à plusieurs centaines de mètres de profondeur sous la discordance (par exemple McArthur River, Rabbit Lake, Eagle Point, Millenium ; Figure 2.9) sont généralement localisés dans des zones de cisaillement ductiles et fragiles recoupant les gneiss pélitiques à graphite, et réactivées après le dépôt du bassin (par exemple, Abdelrazek et al., 2021 ; Benedicto et al., 2021 ; Cloutier et al., 2010 ; Hoeve and Sibbald, 1978). La réactivation des failles héritées du socle (gouges, fractures, réouverture de la foliation) joue un rôle clé dans la circulation et le mélange de fluides oxydants et réducteurs, favorisant la précipitation d'uraninite (Benedicto et al., 2021 ; Figure 2.10) ;

- Les gisements situés dans le bassin au niveau de la discordance (par exemple, Cigar Lake, Midwest, McClean, Phoenix ; Figure 2.9) se localisent sur les premiers mètres de grès et conglomérats en base de bassin (Jefferson et al., 2007 ; Figure 2.9) ;

- Les minéralisations perchées sont situées dans le bassin sédimentaire et peuvent être éloignées de plusieurs dizaines voire centaines de mètres de la discordance (Bruneton, 1993). Elles sont structurellement contrôlées par des failles et des fractures, qui peuvent être reliées à une minéralisation située plus en profondeur. Elles se présentent sous forme disséminée, en amas ou en veines proches de la structure principale (par exemple, Pacquet and Weber, 1993).

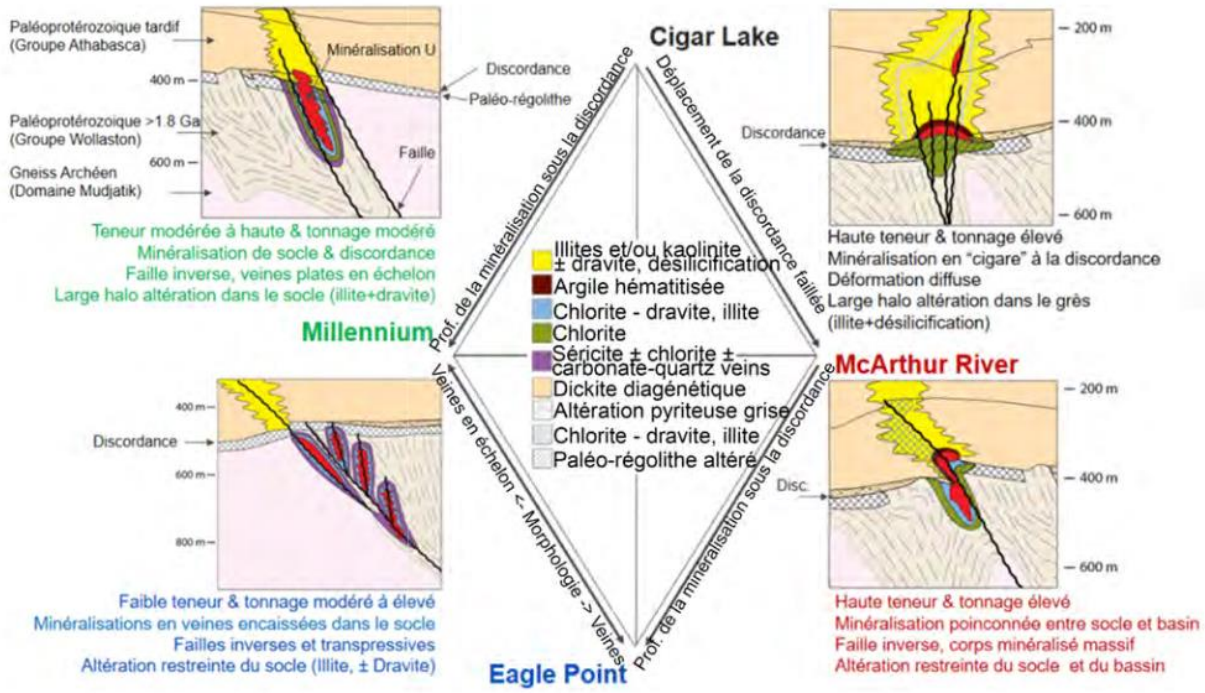


Figure 2.9 : Diagramme de classification lithostructurale avec les caractéristiques sommaires des pôles (modifié d'après Ledru et al., 2023).

L'uraninite et la pechblende (UO_2) sont les constituants majeurs des gisements d'uranium en Athabasca. Ils sont généralement ultérieurement altérés en coffinite ($U(SiO_4)$) ou en uranophane ($Ca(UO_2)_2(SiO_3OH)_2 \cdot 5H_2O$)). Les gisements d'uranium en Athabasca peuvent être monométalliques, c'est-à-dire composés principalement d'uraninite-pechblende ; ou polymétalliques, avec la présence de sulfures (par ex, galène, pyrite et chalcopyrite), d'arséniures et de sulfo-arséniures à Ni et Co (par ex, gersdorffite, cobaltite, rammelsbergite et nickéline) associés à l'uraninite-pechblende (Jefferson et al., 2007).

Les altérations hydrothermales dans le socle, liées aux gisements d'uranium, sont généralement riches en chlorite avec des proportions variables de dravite et d'illite selon les gisements (Figure 2.9). Les halos d'altération hydrothermale dans le bassin, au-dessus des gisements de socle ou autour des gisements de bassin, sont principalement composés d'illite avec des proportions variables de kaolinite et de dravite (i.e., tourmaline magnésienne) selon les gisements. Ces halos d'altérations peuvent être épais de plusieurs centaines de mètres autour des minéralisations et servent généralement de guide pour l'exploration de l'uranium dans la région.

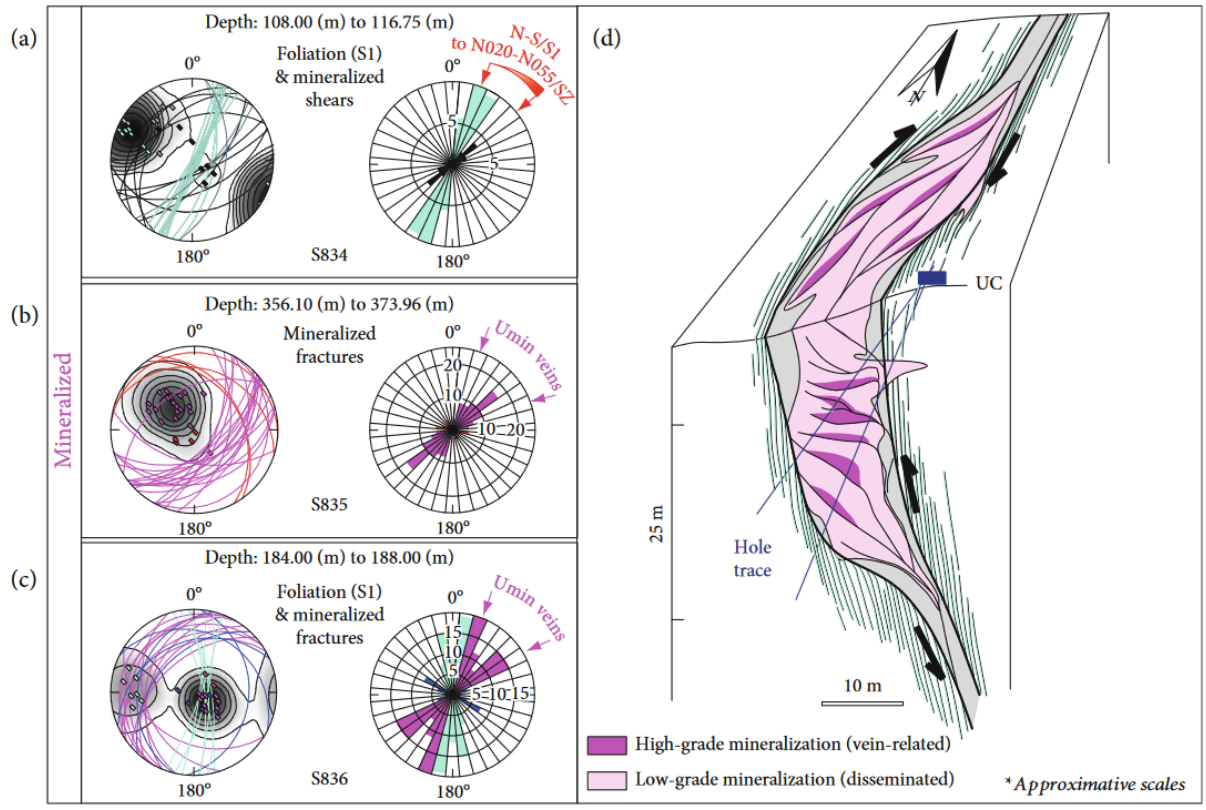


Figure 2.10 : a, b et c) Analyse des données orientées « acoustic televiewer » (ATV) des intervalles minéralisés la foliation métamorphique S1, des cisaillements minéralisés, des fractures et des veines à U. (d) Dessin schématique de l'interprétation structurale pour les intervalles minéralisés. D'après Benedicto et al., 2021.

2.5.4 Rôle du graphite dans la précipitation des oxydes d'uranium

Le rôle du graphite dans les gisements d'uranium de type discordance reste un sujet de débat. Deux potentiels rôles ressortent le plus souvent (Song et al., 2022) : (i) un rôle chimique où le graphite agirait comme réducteur direct ou indirect de l'U^{6+} en $U4^{+}$, contrôlant ainsi les réactions de précipitation des oxydes d'uranium (Alexandre et al., 2005), et (ii) un rôle mécanique où le graphite agirait en tant que lubrifiant dans les failles, facilitant leur réactivation et permettant ainsi la circulation des fluides hydrothermaux (réducteurs et/ou oxydants) nécessaires à la formation des gisements. Bien que le graphite ait été proposé comme réducteur direct de l'uranyle (U^{6+}), favorisant ainsi la précipitation des oxydes d'uranium (Alexandre et al., 2005), aucune association minérale significative graphite-uranium n'a été décrite, excluant tout lien direct de cause à effet. Cette hypothèse repose principalement sur des observations de la diminution des

concentrations de graphite dans les premiers mètres du socle sous les gisements (Hoeve and Sibbald, 1978 ; Jaguin, 2015 ; Pascal et al., 2016). Le carbone semble plutôt mobile dans le système, comme en témoigne la présence de billes de bitume au sein ou à proximité des minéralisations, près de la discordance dans les zones d'altération hydrothermale. Cela suggère que le graphite pourrait s'altérer dans ces environnements (Hoeve and Quirt, 1987 ; Hoeve and Sibbald, 1978 ; Landais et al., 1993 ; Reyx and Ruhlmann, 1993 ; Sangély et al., 2007). Cette altération pourrait entraîner la libération de diverses espèces carbonées (Hoeve et Sibbald, 1978 ; Raffensperger et Garven, 1995b), notamment le CH_4, qui peut jouer un rôle de réducteur pour les complexes uranyles dans les conditions géologiques de formation des gisements d'uranium (Dargent et al., 2015). Selon Song et al. (2022), le graphite jouerait un rôle à la fois mécanique et chimique, où les réactivations épisodiques des failles du socle, facilitées par la présence de graphite, provoqueraient la libération de fluides à carbone, dont le CH_4 serait le produit principal.

2.5.5 Rôle de la pyrite dans la précipitation des oxydes d'uranium

Plusieurs études tendent à montrer que la pyrite a joué un rôle clé dans la précipitation des gisements d'uranium. L'altération de la pyrite a été observée dans les zones d'altération hydrothermales associées aux gisements d'uranium, et est probablement responsable de la génération de fluides transportant des sulfates acides (Moissette et Dubessy, 1992 et références associées), potentiellement impliqués indirectement dans la précipitation de l'uranium (Dargent et al., 2015 ; Moissette et Dubessy, 1992).

Mount et al. (2022) dans le cadre de l'étude d'un des plus gros gisements de socle à l'ouest de l'Athabasca (Triple R), mettent en évidence son rôle via l'étude des isotopes du Fe et de S : lors des réactivations de failles préalablement enrichies en graphite et pyrite, les saumures oxydantes portant l'uranium en solution ont circulé du bassin vers le socle et ont réagi avec les sulfures des roches encaissantes ainsi qu'avec des fluides réducteurs profonds riches en H_2S. Ces réactions redox et le mélange des fluides ont conduit à la précipitation d'uraninite et de pyrite syn-minéralisation.

Pour les gisements de McArthur River et Fox Lake dans l'est du Bassin de l'Athabasca, DeDecker (2019) propose un mécanisme permettant de précipiter de l'uraninite impliquant l'oxydation de la pyrite préalablement présente dans les failles : le remplacement de la pyrite par l'uraninite (UO_2) s'effectue en oxydant le Fe^{2+} et le S_2^{2-} dans la pyrite par l'UO_2^{2+} et le Fe^{3+}

(aqueux) contenus dans les fluides de bassin, couplée à la réduction simultanée de l'UO_2^{2+} (aqueux) en UO_2 (solide).

Partie A

Origine et mobilités du carbone et du soufre avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca : formation des zones de cisaillement graphiteuses et pyriteuses de l'orogène Trans-Hudson

Chapitre 1

Contrôle de l'évolution des zones de cisaillement dans un cycle orogénique sur la distribution et l'enrichissement du graphite : exemple de l'orogenèse trans-hudsonienne paléoprotérozoïque

Avant-propos

Ce chapitre décrit les processus d'enrichissement en graphite dans les zones de cisaillement à graphite communément appelées « conducteurs graphiteux » dans l'exploration de l'uranium en Athabasca. Il fait l'objet d'une soumission dans la revue scientifique *LITHOS*.

Résumé :

Les orogènes paléoprotérozoïques sont marquées par un enrichissement global en carbone. La zone de transition Wollaston-Mudjatik (WMTZ) s'est formée vers 1,8 Ga et résulte de l'orogenèse trans-hudsonienne située dans le Bouclier Canadien. Deux zones de cisaillement à graphite ont été considérées (Waterfound et McClean South), caractérisées par des différences en termes de teneur en graphite, d'épaisseur des intervalles de graphite et de distribution spatiale du graphite. Des observations pétrographiques et structurales systématiques détaillées, associées à la spectroscopie Raman, indiquent que différents types de graphite peuvent être distingués et que les processus d'enrichissement dans les zones de cisaillement (cœur de faille et zone de dommages) semblent contrôlés par : i) la présence de magma provenant de la fusion partielle de métasédiments à graphite créant des restites riches en graphite dans le processus de migmatisation, ii) la précipitation de graphite hydrothermal à partir de fluides riches en carbone dans les zones de faille ductiles à fragiles, et iii) la remobilisation mécanique du graphite dans des stylolites et dans les cœurs de faille. La proportion de la fraction fondue apparaît comme un facteur clé contrôlant la taille et la forme de la zone de faille et la distribution du carbone dans cet environnement. Les zones de cisaillement paléoprotérozoïques riches en graphite présentent de fortes hétérogénéités dans la distribution du carbone principalement porté par le graphite, liées à leurs histoires distinctes. Ce travail permet de mieux comprendre la dynamique du graphite dans les zones de cisaillement à partir d'un cycle orogénique.

Mots-clés : Graphite, Zones de cisaillement paléoprotérozoïques, Orogénèse Trans-Hudson, Cataclasite, Hydrothermalisme.

Control of shear zone evolution in orogenic cycle on graphite distribution and enrichment: example of the Paleoproterozoic Trans-Hudson Orogeny.

Thomas Obin[1], Gaétan Milesi[1], Patrick Ledru[1], Pierre Martz[2], Olivier Gerbeaud[2], Marc Brouand[2], Magdalena Anderson[3], Raymond Michels[1], Julien Mercadier[1]

[1] GeoRessources, CNRS, Université de Lorraine, LabCom CREGU, 54506 Vandœuvre-lès-Nancy, France

[2] ORANO Mining, Châtillon, France

[3] ORANO Canada, Saskatoon, Canada

Correspondance

Obin Thomas, Faculté des Sciences et Technologies, Campus Aiguillettes "Entrée 3B"

Rue Jacques Callot, BP 70239, 54506 Vandœuvre-Lès-Nancy, France

Phone: +33 3 72 74 55 75 - Email: thomas.obin@univ-lorraine.fr

ABSTRACT

Paleoproterozoic orogenies are marked by a global carbon enrichment. The Wollaston-Mudjatik Transition Zone (WMTZ) was formed around 1.8 Ga and is part of the Trans-Hudson Orogeny located in the Inner Canadian Shield. Two graphitic shear zones were considered (Waterfound and McClean South), characterized by differences in terms of graphite grade, thickness of graphite intervals and spatial distribution. Detailed systematic petrographic and structural observations coupled with Raman spectroscopy indicate that different type of graphite can be distinguished and enrichment processes in shear zones (fault core and damage zone) appear controlled by : (i) the presence of melts from partially melted graphitic metasediments creating graphite-rich restites in migmatization process, (ii) precipitation of hydrothermal graphite from carbon-rich fluids in ductile to brittle fault zones, and (iii) mechanical remobilization of graphite within stylolites and fault cores. The proportion of melt fraction appear as a key factor controlling the size and shape of fault zone structural framework and the carbon distribution in this environment. Paleoproterozoic graphite-rich shear zones therefore display strong heterogeneities in carbon budgets and distributions linked to their distinct histories. This work provides insights into the dynamics of graphite in shear zones from orogenic cycle.

Keywords: Graphite, Paleoproterozoic shear zones, Trans-Hudson Orogeny, Cataclasite, Hydrothermalism

3 INTRODUCTION

The Paleoproterozoic era is renowned for a series of orogenic events occurring approximately 2.1 to 1.8 billion years ago which resulted at a global scale in the formation of the Nuna supercontinent. These events played a crucial role in the control of the carbon cycle as they globally marked the first burial of carbon-rich sediments that formed during the Lomagundi-Jatuli and Shunga events (Paiste et al., 2020; Strauss et al., 2013; Prave et al., 2021; Parnell and Brolly, 2021). The Paleoproterozoic orogenies therefore triggered the transformation of carbon from sedimentary protoliths into graphite, and its subsequent mobilization and reconcentration that formed shear zones preferentially enriched in graphite (Parnell and Brolly, 2021; Toma et al., 2024). These Paleoproterozoic graphite-rich shear zones are thus of high scientific values (Simandl et al., 2015) and are of economic interest with graphite deposits such as the Asbury graphite mine, Lac Knife and Bissett Creek deposits (Canada), and elsewhere, for instance in Finland (Al-Ani et al., 2022), Norway (Engvik et al., 2021; Gautneb et al., 2020), China (e.g., Zhong et al., 2019) and Madagascar (Yang et al., 2024).

The Wollaston-Mudjatik Transition Zone (WMTZ, Figure 3.1) is an archetype of Paleoproterozoic orogenies (Jeanneret et al., 2017), constituted by a 50 kilometres wide network of graphite-rich structures emplaced during the Trans-Hudson Orogeny (THO, Ledru et al., 2023; Figure 3.1). The THO is located in the North Canadian Shield and formed around 1.84-1.78 billion years ago (Annesley et al., 2005; Hoffman, 1988). The graphitic shear zones of WMTZ are often termed as “graphitic conductors” due to their high graphite content resulting in low electromagnetic resistivity (Glover, 1996). They are of particular interest for exploring polymetallic resources (e.g., U, Ni, Co, Au; Kaczowka, 2017), with uranium (U) being a primary target within the Paleo- to Mesoproterozoic Athabasca Basin (Jefferson et al., 2007) that overlies the WMTZ (Figure 3.1).

The aim of this study is to characterize the graphite typology and its repartition in THO shear zones to discuss the main processes and mechanisms active during Trans-Hudsonian orogenic evolution that controlled carbon mobility, enrichment and distribution in these structures. For this purpose, we targeted two zones beneath the Athabasca Basin that host graphite-rich shear zones: McClean South (MCS, Figure 3.1) and Waterfound (WF, Figure 3.1). They experienced the same global metamorphic P-T pathways largely defined by previous studies (e.g., Annesley et al., 2005; Jeanneret et al., 2007; Martz et al., 2017, 2019) but are located in different zones of the THO and present different total graphite contents. An integrative approach was applied that involves the

selection of oriented drill holes along both graphite-rich shear zones to investigate the lateral and vertical variabilities in graphite content in consideration of fault zone architecture. Systematic logging of lithologies, structures and locations/concentrations of graphite was performed on the field, coupled with dedicated mineralogical and petrographical observations at laboratory to assess the paragenetic association and quantification of graphite crystallinity.

3.1 Geological settings

3.1.1 Regional settings: Trans-Hudson Orogeny and the Wollaston-Mudjatik Transition Zone

The western margin of the Hearne Craton comprises two distinct domains of Paleoproterozoic age: the Mudjatik domain and the Wollaston domain (Figure 3.1B). The first consists mainly of high-grade metamorphic rocks including granitoid, orthogneisses, and migmatitic paragneisses and mafic gneisses in lesser proportion (Lewry and Sibbald, 1977, 1980). The second consists mainly of migmatized Paleoproterozoic metasediments deposited on Archean basement, including pelitic to psammitic gneisses, quartzites, calc-silicates and some marbles. The sediments were deposited on the passive margin of Manikewan Ocean formed at ca. 2.1 Ga. The closing of this ocean occurred around 1.92 Ga ago and led to the development of the THO (Ansdell, 2005; Tran, 2001). The Flin Flon - Glennie complex, comprising oceanic accretionary arc, oceanic floor, and volcanic islands, formed during this period (Ansdell, 2005). It collided with the margin of the Hearne Craton around 1.85 billion years ago (Ansdell, 2005). The Wollaston domain and the eastern part of the Mudjatik domain underwent substantial deformation and metamorphism during the THO (ca. 1.82-1.78 Ga, Jeanneret et al., 2016). The two domains are separated by the WMTZ which is a 50 km-wide transition zone (Figure 3.1). It marks a gradual transition of different structural style, metamorphism, magmatism and lithologies between the two domains (Annesley et al., 2005; Annesley and Madore, 1989).

The WMTZ is primarily characterized by: (i) migmatitic complex incorporating basement-cover assemblages (Lewry and Sibbald, 1980), (ii) granitic rocks crystallized through magma produced by crustal anatexis (Annesley et al., 2005), (iii) graphite bearing metasediments derived from organic matter bearing sediments through the prograde metamorphism (Martz et al., 2017; Pascal et al., 2016; Wilson et al., 2007) and (iv) crustal-scale subvertical structures with variable graphite enrichments (Figure 3.1; Card, 2021; Jeanneret et al., 2016).

From ca. 1.83 to 1.805 billion years ago, the collision stage of the THO is marked by north-eastward isoclinal folds and the development of a pervasive foliation induced by NE-SW shortening (Annesley et al., 2005; Ledru et al., 2023; Pascal et al., 2016; Tran, 2001). Then, from ca. 1.805 to 1.775 Ga, a change in tectonic regime triggered the formation of open folds, right-lateral graphitic shear zones (Annesley et al., 2005) and caused the reorientation of the foliation. This event marked the first stages of orogenic exhumation. Finally, post-collisional stages occurred between 1.775 and 1.720 Ga (Annesley et al., 2005). During this phase, the THO was dismantled. Large-scale sedimentary basins started to form at the end of this stage. The Athabasca Basin (Furlanetto et al., 2016) is a remnant of one of them.

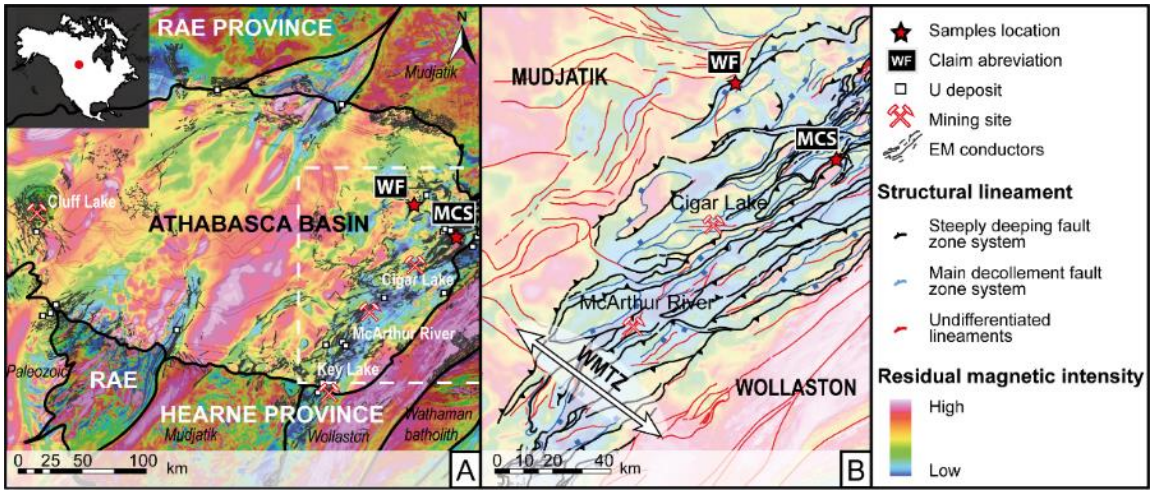


Figure 3.1: A: First vertical derivative of total magnetic intensity map of the crystalline basement in the area of the Athabasca Basin (Saskatchewan, Canada). The basement is divided into 2 main provinces (from East to West: the Hearne Province comprising the Wollaston domain and the Mudjatik domain, and the Rae Province). Thin black lines correspond to electromagnetic (EM) conductors as interpreted by the Saskatchewan Geological Survey (SGS) from airborne EM-surveys. Waterfound (WF) and McClean South (MCS) zones are represented by red stars. The white dashed rectangle corresponds to the extent of figure B. B: Focus on the Wollaston Mudjatik transition zone (WMTZ, modified from Ledru et al., 2023). This zone is characterized by an overall low magnetic intensity associated with Paleoproterozoic graphitic metasediments and graphite-rich structures, contrasting with the high magnetic intensity Archean magmatic lithologies present in the eastern sections of the Wollaston domain and in the Mudjatik domain. Waterfound exploration project is located at the edge of WMTZ, whereas McClean South exploration project is located in the central zone of the WMTZ. U mines of Cigar Lake and McArthur River are indicated.

3.1.1 Graphitic shear zones of the WMTZ

Graphite-rich shear zones of WMTZ have been extensively studied at the scale of the Athabasca Basin since the discovery of the first U deposits in the 1960s. At a crustal scale, these long-lived and steeply dipping structures are deeply penetrating in the crust. Carbon-bearing phases in graphitic shear zones have been studied using various methods such as petrography, Raman spectroscopy, and isotopic analysis of carbon (e.g., Song et al., 2022). Carbon isotopes have been particularly useful in identifying the origin of carbon in the shear zones: biogenic for graphite in metasediments, mainly biogenic (sourced from destruction of metamorphic graphite) with a secondary C source dominantly coming from dissolution of carbonates for graphite in the shear zones (Martz et al., 2017). Higher concentrations of graphite have been observed within the shear zones compared to the host rocks, with a decrease in concentration below the unconformity linked to an oxidized zone present everywhere under the basin (Pascal et al., 2016). In Manitoba (Canada), graphitic shear zones of the THO control other commodities like gold mineralization within the Lynn Lake greenstone belt (Lawley et al., 2023) and Cu-bearing sulphides mineralization in the Kisseynew Domain (Manitoba, Canada, Mumin and Trott, 2003).

3.2 SAMPLING AND ANALYTICAL METHOD

3.2.1 Sampling strategy

Two areas were selected for this study: McClean South (MCS) and Waterfound (WF) prospects (Figure 3.1). These zones are located in distinct regions of the WMTZ. WF is located at the western edge of the WMTZ while MCS is located in its inner part. Graphitic shear zones in these two prospects have been extensively drilled during the last five years for U exploration. They host limited uranium mineralization and clay alteration compared to high grade U deposits (i.e., Cigar Lake or McArthur River) located on other graphitic shear zones, favouring access to pristine samples and observation of preserved lithological and structural features. These two graphitic shear zones extend laterally on more than 100 kms (Figure 3.1). The three cross-sections spread on 150 m for MCS and 450 m for WF respectively (Figure 3.2). The dataset does not thus allow a characterization of the variabilities of graphite properties at scale of the two shear zones but provide a first-order small-scale definition of potential spatial heterogeneities in graphitic shear zones.

For McClean South, three cross-sections were considered for this study (Figure 3.2A; drill holes with red diamonds): i) MCS-49, MCS-50, MCS-51A at the western part of the uranium pod (no U-mineralization at the unconformity); (ii) MCS-34 and MCS-35C at the central part of the pod (U-mineralization at the unconformity); and iii) MCS-41, MCS-44 and MCS-57 at the eastern part of the pod (no U-mineralization at the unconformity). For Waterfound, three cross-sections were considered for this study (Figure 3.2B; drill holes with red diamonds): i) WF-83 and WF-84 (no U-mineralization at the unconformity); ii) WF-67, WF-68 and WF-68-1 (U-mineralization at the unconformity); and iii) WF-82 (few U-mineralization at the unconformity). For the two prospects, all the drillholes represented by white diamond in Figure 3.2 were reviewed, but only those with red diamonds were extensively logged.

3.2.1.1 Logging of graphitic shear zone: structural and lithological logging, graphite grades and structural measurements

Lithologies of MCS and WF basements were classified in three groups depending on the amount of quartzo-feldspathic leucosomes visible from the cores: paragneisses (< 20% of leucosomes), metatexite (20-70% leucosomes), diatexite (> 70% leucosomes) and pegmatoids (Figure 3.3). Structures were classified as mylonite, cataclasite and gouge following Fossen (2016). The orientation and dip of the structures spatially linked to graphite-rich shear zones in the selected drillholes of MCS and WF prospects were systematically measured. Roll-angle and dip-angle were specified from the orientation line, followed by correction using the borehole's orientation, dip, and deviation. The error on roll-angle and dip-angle measurements is ±10°. Orientation measurement was coupled to a macroscopic description of the type of structure and related characteristics (e.g., observable minerals or description of potential alteration features). The orientations of complementary graphite-bearing fractures and foliation data from WF were extracted from the Orano Canada Inc. database for all drillholes mentioned in Figure 3.2, as part of their exploration routine. A visual classification of graphite grades from 0 to 4 was also adopted using the following grade scale: 0 (total graphite content in the rock or structure < 1%), 1 (total graphite content in the rock or structure between 1-5%), 2 (total graphite content in the rock between 5-15%), 3 (total graphite content in the rock or structure between 15-25%), and 4 (total graphite content in the rock or structure >25%).

3.2.2 Petrographic studies

Petrographic characterization was conducted on selected polished thin sections from representative drill-core samples (Figure 3.2). Petrographic observations and paragenetic relationships were done at GeoRessources laboratory (Nancy, France) using optical microscope with both transmitted and reflected lights, coupled to scanning electron microscopy (SEM) Tescan Vega 3 and JEOL J7600F, with energy dispersive spectroscopy (EDS) Brucker XFlash 6130. For images, beam intensity (BI) was set to 8-10 W/m² and voltage (HV) to 15-20 kV. For EDS analysis, BI was set to 15 W/m² and HV to 15 kV.

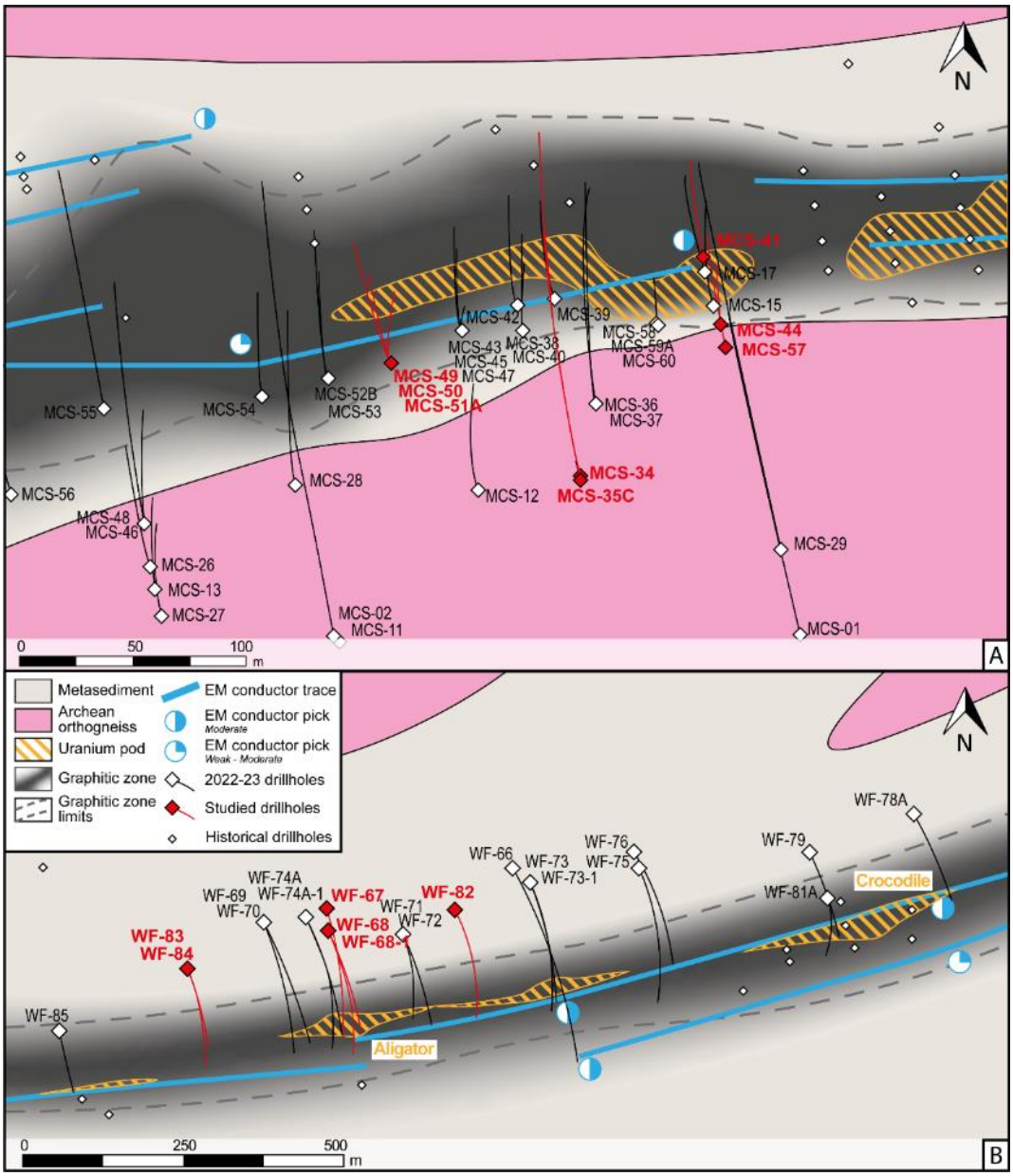


Figure 3.2 : Location of sampled drillholes and interpreted geological maps of the basement at the unconformity level for the McClean South (A) and Waterfound (B) exploration projects (Saskatchewan, Canada). Interpreted geological maps based on geophysics (magnetic, EM and resistivity) and geological (drillholes) data. The dark grey zone (referred as electromagnetic conductor) is marked by a positive electromagnetic anomaly interpreted to result from graphite- and sulphide-rich lithologies and structures.

3.2.1 Raman Spectroscopy of Carbonaceous Materials (RSCM)

The graphitization process is considered as irreversible and the crystallinity recorded is linked to the maximum temperature reached by the carbonaceous matter (Tissot and Welte, 1984). Raman Spectroscopy of Carbonaceous Materials (RSCM) is applied to measure the crystallinity of the graphite using the ratio between D-band and G-band (i.e., intensity ratio R1 in Buseck and Beyssac, 2014), here designated intensity ratio (I.R.). The crystallinity of different graphite types was investigated at GeoRessources laboratory using a LabRAM300 Raman microspectrometer (Horiba Jobin Yvon) and LabSpec 5 software. A Cobolt laser with a wavelength of 514.7 nm applied <0.5 mW power to the sample surface using a neutral filter and the x100 objective (numerical aperture = 0.85) of the Olympus BX50 microscope. The analysed carbonaceous material is systematically located below transparent quartz to protect it from surface polishing effects, that may bias crystallinity values (Kouketsu et al., 2019; Pasteris and Beyssac, 2020). Spectra were acquired through a 100 µm slit, a 1000 µm confocal hole and an 1800 gr/mm grating (spectral resolution ≃ 1 cm-1). Spectra were recorded over a range from 900 to 1900 cm-1 and centred at 1450 cm-1 (Appendices 1 to 5). Acquisition times are generally longer than 15 s and depend on the nature of the carbonaceous material being analysed. The number of acquisition cycles varies between 10 and 20 to improve the signal-to-noise ratio of the spectra.

3.3 Results

3.3.1 Lithological composition and graphite content of graphite-rich intervals and related rocks at Waterfound and McClean South

The samples studied within the graphite-rich intervals at MCS and WF prospects consist exclusively of Paleoproterozoic metasediments with variable degrees of faulting and melt.

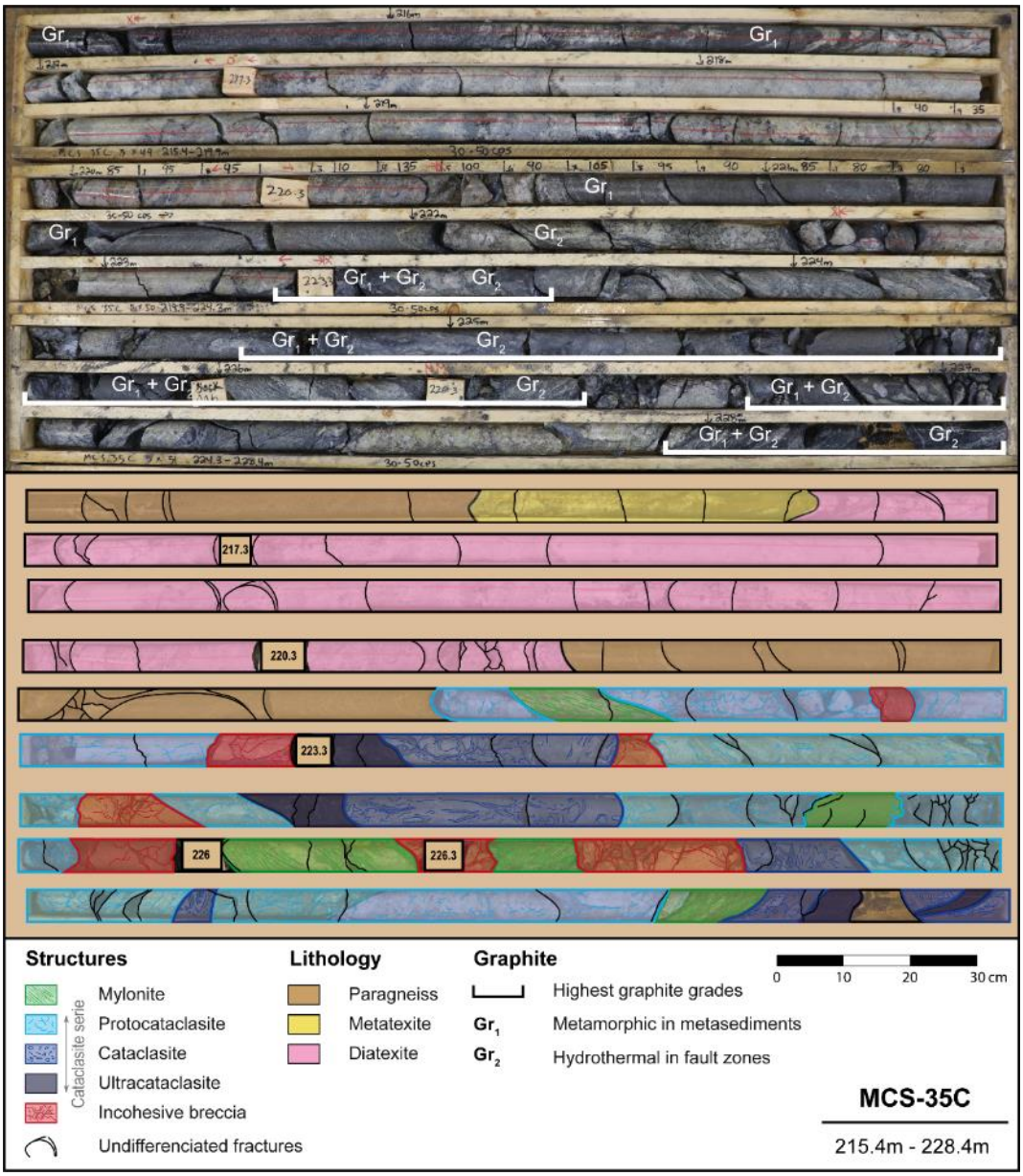


Figure 3.3 : Representative lithological and structural facies observed within the graphite-rich shear zones of the Wollaston-Mudjatik Transition Zone (WMTZ, Saskatchewan, Canada), from the example of MCS-35C drillhole (McClean South exploration project, Figure 3.2, from 215.4 m to 228.4 m). The shear zones are formed by Paleoproterozoic paragneisses (brown) variably enriched in graphite (grade 0-1), with variable contents (grade 1-2) of graphite-bearing restites (yellow: metatexites [intermediate content of melts], pink: diatextites and pegmatoids [high content of melts]). The graphite-rich shear zones are structurally compartmentalized with successive meter-scale intervals of ductile (mylonites, green), ductile-brittle and brittle (cataclasites, blue) and brittle (gouges and incohesive breccias, red) deformation zones. Ductile and ductile-brittle deformation zones are variably rich in graphite (grade 1-4), whereas brittle zones are not correlated with the presence of graphite-rich intercepts. Highest graphite grades: grades 3 and 4.

Most of basement studied in MCS, based on 3 fences and on 8 logged drillholes (Figure 3.4), is affected by melt and consists of metatexite (around 1/3, Table 3.1) with variable amount of melt and large intervals of diatexite (around 1/3, Table 3.1). At WF, based on 3 fences and on 6 logged drillholes (Figure 3.5), metatexite is prominent with minor amount of diatexite (around 1/10, Table 3.1).

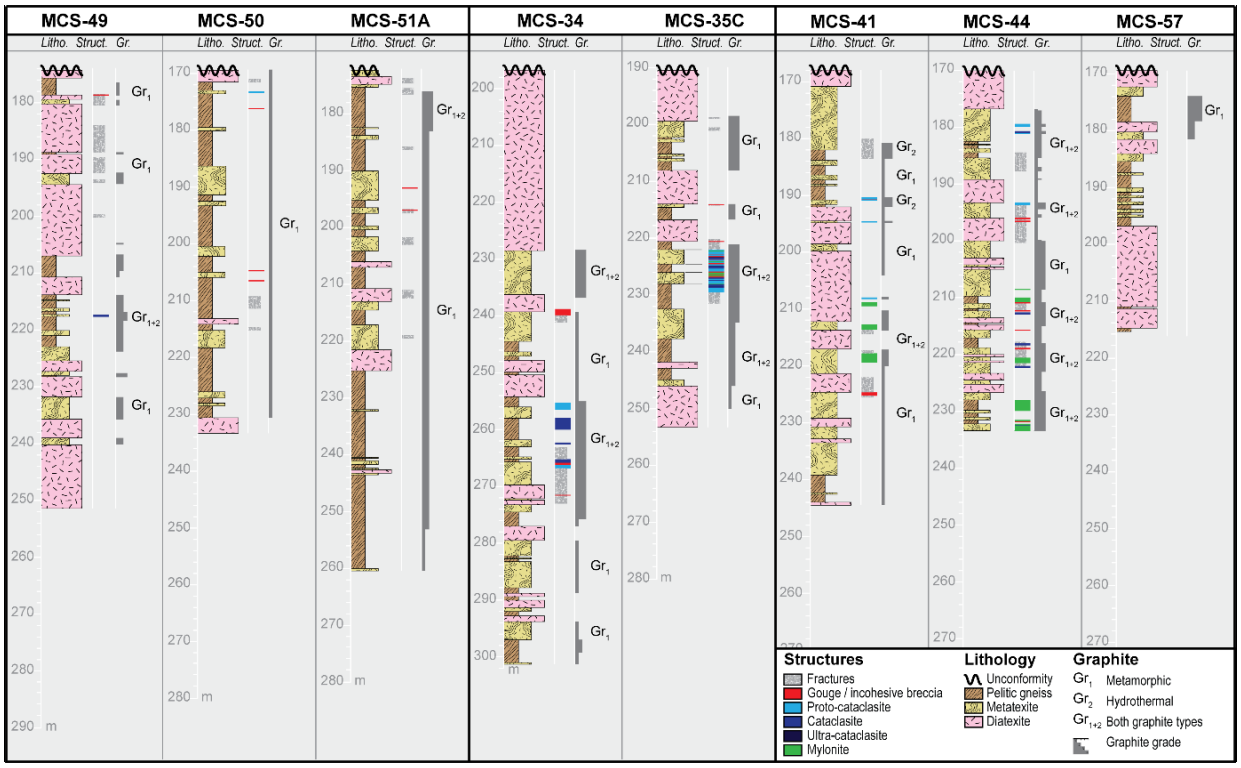


Figure 3.4 : Lithological (Litho.), structural (Struct.) and mineralogical characteristics of 8 drillholes from 3 fences crosscutting the graphite-rich shear zone of McClean South exploration project (Saskatchewan, Canada, Figure 3.2). Graphite (Gr.) contents are ranked between 0 (<1 wt.% content) to 4 (>25 wt.% content). Percentage determination is based on optical observation at the scale of the drillcores.

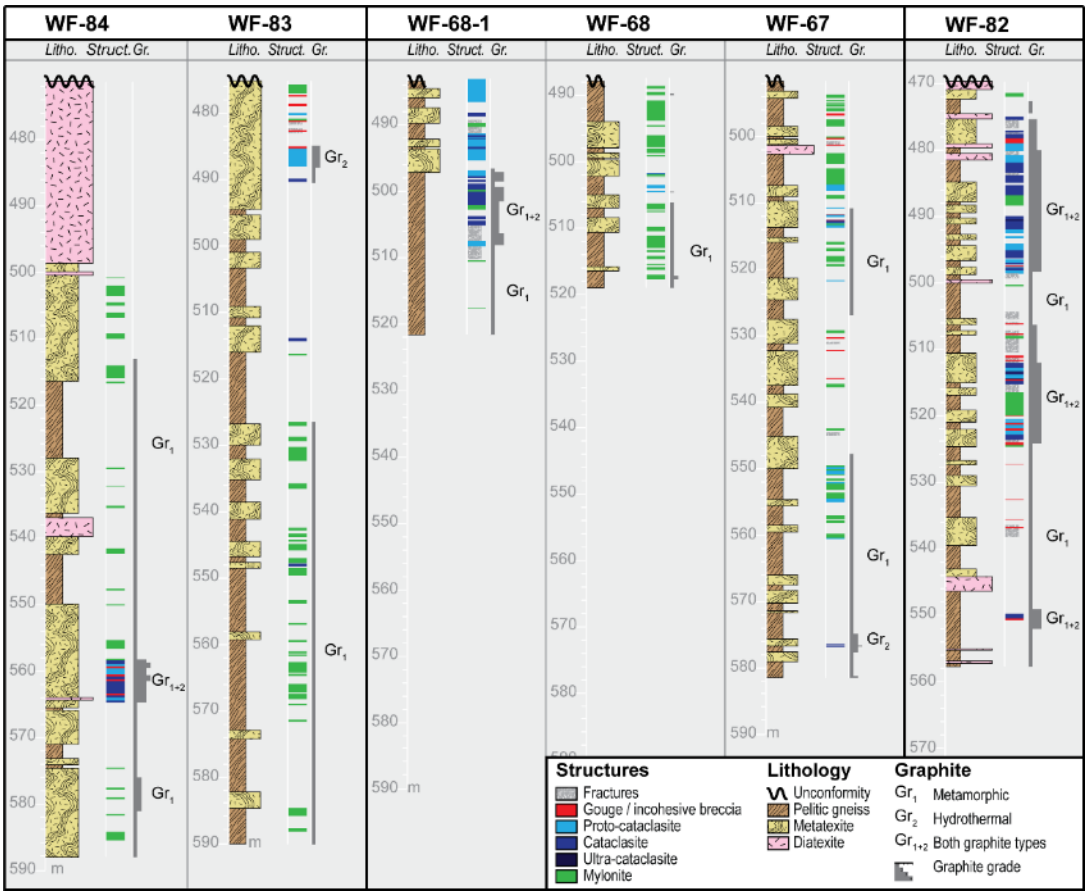


Figure 3.5 : Lithological (Litho.), structural (Struct.) and mineralogical characteristics of 6 drillholes from 3 fences crosscutting the graphite-rich shear zone of Waterfound exploration project (Saskatchewan, Canada, Figure 3.2). Graphite (Gr.) contents are ranked between 0 (<1 wt.% content) to 4 (> 25 wt.% content). Percentage determination is based on optical observation at the scale of the drillcores.

	Length (m)		Repartition (%)		Basement affected by structures (%)		Graphite grade ≥3 in structures (%)		Structures at rheological contrast (%)	
	MCS	*WF*	*MCS*	*WF*	*MCS*	*WF*	*MCS*	*WF*	*MCS*	*WF*
Pel. Gneiss	191	228	33	50						
Metatexite	174	191	30	42						
Diatextite	216	39	37	9						
Mylonite	8	67	28	53	1	15	44	3	56	66
Cataclasite	15	51	50	41	3	11	86	44	76	67
Gouges	6	8	22	6	1	2	46	30	81	82

Table 3.1: Lithological and structural proportions, relations between lithological and structural markers, and graphite grades for McClean South (MCS) and Waterfound (WF) exploration projects. Data based on 8 (MCS) and 6 (WF) logged drillholes crosscutting the graphitic shear zone of both prospects. First two columns indicate the total core length (in metres) defined in the basement for each lithology and deformation structure respectively. Third and fourth columns indicate the repartition (in %) of each lithology and each structure. Fifth and sixth columns indicate the proportion (in %) of the basement affected by each type of structure (normalized to the total length studied of each prospect). Seventh and eighth columns indicate the proportion (in %) of each structure types bearing more than 15% of graphite (grade 3-4). The last two columns indicate the proportion (in %) of structures located at a rheological contrast created by a lithological contact or the presence of a former structure. The global average per prospect is calculated by averaging the calculated proportions per drillholes.

Out of the shear zone, graphite grades in metasediments are low and quite constant ranging only from 0 (0%) to 1 (1-5 wt.%). Graphite occurs as thin flakes of high reflectivity. They range in size from about 100µm up to 1mm. The flakes are oriented along the inherited S1 foliation with other minerals from the metamorphic assemblage. Pegmatoids and leucosomes may contain Ti-rich tourmaline and biotite (Figure 3.6 E-I). There is no graphite in these melted intervals. The restites of migmatites mainly consists of biotite, graphite, titanium oxide and garnets (Figure 3.6 A-D) and graphite grade can reach 2 (5-15 wt.%).

Within the ductile and brittle shear zones, metasediments are affected by a retrograde hydrothermal alteration. This alteration favoured graphite enrichment (grade 1 to 4) and chemically replaced the original mineral assemblage and textural features of the metasediments. It replaced K-feldspars into sericite, biotites into ferromagnesian chlorite and Ti oxides. Additionally,

muscovite and graphite are formed within fractures (Figure 3.6 G-I, Figure 3.7H and Figure 3.8B). When these fractures crosscut a biotite, they are responsible for ferromagnesian chlorite alteration halo visible around graphite flake and pervasive through the cleavage of the biotite (acting as micro-fractures for fluids), leading to a complete pseudomorphosis of the primary mineral (Figure 3.6I).

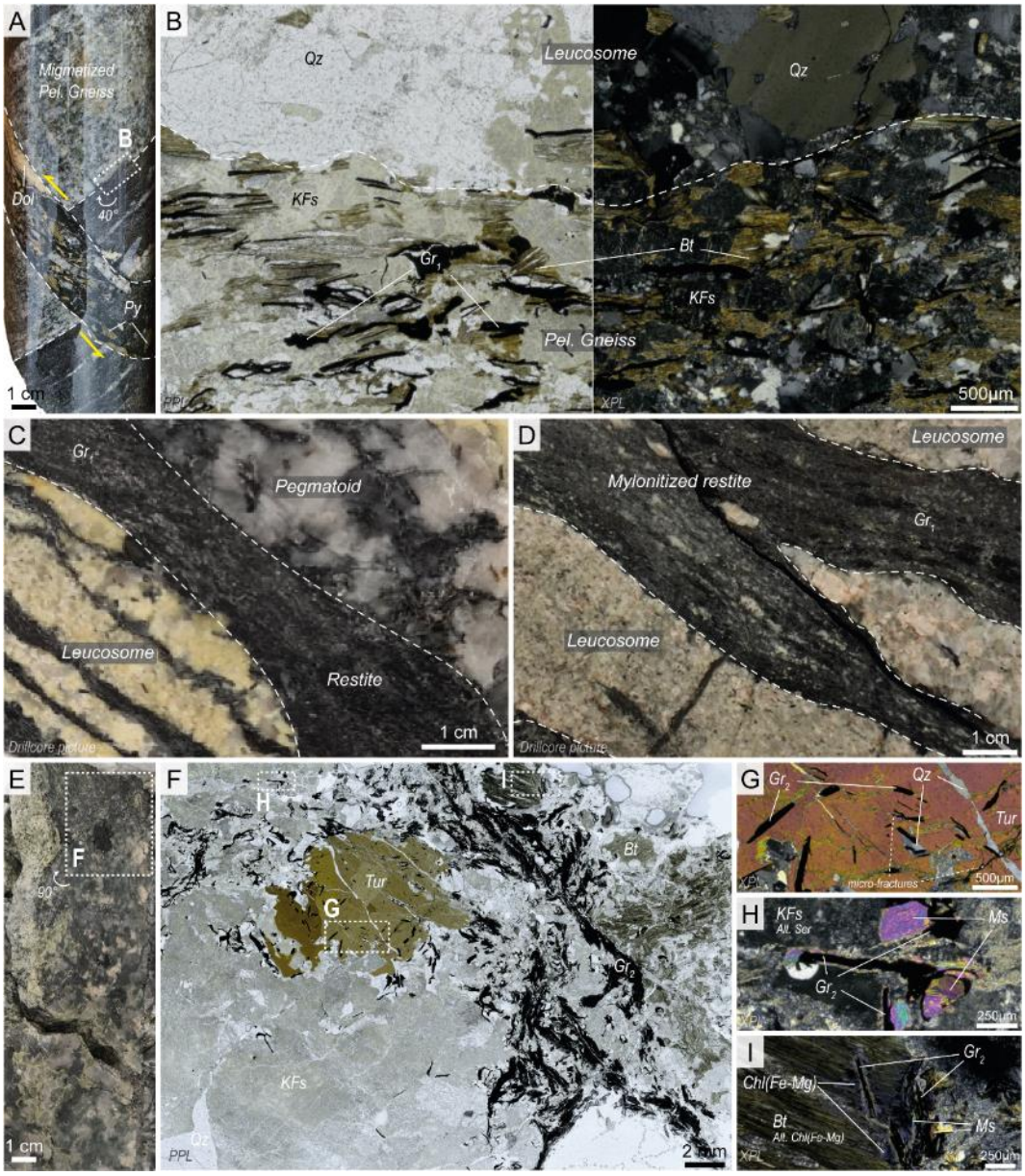


Figure 3.6 : Graphite-rich lithologies from shear zones of the McClean South and Waterfound exploration projects (Saskatchewan, Canada). A-B: graphitic pelitic gneiss with few migmatization [MCS-05_256.3]. A) Pelitic gneiss with well-marked foliation crosscut by a fault (yellow arrows) rich in dolomite (Dol) and pyrite (Py), creating an offset. B) Quartz (Qz), K-Feldspar (KFs), biotite (Bt) and thick metamorphic graphite flakes (Gr_1) are oriented along the S1 foliation. C-D: migmatite samples with segregation of leucosomes and graphitic (Gr_1) restites [MCS-44_220.2] and

[MCS-03_253]. E-I: pegmatite affected by K-rich hydrothermal alteration controlling precipitation of graphite (Gr_2) [MCS-34_273.7]. G: tourmaline crosscut by fractures filled by recrystallized quartz (Qz) and graphite (Gr_2). H: fractures filled by graphite (Gr_2) and muscovite (Ms). The initial mineralogy is partly to fully replaced by sericite alteration (Ser). I) Graphite (Gr_2) in fracture crosscutting primary metamorphic biotite. The edge of the fracture is marked by an alteration halo of ferromagnesian chlorite (Chl(Fe-Mg)) developed at the expense of the biotite.

3.3.2 Types of structures in graphite-rich intervals at Waterfound and McClean South and related distribution of graphite

Ductile and brittle structures are observed at MCS and WF with main orientation consistent with the regional foliation regardless of the nature of the structures (Appendice 1). In this study, ductile deformation comprises mylonitization and ductile shearing in faults, and do not include inherited foliation and folding. The proportion of ductile vs. brittle structures is different between both zones. In WF, 15% of the basement is mylonitized, 11% consists of cataclasites and 2% of gouges and incohesive fault breccias. In MCS, only 1% of the basement is mylonitized, only 3% consists of cataclasites and 1% of gouges and incohesive fault breccias (Table 3.1). Structures are therefore much more expressed in WF compared to MCS. They are mainly localized at lithological interfaces and/or superimposing on pre-existing ones.

3.3.2.1 Ductile deformation

The ductile deformation rock series consists of (i) pluri-decacentimetric to metric protomylonites characterized by stretched clasts of quartz and feldspars, (ii) decacentimetric intervals of mylonites, and (iii) few millimetres to few centimetres thick intervals of ultramylonites. The protomylonites form therefore the main rock fraction within the ductile structures while mylonites and ultramylonites show lesser proportions and variable extent within drillholes (Figure 3.4 and Figure 3.5). They concentrate graphite in millimetric planes spaced a few millimetres to centimetres apart throughout the graphitic mylonite.

Ductile deformation features are highly heterogeneous between MCS and WF. In WF, most of metasedimentary units exhibit a strong mylonitic deformation which is part of the inherited S1 foliation of metasediments. In MCS, mylonites often exhibit augen textures and are found in close association with brittle fault rocks. In both sites, mylonites are primarily localized in pelitic gneisses and in restites of migmatites. The deformed units within mylonites consist mostly of anatectic

granitoids and pegmatoids or deformed leucosomes. Cordierite and garnet porphyroblasts are elongated, quartz and sericitized K-feldspars exhibit S-C fabrics and are delineated by graphitic (with pyrite and muscovite) shear-bands (Figure 3.7A). These planes are very common both in fault-rocks from MCS and WF. Quartz that are dynamically recrystallized with grain boundary migration (Figure 3.7C) may indicate temperatures of deformation >500°C (Passchier and Trouw, 2005; Stipp et al., 2002).

3.3.2.2 Brittle deformation

In both sites, brittle structures consist of anastomosed fault planes and damaged zones that reworked the mylonitic fabric. The damage zones are characterized by multiple sliding surfaces that form interconnected nested clusters within a cataclasite interval (Figure 3.3 and Figure 3.7A). Around 80% of cataclasites are located at a rheological contrast (Table 3.1) induced by (i) a lithological contact (e.g., pegmatoid and paragneiss contact), or (ii) the presence of a former fault-rock containing graphite-rich shear plans. The finest-grained ultracataclasite intervals (mm scale) intersect coarser-grained intervals of cohesive cataclasite (dm scale), which in turn cross-cut thick protocataclasite layers (metric scale). Locally, we can observe centimetric to decametric incohesive clay-rich fault gouge (Figure 3.4).

In both MCS and WF, brittle deformation is mainly characterized by shear bands, plastically deformed quartz, and angular clasts of feldspar within a matrix of finely crushed quartz, phyllosilicate, chlorite, graphite and pyrite (Figure 3.7 E-H). In WF, cohesive cataclasites often exhibit a foliation trend marked by micas and sheared quartz. Pressure-solutions features (i.e., stylolites) are additionally developing in close association with core zones, along the main shear plans. Most of them are rich in graphite and other insoluble minerals such as Ti oxides and some of them are associated with perpendicular veins of drusy quartz growing from their surfaces (Figure 3.8 E-F).

In the proximal damage zones from the fault cores, brittle fractures and stylolites are filled with retrograde hydrothermal alteration minerals including graphite flakes, muscovites and ferromagnesian chlorites. In these fractures, hydrothermal graphite precipitates as large flakes (up to 0.5cm, Figure 3.6 E-I) with euhedral muscovite (up to 300µm, Figure 3.6H) or as thin graphite and muscovite flakes interstratified (Figure 3.8B).

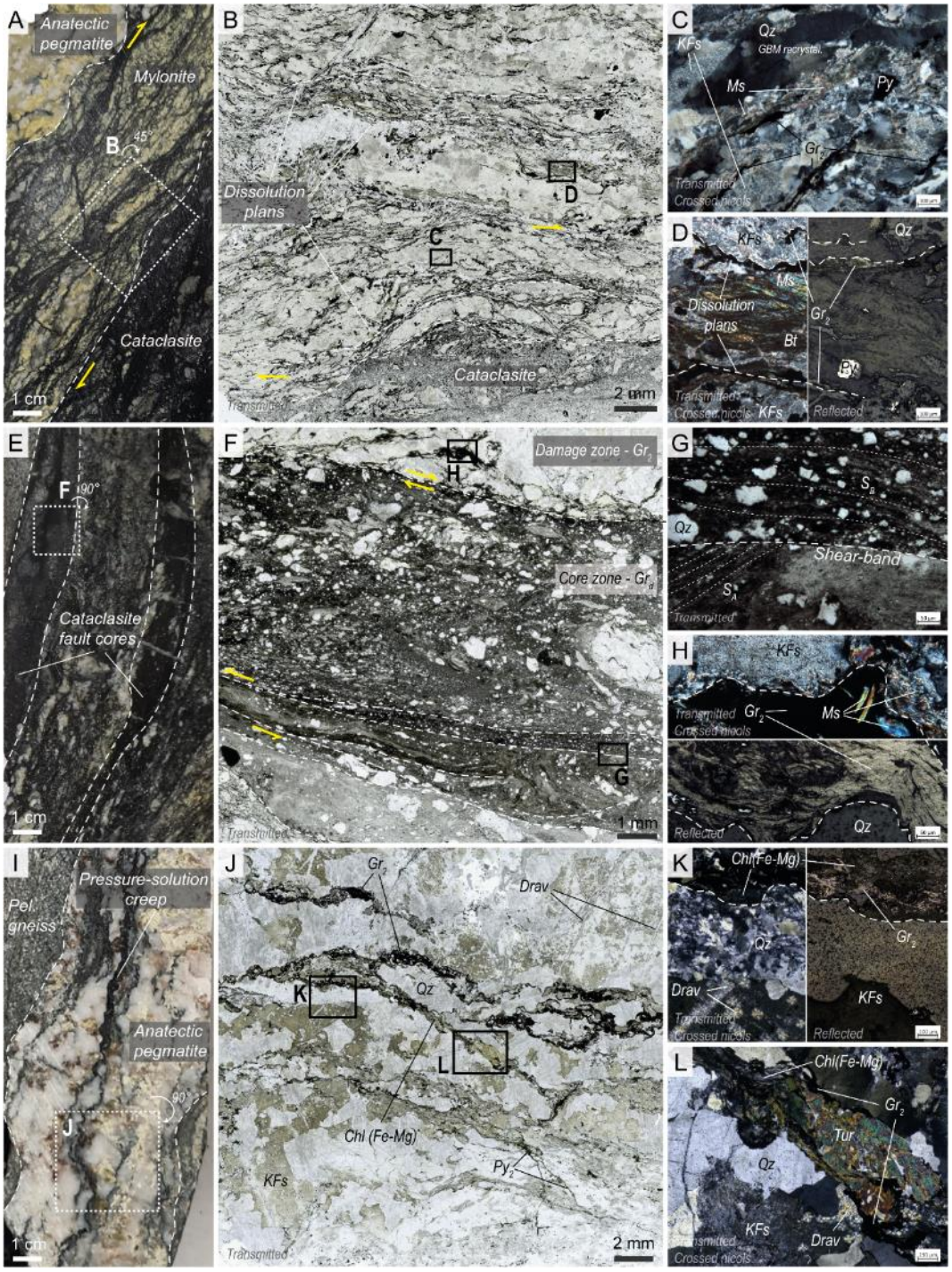


Figure 3.7 : Different fault rocks representative of the pre-Athabasca deformation regimes from the McClean South and Waterfound exploration projects (Saskatchewan, Canada). A-D: protomylonite developed in an anatectic zone. In the top left corner, a graphite-rich anatectic granite is preserved from ductile deformation. Quartz and altered feldspars showing S-C fabrics mark the deformation zone. In the protomylonite, the clasts of anatectic granite are separated by graphitic shear-bands (highlighted with the presence of yellow arrows) [MCS-35C_228A]. C: Zoom in crossed nicols (XPL): the shear-bands contain graphite (Gr_2) and muscovite (Ms), with minor pyrite (Py). K-Feldspars are sericitized (KFs Alt.) and quartz (Qz) are fully recrystallized with grain boundary migration (GBM). D: Retrograde mineral

paragenesis with co-existence of muscovite, pyrite and graphite (Gr_2). E-H: Cataclasite developed in a pelitic graphitic gneiss [MCS-44_231.6]. E: Drill-core picture of a semi-brittle fault-rock. The ductile heritage is still present with foliated quartz and feldspars (bottom of the picture). F: Fault core with multiple shear-bands rich in white micas and graphite (yellow arrows). Clasts of quartz (white) are angular in the central part of the picture and foliated in the bottom, witnessing the recording of several ductile to brittle deformation events superimposing on each other and representing the semi-brittle transition. G: Zoom in plane polarized light (PPL) on a shear-band between two cataclastic zones. SA corresponds to the deformation fabric of the first fault-rock and SB is the fabric induced by a second deformation event. Quartz grains are angular indicating that deformation regime occurred below plasticity temperature of the mineral (i.e., 250-300°C). H: graphite (Gr_2) and muscovite precipitation in fractured damage zone of cataclasite fault core. I-L: graphite-rich foliated cataclasite [WF-68-1_501.5]. J: syn-deformation precipitation of graphite (Gr_2) with stylolitic texture. K: graphite (Gr_2) is associated with ferromagnesian chlorite (Chl Fe-Mg). L: Gr_2 with ferromagnesian chlorite (Chl(Fe-Mg)) and altered tourmaline (Tur) into dravite (Drav).

3.3.3 Morphologies and structural and paragenetic distribution of graphite

Three categories of graphite are present: (i) graphite Gr_1 in the graphitic metasediments and concentrated within restitic intervals depending on the percentage of melt fraction, (ii) graphite Gr_2 in faults and fractures network within the late ductile and the brittle deformation zones and (iii) disordered graphite (Gr_d) in late brittle structures and stylolites. Depending on their host-rock, these graphites exhibit different morphologies.

Gr_1 show high reflectivity and occur as thin to medium-sized euhedral and tabular flakes (Figure 3.8A). These flakes align along the S_1 foliation and are inter-growth with other minerals from the metamorphic assemblage. Gr_2 show high reflectivity and occurs as thin to large flakes filling fractures, co-precipitating with ferromagnesian chlorite and/or muscovite (Figure 3.6 H-I and Figure 3.8 B-C). Gr_2 can exhibit a “filamentous texture" when thin flakes of graphite are interleaved with flakes of muscovites (e.g., Gr_2 + Ms, Figure 3.8B).

When filling fractures or veins affected by brittle deformation near fault cores, hydrothermal graphite shows deformed flakes with local kink bands (Gr_2, Figure 3.8C). Within fault cores or structures indicating intense mechanical activity (e.g., fault rock matrixes and stylolites), graphite becomes "disorganized" (Gr_d). This results in a loss of reflectivity and a disorganized crystalline structure. In the brittle fault cores, this graphite appears very small, anhedral (Gr_d, Figure 3.8D), with highly lustrous grains when observed under reflected light.

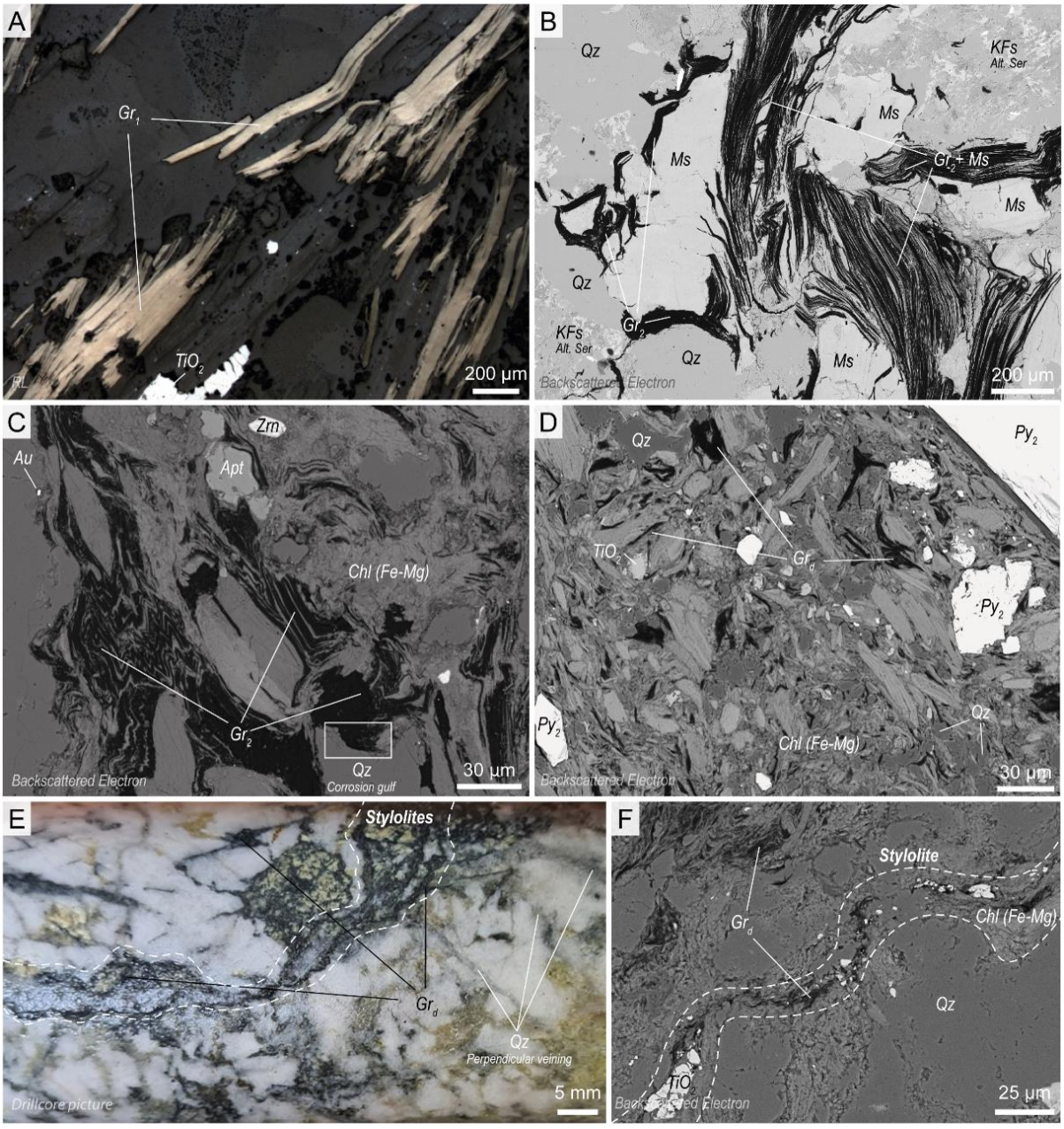


Figure 3.8 : Examples of graphite morphologies in graphitic lithologies and fault rocks, representative of the Wollaston-Mudjatik Transition Zone (WMTZ), from Waterfound and McClean South exploration projects (Saskatchewan, Canada). A: reflective light (RL) image of metamorphic graphite (Gr_1) oriented along the S1 foliation within a graphitic pelitic gneiss [MCS-51A_198.5]. B: backscattered electron (BSE) image of hydrothermal graphite (Gr_2) co-precipitated with muscovite (Ms), exhibiting sub-euhedral (left) and filamentous (bottom right) textures. The latter displays interlaminated thin flakes of co-genetic graphite and muscovite, giving a filamentous aspect of both minerals (Gr_2 + Ms). C: BSE image of fractures filled by hydrothermal graphite (Gr_2) and ferromagnesian chlorite (Chl Fe-Mg) [WF-84_564]. Quartz (Qz) is dissolved and graphite is accumulated (Qz corrosion gulf, bottom). Primary zircons (Zrn) are relicts of peak metamorphism paragenesis. Graphite is associated with apatite (Apt) and small grains of gold (Au) in this sample. D: BSE image of a graphitic cataclasite matrix [WF-82_514.7]. Most of grains are small due to comminution. The matrix is formed by ferromagnesian chlorites which are pseudomorphosed biotites, deformed graphite flakes (Gr_d), sub-euhedral pyrites

(Py2), quartz and titanium oxides (TiO2). E: drill-core photography of graphitic stylolites (centimetre scale) in a fault damage zone [MCS-35C_227.1]. Quartz rims are partially corroded, and graphite (Gr_d) accumulates within stylolites. F) BSE image of a graphitic stylolite (micrometre scale) in a cataclasite. Graphite (Gr_d) accumulates within the pressure-dissolution feature and is associated with ferromagnesian chlorite and titanium oxides [MCS-35C_228].

Within pressure-dissolution features like stylolites, graphite is concentrated and aligned along the dissolution plane, exhibiting low reflectivity and often associating with other insoluble minerals (Gr_d, Figure 3.8 E-F). Graphitic stylolites are observed at various scales in the proximal damage zone of the cataclasite fault cores or within the fault core for mylonites, ranging from several centimetres (Figure 3.8E) to a few micrometres (Figure 3.8F).

A synthesis of all macroscopic and microscopic observations made in MCS and WF is presented in the paragenetic sequence (Figure 3.9), reconciling main petrographic and structural observations and focusing on the different graphite types development.

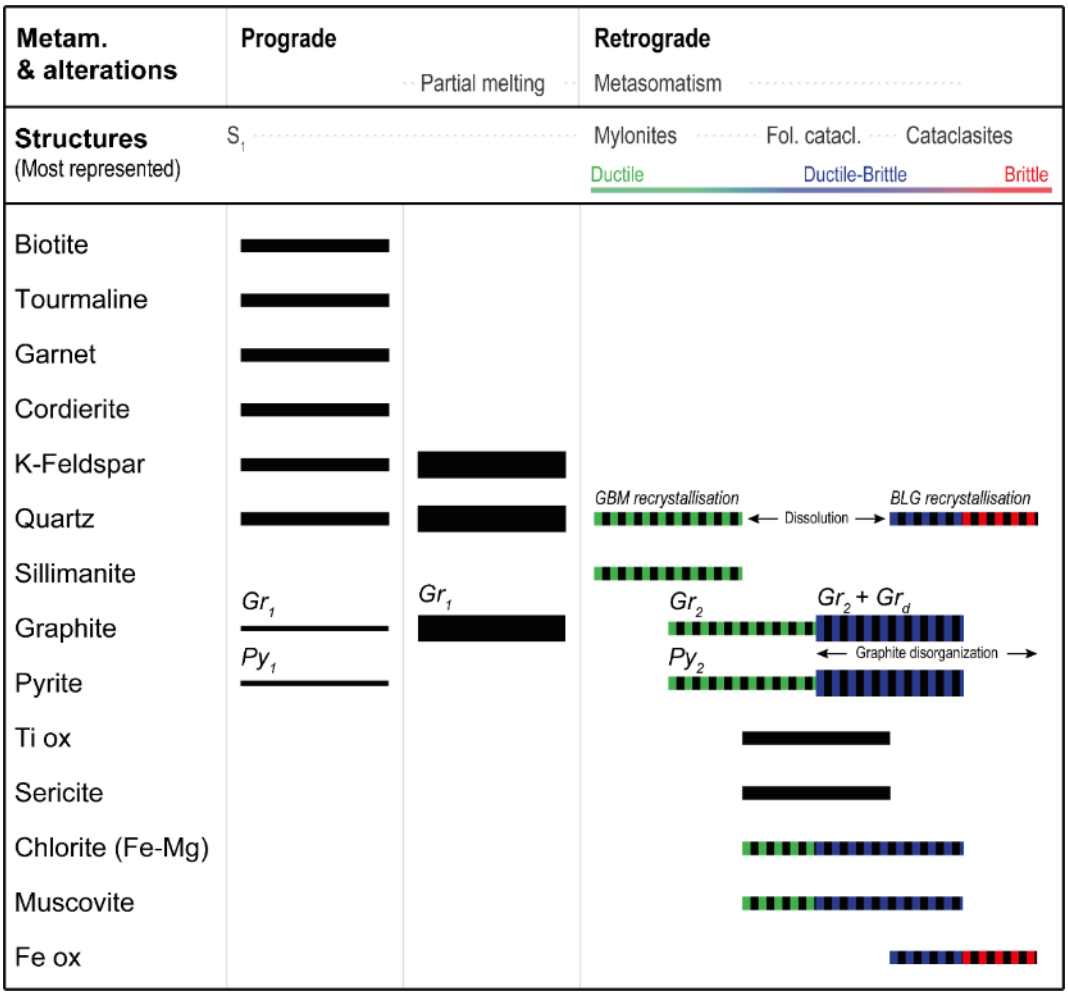


Figure 3.9 : Synthetic paragenetic sequence for graphite-rich shear zones before Athabasca Basin deposition at Waterfound and McClean South exploration projects, based on field and laboratory petrographic and structural observations. The thickness of the lines is relative to the amount of mineral phase formed at each considered stage. Green is used to represent ductile deformation occurring in the retrograde metamorphism, blue for ductile-brittle transition deformation, red for pure brittle deformation. Gr_1= metamorphic graphite, Gr_2= hydrothermal graphite, Gr_d= disorganized graphite, Py1= Metamorphic pyrite, Py2= hydrothermal pyrite.

3.3.4 Graphite crystallinity and temperatures estimation

The graphitic samples were grouped by graphite types (i.e., Gr_1, Gr_2 and Gr_d). The graphite types do not present any difference in crystallinity between MCS and WF. The Raman spectra of metamorphic graphite (Gr_1) in metasediments and hydrothermal graphite (Gr_2) have a very low intensity ratio (I.R.) with D-band often absent which means high crystallinity. The I.R. values range

from 0 to 0.86 with an average value of 0.11. The carbonaceous materials in basement fault-rocks as well as in stylolites (Gr_d) shows higher and much more dispersed intensity ratios. The values range from 0 to 1.56 with an average value of 0.30.

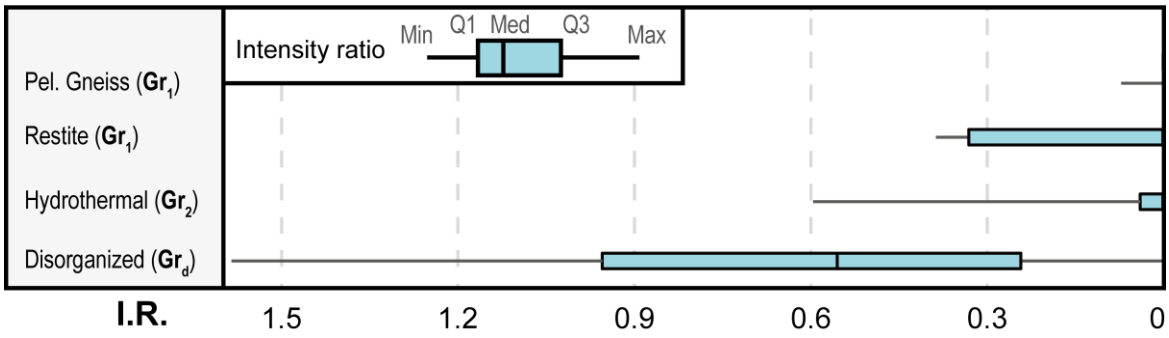


Figure 3.10 : Intensity ratio (I.R.) measured by Raman spectroscopy for Gr_1 (metamorphic graphite), Gr_2 (Hydrothermal graphite) and Gr_d (disorganized graphite) from graphite-rich lithologies and structures of McClean South (MCS) and Waterfound (WF) exploration projects. The results for MCS and WF are grouped together because no variations were found between them. Gr_1 and Gr_2 have low I.R. values. Gr_d in fault rocks from brittle deformation (i.e., cataclasites series) display a large range of I.R. values. The boxplots, from left to right, show minimum value, first quartile, median value, third quartile and maximum values.

The estimation of a graphite crystallization temperature is directly feasible from its crystallinity, except for fault rocks, where crystallinity of graphite is reduced by mechanical deformation caused by faulting (Kouketsu et al., 2019; Moris-Muttoni et al., 2022). The previous studies on regional metamorphism of THO show that the rocks have been metamorphosed near or above the peak temperatures for which Raman based thermometers is applicable (Rantitsch and Linner, 2021 and references therein). No temperature estimates from Raman data were thus calculated for the different graphites defined in this study.

3.4 Discussion

3.4.1 Variabilities of graphite types and morphologies in the Paleoproterozoic graphite-rich shear zones of the WMTZ

The two graphite-rich shear zones of the WMTZ studied here contain graphite of different types with different contents and spatial distributions. These variabilities for graphite were controlled by a long-living history of these structures shown by Re-Os dating (Toma et al., 2024) within the evolution of the WMTZ during the THO, from the earliest prograde metamorphic stages (ca. 1860 Ma) to the latest retrograde stages of exhumation (ca. 1720 Ma). This mobility within crustal scale shear zones was directly linked to the architecture of the shear zone and therefore by its local metamorphic, magmatic and tectonic evolution within a global orogenic cycle.

The graphite is initially of metamorphic origin (Gr_1), formed during the prograde metamorphism of the THO at ca. 1860-1820 Ma and becoming fully crystalline over 650°C (Figure 3.11; Beyssac et al., 2002), from the transformation of C-rich organic matter deposited during the Lomagundi-Jatuli and Shunga events within the Paleoproterozoic sediments (Strauss et al., 2013; Prave et al., 2021). This first process led to the formation of graphite-bearing metasediments with relatively low but constant total C content (1-3%). During partial melting or melt injection between 1820 and 1780 Ma, Gr_1 is partly accumulated within restites in migmatized areas to form graphite-enriched intervals enriched up to grade 2 (5-15 wt.% C). This regional event occurs with temperatures estimated between 700°C and 850°C and pressures between 6 and 9 kbar (Jeanneret et al., 2016).

Isotopic data suggests that metamorphic graphite Gr_1 is considered as the main carbon source for subsequent precipitation of hydrothermal graphite (Gr_2) in ductile to brittle structures of the shear zones and related damage zones during retrograde metamorphism at ca. 1805-1720 Ma (Figure 3.11; Martz et al., 2017). This precipitation occurred in upper crustal levels compared to production zone of C-rich fluids from destabilization of Gr_1, resulting enrichment of graphite is between grade 2 and 3 (5 to 25 wt.% C). Gr_1 and Gr_2 are later remobilized and mechanically reworked as disorganized graphite (Gr_d) within brittle structures, enriched up to graphite grade 4 (>25 wt.%). The brittle structures mainly represented by cataclasites are formed under brittle regime at temperature <250°C (Lin, 1999), likely formed during the last episode of retrograde metamorphism. The presence of several types and morphologies of graphite within the graphite-

rich shear zones of the WMTZ has been previously described or observed (Card, 2021; Martz et al., 2017; Pascal et al., 2016; Song et al., 2022; Young et al., 2023). The present study provides new data about graphite budget in this context coupled to the understanding of the nature and origin of these different graphite types and their mineralogical, crystallographic and morphological characterization. We propose below mechanisms and processes controlling their distribution and compartmentalization within these structures during the geodynamic and tectonic evolutions of THO.

3.4.2 Nature and origin of processes controlling carbon mobility and graphite enrichment in Paleoproterozoic graphite-rich shear zones

3.4.2.1 In-situ concentration of metamorphic graphite caused by melt (Gr_1)

From observations made on both prospects, melt migration during partial melting at peak metamorphism had a major impact on concentrating initial metamorphic graphite (Gr_1) in restitic bodies. This process was extensive at the scale of the studied zones and favoured the formation of dense networks of restites intervals enriched in graphite (grade 2: 5-15 wt.%; Figure 3.6 C-D), following the main orientation of the shear zones (Figure 3.2 and Appendice 1). This process was significantly more active in MCS than in WF and was triggered by the transformation of silicate minerals from the initial carbonaceous pelitic gneiss into new silicate minerals and melt (Annesley et al., 2005; Tran, 2001) while Gr_1 was stable and accumulated (Case et al., 2023).

An analogue case study with semi-massive graphite in restites was studied at the Graphite Creek deposit in Alaska (Case et al., 2023). Similar effects are noted for the restitic bodies at WMTZ, with a key role of the combine effects of mineral segregation and graphite enrichment in restites creating strong rheological contrasts. Strong heterogeneities, accentuated in anatectic paragneiss, favoured strain localization in “weak” lithologies and the preferential development of shear zones at main lithological contacts. These rheological contrasts localized subsequent fault activations and reactivations in ductile and brittle conditions during the exhumation of the THO. They controlled intense fault-driven hydrothermal activity, leading to the precipitation of hydrothermal graphite (Gr_2) in the shear zones and related damage zones, as outlined in the scenario presented below.

3.4.2.2 Deep CO_2 generation by oxidation of graphitic metasediments

Card (2012); Martz et al. (2017) and Pascal et al. (2016) proposed that in eastern Athabasca, the graphite observed in fault cores derived from the graphitic shear zones of WMTZ is mostly fluid-deposited and has a hydrothermal origin. Our study on MCS and WF prospects shows that the content of hydrothermal graphite Gr_2 in ductile and brittle structures within shear zones and related damage zones is not homogeneous, with strong decreases of concentration outward from the ductile and brittle fault zones (Figure 3.2, Figure 3.4 and Figure 3.5). We can note that the hydrothermal graphite Gr_2 is more developed in brittle structures in shear zone. Such observation confirms that these structures acted as conduits for C-rich hydrothermal fluids and therefore focused C precipitation as graphite. Gr_2 is indeed concentrated in veins and fractures (Figure 3.6 E-I, Figure 3.7 I-L and Figure 3.8 B-C) independent of the surrounding lithology. Gr2 occurs with a specific paragenetic association marked by minerals of the hydrothermal alteration such as muscovite, Fe-Mg chlorite ± pyrite. The number of Gr_2-bearing veins and fractures increases from the outer to the inner parts of the ductile or brittle fault zones.

Hydrothermal graphite (Gr_2) precipitated from C-rich fluids, in which CO_2 has been found as the main phase (Martz et al., 2017). A possible scenario for explaining part of the origin of CO_2 circulating in graphite-rich shear zones of the WMTZ during the exhumation of the THO implies the crystallization of pegmatitic melts. In highly differentiated magmas, water becomes increasingly concentrated in the residual melt until it reaches saturation, leading to the separation of a water-rich fluid phase (Jahns and Burnham, 1969) which can react with Gr_1 within pelitic gneisses following reaction [1] (Huizenga et Touret, 2012; Martz et al., 2017):

[1] $C + 2H_2O \rightarrow CO_2 + 2H_2$

Partial melting creates favourable conditions for generation of CO_2-rich fluids at high pressure and temperature above the solidus in the lower crust (Figure 3.12). In such conditions, solubility of CO_2 in melts is low (Holloway, 1976) and no carbon-bearing minerals in equilibrium with main phases (i.e., quartz and K-feldspars) precipitate in anatectic granitoids or pegmatoids.

3.4.2.3 Precipitation of hydrothermal graphite during retrograde metamorphism (Gr_2)

$\delta^{13}C$ values for all graphite types in the eastern Athabasca range between -37.52‰ and -13.87‰ with a mean value of -24.69‰ (Kyser et al., 1989; Leventhal et al., 1987; Martz et al.,

2017), overlapping with $\delta^{13}C$ values between -40‰ and -15‰ for Paleoproterozoic organic matter and highly-reflective metamorphic graphite (Luque et al., 2012; Schidlowski, 2001). A mix between a dominant fluid at equilibrium with metamorphic graphite (Gr_1, from biogenic carbon) and a secondary fluid derived from the decarbonation of carbonates, would explain the isotopic values (Martz et al., 2017). Such circulation and ascent of C-rich fluids from partial melting zones to shallower crustal levels is favoured by the network of deep-seated and sub-vertical structures considered for the WMTZ (Card et al., 2021; Ledru et al., 2023).

Precipitation of hydrothermal graphite (Gr_2) in the WMTZ can occur according three scenarios: (i) with the infiltration of externally derived CO_2 into relatively reducing environments (Huizenga and Touret, 2012; Lamb and Valley, 1984), (ii) with the cooling of a C-O-H fluid saturated in carbon (Cesare, 1995; Huizenga, 2011) and (iii) with carbon saturation through consumption of H_2O in a C-O-H fluid. It is favoured by the interaction between the fluid and the reducing environment, like graphite- and pyrite-bearing metasediments of the Wollaston Group (Craw, 2002). In similar conditions, Stevens, 1997 estimated that carbon saturation is reached at 620°C with a host-rock having a minimum of 3.3 wt.% graphite. The co-presence of graphite and pyrite in the metapelites of the Wollaston Group probably enhanced the reducing conditions for the reduction of high-temperature C-O-H fluids and related precipitation of Gr_2 through the structural network (Huizenga and Touret, 2012; Kribek et al., 2015). The C-oversaturated fluid changes from a composition of 100% CO_2 to a composition of $CO_2 + CH_4$ during isobaric cooling and precipitates according to the reaction [2] (Huizenga, 2011; Martz et al., 2017):

[2] $CO_2 + CH_4 \rightarrow 2C + 2H_2O$

Hu et al., 2017 proposed that co-precipitation of graphite and pyrite occurs in several orogenic-type Paleoproterozoic gold deposits (Kribek et al., 2015) according to [3]:

[3] $2FeO\ (silicates) + 4H_2S + CO_2 = 2FeS_2\ (Pyrite) + C\ (graphite) + 4H_2O$

This equation [3] is supported for graphitic shear zones of the WMTZ by the significant portion of hydrothermal pyrite co-precipitating with graphite within ductile and ductile-brittle graphitic fault zones (Figure 3.7C; Figure 3.8D; Figure 3.9). Gold is often observed in cataclasites from WMTZ (Figure 3.8C), supporting the mechanisms proposed by Hu et al. (2017) where gold, pyrite and carbonaceous materials co-precipitate. Card (2012) describes pseudomorphosed biotites into graphite within altered graphitic migmatites, which could be formed following the equation [3] with the release of Fe (II) from biotites. No evidence allows to indicate that one of the

two mechanisms of graphite precipitation indicated above was dominant for the two studied shear zones. The presence of co-genetic muscovite, ferromagnesian chlorite and graphite (Figure 3.6 H-I, Figure 3.7 H-L, Figure 3.8 B-C and Figure 3.9) is explained by the cooling of C-O-H fluids when ascending in the shear zones, causing the hydrothermal deposition of graphite (Gr_2) and the precipitation of associated minerals using H_2O released by graphite precipitation [2,3]. Gr_2 is a highly crystalline graphite (I.R. < 0.1; Figure 3.10). Fluid-deposited graphite is at equilibrium and can precipitate from a C-O-H high-temperature fluid only between 430°C and 600°C (Huizenga, 2011; Martz et al., 2017). Observed dynamic recrystallization (i.e., GBM in Figure 3.7C) of quartz clasts in ductile and brittle graphitic fault rocks suggest temperatures of deformation below 450°C (Passchier and Trouw, 2005). Oohashi et al. (2012) identified similar mechanisms in an active graphitic fault-zone in Japan (Atotsugawa fault-system, part of the larger Niigata-Kobe tectonic zone), involving precipitation of hydrothermal graphite and illite in veins. In this case, the precipitation of hydrothermal graphite and illite involves the cooling of a C-O-H fluid with the initial precipitation of graphite according to reaction [2], followed by illite precipitation at lower temperatures while the fluid is cooling.

The massive circulation of C-O-H hydrothermal fluids within the shear zones of WMTZ during retrograde metamorphism linked to the exhumation of the THO favoured a pervasive hydrothermal alteration within ductile and brittle fault zones in the form of a hydrothermal halo enriched in graphite Gr_2. At the scale of the whole WMTZ, the consequence of this fluids-rock interaction is a change of the host-rock mineralogy, chemistry and petrophysics properties around shear zones. sericite, ferromagnesian chlorite and rutile, and significant quantities of Gr_2 (± muscovite and pyrite) precipitate. In Greenland, Paleoproterozoic graphitic shear zones formed during Nagssugtoqidian orogeny at ca. 1.9 Ga exhibit the same characteristics. Rosing-Schow et al. (2017) and Stüeken et al. (2023) shown that hydrothermal graphite in this geological context is spatially controlled by the shear zone and precipitated during the global hydrothermalism in retrograde metamorphism conditions. This hydrothermal graphite is found in veins in both metasediments and magmatic lithologies and the carbon has an organic origin.

A superposition of processus involving melt and precipitation from hydrothermal fluids control the features and high-grade graphite enrichments observed in the graphite-rich shear zones of the WMTZ during shear zone P-T evolution. The presence of graphite in restites (Gr_1) and within fractures in leucosomes and pegmatoids (Gr_2) highlights the mobility of carbon during and after the partial melting of metasediments. Both mechanisms can occur simultaneously

depending on the depth considered (Figure 3.12): partial melting or melt injection of lower to middle crust and hydrothermal graphite precipitation (Gr_2) within fault zones reaching shallower depths (up to 5-10 km).

3.4.3 Evolution of deformational conditions for shear zones and their role on graphite localization and crystallinity

Partitioned crustal strike-slip faulting accommodated relief during the exhumation of THO (Card et al., 2021; Ledru et al., 2023) at ca. 1805 Ma (Annesley et al., 2005). These deep-seated structures underwent different deformation regimes during the exhumation, transitioning from ductile to brittle deformation depending on their crustal levels, retrograde P-T pathway and exhumation rate. These changes and related effects had a major control on carbon mobility, on graphite location and properties.

3.4.3.1 Mylonitization

Ductile deformation occurred from earliest deformation stages of THO during prograde metamorphism. Associated non-graphitic mylonites are prevalent in WF (Table 3.1, Figure 3.5), as well as inherited S1 foliation in metasediments of both prospects (Figure 3.11A). This structural study focuses on exhumation stages where a broad structural corridor of graphite-rich mylonitic shear zones formed in the WMTZ (Figure 3.1B) at around 600°C and 2-3 kbar (Figure 3.11C). They developed during the D2 sinistral transpression deformation event (Jeanneret et al., 2017). Syn-deformation fluid flow is marked by dissolution features parallel to deformation on fault slip surfaces (Figure 3.7 A-B), which actively facilitate fault movement. Graphite (Gr_2) in mylonites is mainly found in association with muscovite within mylonitic fabric (Figure 3.7 C-D) but is more concentrated in cataclasites (Table 3.1, >15% graphite in structures), indicating that C-O-H fluids circulation was more important in the brittle deformation domain (Figure 3.11 C-D).

3.4.3.2 Brittle deformation

Cataclasites can reach graphite grade 4 (i.e., >25 wt.%), constituting the most graphite-rich structures of the WMTZ, which can be explained by (i) massive circulations of C-O-H fluids enhanced by high permeability of this zone and abundant precipitation of Gr_2, (ii) mechanical

remobilization and concentration of graphite (i.e., Gr_1 and/or Gr_2) from local environment hosting the faults into Gr_d. Before the main cataclasis event, a significant dissolution event occurred and is characterized by pressure-solution creep features along the deformation fabric (Figure 3.7 A-B; Figure 3.7 I-J). Under the fault activation and stress field, grains size is reduced by comminution (Sibson, 1977) and blocks undergo rolling in the proximal damage zone. Crushing and fracturing occur to accommodate locally induced stresses resulting from volume modification. Stylolites formed on surface of rolled clasts and blocks when they are large or numerous (Gratier et al., 2013). Two phases of stylolitization may occur synchronously: (i) accumulation of graphitic stylolites (Gr_d) by pressure-solution creep in a ductile to brittle transitional regime (Figure 3.7 A-B), localizing later fault slips associated with the formation of brittle structures and (ii) block rotation within brittle structures associated with formation of graphitic stylolites (Gr_d) by volume accommodation (Figure 3.8 E-F). Quartz perpendicular veins are associated to the volume re-generated (Figure 3.8E), but this latter is less important than the total amount dissolved (Gratier et al., 2013). Graphite-rich stylolitic planes and graphitic shear-bands (Gr_d) in fault zones constitute planes of weakness for subsequent fault activations or reactivations and at a broader scale, graphite-rich restites (Gr_1) or graphite-rich fault rock interval (Gr_d) strongly localize the majority of the subsequent deformation due to graphite functioning as a lubricant for fault slip (Martz et al., 2017; Oohashi et al., 2012, 2013).

Although the width of fault damage zones in the WMTZ is difficult to estimate due to the lack of exposed shear zones (structural information only available in drill cores), they are often correlated to the thicknesses of fault cores. In MCS and WF, fault cores range from tens of centimetres to 1 meter in thickness. Hence, depending on the protolith, damage zones bearing Gr_2 can be thicker than fault cores by 1 to 3 orders of magnitude (Fossen, 2016). Notably, the highest density of fractures occurs within the first few meters around the fault core (Mitchell and Faulkner, 2009). Such a fracture network within the proximal damage zone surrounding the fault core facilitates in that area a higher degree of fluid circulation (Lockner et al., 2009) and precipitation of graphite.

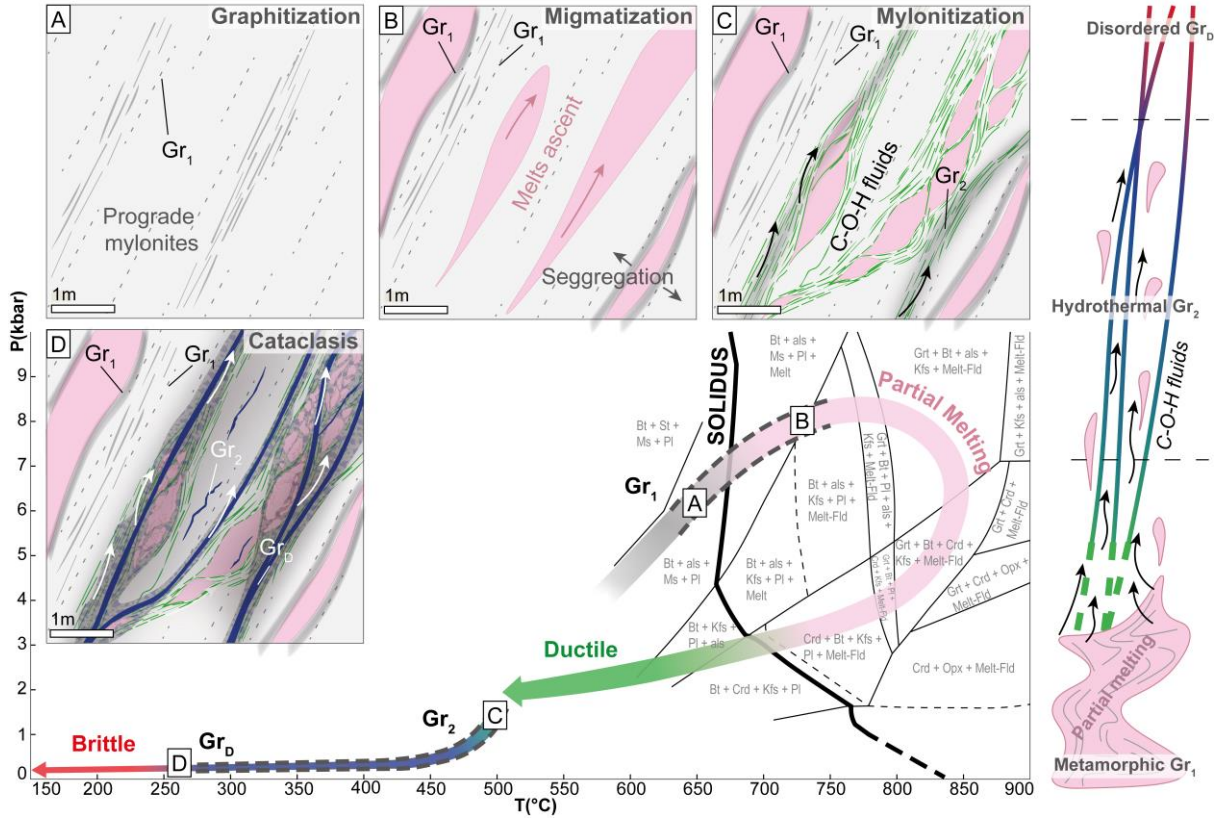


Figure 3.11 : Estimated P-T pathway during the evolution of the Trans-Hudson Orogeny (THO, based on mineralogical assemblage, modified from Annesley et al., 2005; Jeanneret et al., 2017; Martz et al., 2017), schematic sketches of the fault zone evolution during retrograde pathway (A-D) and schematic cross-section of partial melting connected to deep-seated structures in the crust (right). Suprasolidus pseudosection in the system NCKFMASHTOC (+ Fld + Ilm + Q + Gr) is modified after Chu and Ague, 2013 with calculations for graphitic metapelites in presence of CO_2. The thick-black curve presents the solidus and the dashed curves denote fluid-saturation boundaries. Gr_1= Metamorphic graphite; Gr_2= Hydrothermal graphite; Gr_d= disorganized graphite. Grt= garnet; Q= quartz; Bt= biotite; Crd= cordierite; Pl= plagioclase; St= staurolite; als= alumino silicate; Ilm= ilmenite; Kfs= K-feldspar; Fld= C-O-H fluid; Ms= muscovite; Opx= orthopyroxene; Melt= silica melt. The chronology of events follows the coloured arrow in P-T diagram. A: the prograde metamorphism of C-rich Paleoproterozoic sediments favoured development of metamorphic graphite (Gr_1) from the graphitization of organic matter (thick grey hashed line), until complete graphitization above 650°C. B: partial melting (pink) started before peak metamorphic conditions. Melts segregation from metasedimentary protholith lead to formation of restitic intervals enriched in graphite (Gr_1). C-D: the exhumation stage is associated to retrograde metamorphism, development of ductile (mylonite, green) to ductile-brittle (blue) and brittle (red) structures of deformation, and precipitation of hydrothermal graphite (Gr_2) from C-O-H fluids within the fractured network. With the progression of exhumation, deformation regime evolves from ductile (green) to ductile-brittle (blue) creating an anastomosing cataclasite network superimposing over mylonitic fabric, in which Gr_2 precipitates and is mechanically remobilized within fault cores into disorganized graphite (Gr_d). Partial melting and ductile to brittle deformations can occur at the same time (right cross-section).

3.4.4 Enhancing understanding of graphite-rich shear zones: insights from this comparative study

Graphitic shear zones have formed since the Paleoproterozoic at worldwide scale (Parnell and Brolly, 2021) and record successive deformation events, spanning from several hundred million years in THO. These shear zones also contain markers of different fluid circulation episodes, sometimes associated with abundant hydrothermal graphite mineralization such as the Tasiilaq area deposits in Greenland (Rosing-Schow et al., 2017) or the Alpine Fault Zone in New-Zealand (Kirilova et al., 2018). As demonstrated in the present study, graphitic shear zones of the WMTZ are complex, polyphased metamorphic, magmatic, and tectonic features. The comparison between MCS and WF allows a first understanding of the influence of the different considered parameters on the development of the graphitic shear zones, as presented in Figure 3.13.

MCS sheared rocks are characterized by high degree of partial melting responsible for enhancing strain localization during basement exhumation: more than 70% of cataclasites are located at rheological contrasts (Table 3.1) mostly created by lithological contacts within the whole migmatitic complex. Deformation (including fault-slip planes) occurred within “weak” lithological unit corresponding to biotite + graphite-rich restite intervals. As evidenced by the wide extent of metasomatic alteration halo observed in MCS (Figure 3.13), a high degree of partial melting in graphitic metasediments (Gr_1) at depth enables the production of a larger volume of C-rich fluids. This may be explained by the increased amount of oxidized metamorphic graphite (Gr_1) through reaction [2]. At WF, partial melting is apparently less important, alteration halos are less developed and brittle faults locate for the most part at rheological interfaces created by the presence of a former mylonite, such as in the drillhole WF-82 (Figure 3.5; 510m to 525m).

Cohesive cataclasites sealed by silicification in brittle deformation stages are for large part preserved and are interpreted as not reactivated after basin deposition, thereby preserving their early geochemical signatures. Their permeability is notably lower than that of reactivated and fractured cataclasites (Evans et al., 1997; Fossen, 2016; Scibek and Annesley, 2021). They show features indicating circulations of considerable volume of fluids during tectonic events, like neo-formed pyrites along shear plans (Figure 3.8D) and a substantial amount of Gr_2 + muscovite (Figure 3.6 H-I, Figure 3.7H, Figure 3.8B). The thickness of cohesive cataclasites appears to be correlated with the grade of Gr_d and pyrite within fault cores. Comparing WF and MCS, wide fault cores contain a greater quantity of Gr_d and pyrite, and on a larger volume.

Damage zones of brittle fault zones guide circulations of C-O-H fluids and precipitation of Gr_2 through their fracture network. The lithological composition of fault zone protolith and its number of related rheological contrasts control at first order the available volume for circulation of hydrothermal fluids, consequently controlling the size of the graphite-rich alteration halo and thus the global quantity and distribution of graphite. Therefore, preferential corridors for C-O-H fluids and subsequent precipitation of hydrothermal graphite (Gr_2) are localized in brittle fault damage zones, between sealed silicified fault cores. In-situ silicification of cataclasites, which accounts for their low permeability, is primarily explained by [5] where SiO2 is released from the reaction of syn-deformation sericitization. Single and thick fault cores (Figure 3.13 - WF) exhibit a very close-centered damage zone and associated alteration halo, while multiple and thinner fault cores (Figure 3.13 - MCS) result in larger damage zones and increased permeability (Lockner et al., 2009). Additionally, the greater abundance of anatectic granites and pegmatites intrusions in the host rock of MCS facilitates the development of a more extensive fracture network (i.e., fault damage zone) and enhanced fluid circulation at the difference of the WF case study (Table 3.1, Figure 3.13). In this latter, the propagation of fracture planes is attenuated in the more pelitic parts, the deformation more distributed in the foliation planes containing graphite. Moreover, the overall basement in WF is significantly impacted by sub-vertical mylonitization that may prevent lateral fluid circulation and confining the alteration halo primarily around brittle and brittle faults.

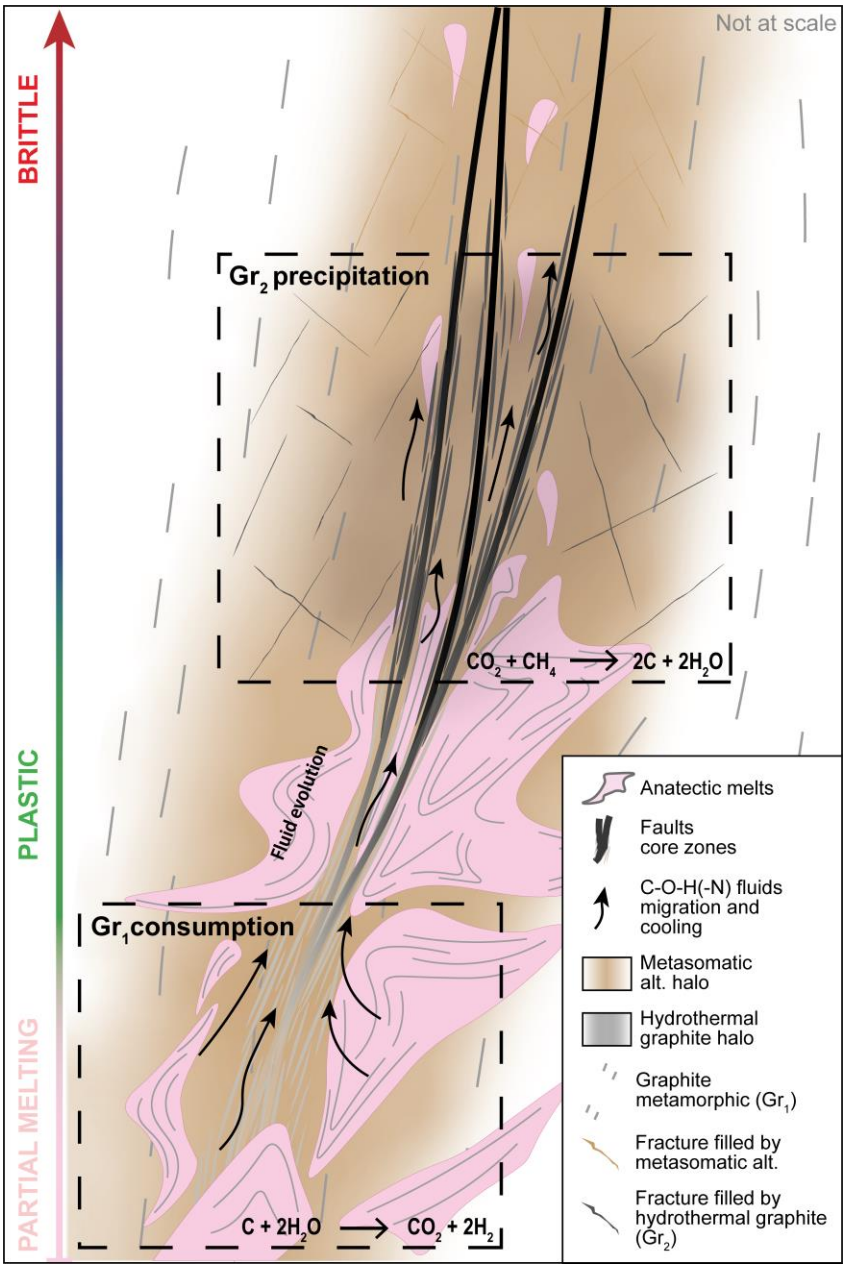


Figure 3.12 : Schematic geological cross-section of a characteristic basement fault-zone from the Wollaston-Mudjatik Transition Zone (WMTZ) with consumption of graphite (Gr_1) at depth linked to partial melting (pink), and graphite (Gr_2) precipitation in the fault core and fault damage zone under ductile (green), transition domain (blue) and brittle (red) deformation regimes. Partial melting derived C-rich fluids circulate through the fault cores (black think lines) and fractured damaged zone (smaller irregular non-oriented lines), and control the emplacement of a metasomatic alteration halo (brown).

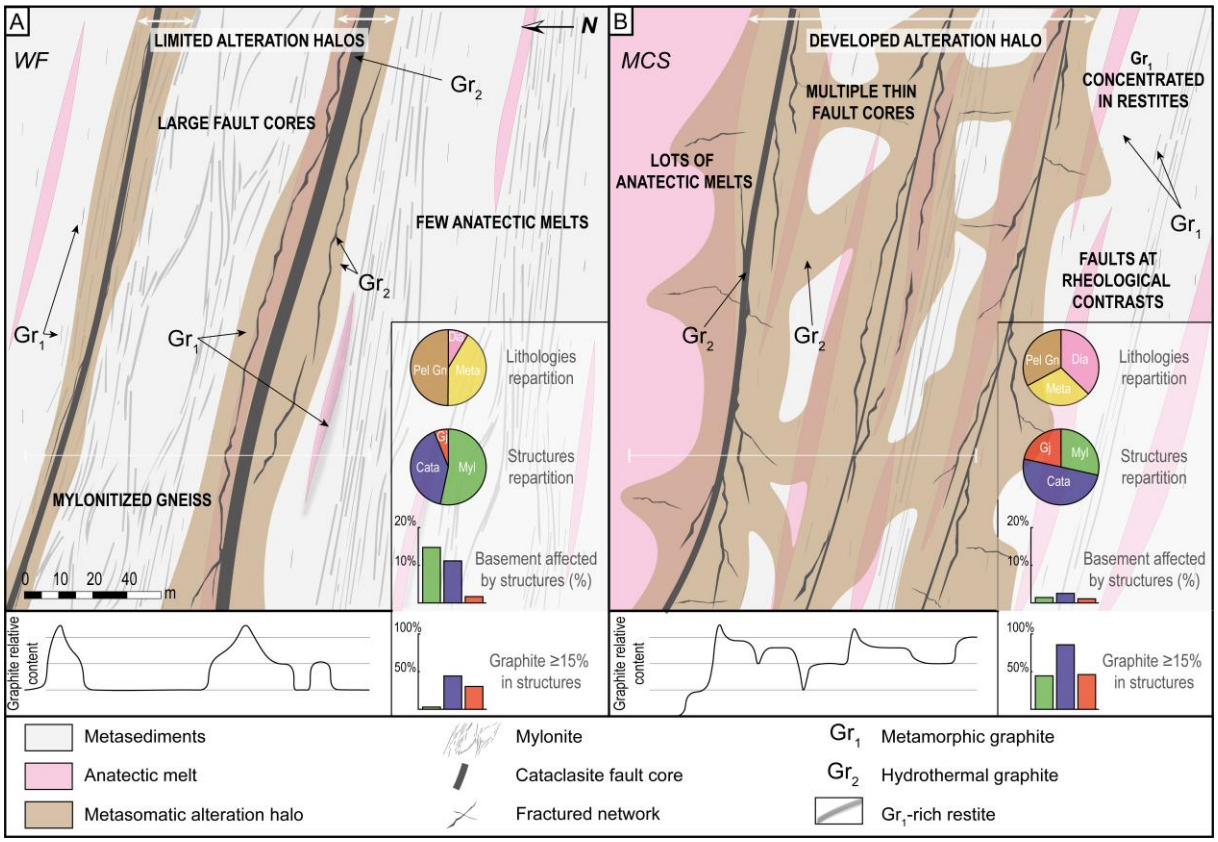


Figure 3.13 : Schematic cross-section of the graphite-rich shear zones at Waterfound (WF, left) and McClean South (MCS, right). The protolith (light grey) is migmatized metasediments in which Gr_1 is aligned within the S1 foliation or concentrated into restites. Metasomatic alteration halo (brown) surrounding fault zones is mainly composed of graphite (Gr_2), pyrite, muscovite and ferromagnesian chlorite. Both graphite types are remobilized and re-concentrated within fault cores (Gr_d). A: WF exhibits lower levels of partial melting (pink intervals), with graphite concentration limited to the ductile and ductile-brittle structures (dark grey). B: MCS displays a higher degree of partial melting, correlating with a larger well-developed metasomatic alteration halo and the presence of numerous thin intervals of brittle deformation structures. Fault development in both areas tend to occur at lithological contacts formed by melts segregation and/or by the presence of a pre-existing deformation structure.

3.5 CONCLUSION

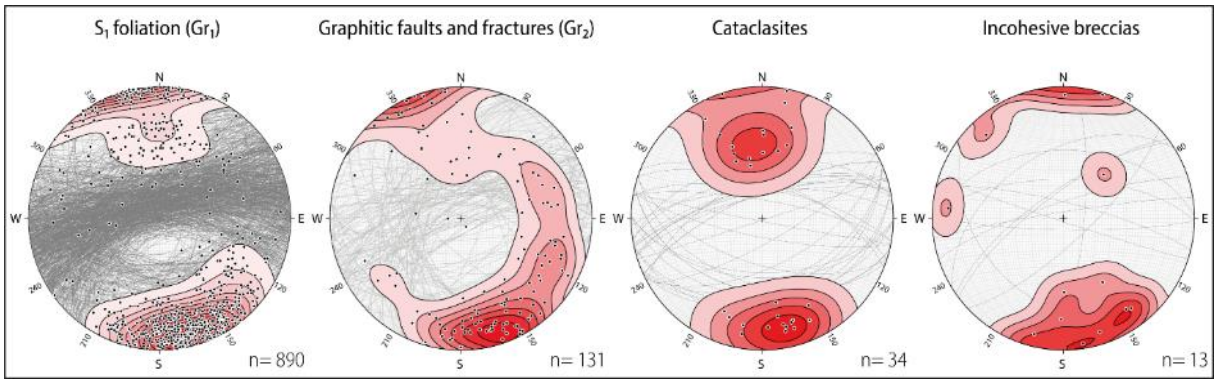
Based on the example of the Paleoproterozoic Trans-Hudson Orogeny, this work demonstrates that graphite-rich shear zones differ for their carbon content, distribution and location. They are characterized by different types of graphite periodically formed over hundreds of millions of years from prograde to late retrograde metamorphic conditions during and orogenic cycle. They are witnesses of a global carbon mobility and enrichment directly linked to (i) the

nature of the rocks involved in these orogenies, specifically organic-rich sediments whose formation was stimulated by great oxygenation event (circa 2.4-2.3 Ga), (ii) the P-T-x conditions reached during the orogenic evolution, (iii) the structural framework marking prograde and retrograde orogenic conditions, (iv) as well as related hydrothermal activities channelized in these shear zones from deep to shallow crustal levels. Our findings are not unique and limited to THO and should be relevant also in other Proterozoic graphite occurrences of similar age and comparable tectono-metamorphic history.

The studied graphite-rich shear zones show strong variations in graphite concentrations directly controlled by the variability of the present lithologies and by the typology, distribution and thicknesses of structures. The differences of metamorphic history, including the quantity of partial melting reached, have a key control on graphite distribution in graphite-bearing lithologies which include pelitic gneisses, migmatites displaying variable degrees of partial melting and certain intercepts of anatectic granitoids and pegmatoids. In addition to rocks, graphite is concentrated in structures developed under ductile and brittle regimes (i.e., from mylonites and foliated cataclasites to gouges). Three processes played a major role in concentrating graphite in the WMTZ: (i) partial melting favoured the concentration of metamorphic graphite (Gr_1) within restite intervals by melt loss, (ii) generation of C-rich fluids at depth by oxidation of metamorphic graphite during partial melting, upward circulation in ductile to brittle structures and precipitation of hydrothermal graphite (Gr_2) within fault cores and fractured damage zones and, (iii) mechanical remobilization of graphite within fault cores during tectonic activity (Gr_d). Distinct graphite morphologies are identified, directly linked to these three processes. The circulation of C-rich fluids in damage zones for long periods induces the formation of a hydrothermal alteration halo enriched in graphite and related minerals (pyrite and muscovite), whose size is linked to the nature of hosting rocks.

ACKNOWLEDGEMENTS

We thank Marie-Camille Caumon for Raman spectroscopy analyses, Andreï Lecomte for SEM assistance, Orano staff for discussions and collaboration on the field, in particular Charles Khairallah and Rémy Chemillac. This study was financially supported by the Geomin3D project (ANR-21-CHIN-0006), cofounded by ANR (Agence Nationale de la Recherche) and Orano.



Appendice 1: Wulff stereographic projections of pole-density of the preferred orientation planes for the different types of deformation structures measured for the electromagnetic conductor at Waterfound exploration projects (Saskatchewan, Canada). Data collected on the drill cores from the three selected cross-sections (Figure 3.2).

Chapitre 2

Les porteurs de soufre dans les zones de cisaillement graphiteuses du socle de l'orogène Trans-Hudson : minéralogie, relation paragénétique, positionnement structural et distribution spatiale.

4 Introduction au chapitre 2

Les zones de cisaillement graphiteuses de l'orogène Trans-Hudson (THO) sont connues pour leur contenu en graphite qui est considéré comme la contrainte principale de la signature EM. Il est néanmoins maintenant connu que, outre le carbone, du soufre est présent dans cet environnement, et qu'il s'exprime principalement sous forme de sulfures (Pascal et al., 2016) . Leur présence, leur rôle et leur impact dans ces structures sont largement sous-estimés, que ce soit pour le contrôle de la signature EM (Fowler et al., 2005) ou leur rôle possible sur la formation des gisements d'uranium.

De la même manière que pour le *Chapitre 1*, l'objectif de ce chapitre est de décrire pétrographiquement et texturalement les différents porteurs de soufre dans les zones de cisaillement graphiteuses du THO formés avant le Bassin de l'Athabasca, sur la base des deux exemples utilisés dans le chapitre précédent : Waterfound (WF) et McClean South (MCS). Ces porteurs seront replacés dans la séquence paragénétique (en particulier vis-à-vis du graphite) et dans le cadre structural de ces zones de cisaillement.

4.1 Méthodologie

4.1.1 Stratégie d'échantillonnage

La même stratégie d'échantillonnage que pour le *Chapitre 1* a été utilisée pour la caractérisation des porteurs de soufre. Les deux mêmes projets d'exploration (i.e., MCS et WF) ont été considérés, avec étude des mêmes forages que dans le *Chapitre 1*.

4.1.2 Observations de terrain : logging des lithologies et structures à pyrite

Les logs (Figure 4.1 et Figure 4.2) présentés dans ce chapitre reprennent la base lithologique et structurale définie dans le *Chapitre 1*. Une classification des teneurs en pyrite de 0 à 4 a été adoptée, basée sur les observations des carottes de forage à l'œil nul, selon l'échelle suivante : 0 (teneur totale en pyrite dans la roche ou la structure < 1 %), 1 (teneur totale en pyrite

dans la roche ou la structure entre 1-3 %), 2 (teneur totale en pyrite dans la roche ou la structure entre 3-10 %), 3 (teneur totale en pyrite dans la roche ou la structure entre 10-15 %) et 4 (teneur totale en pyrite dans la roche ou la structure > 15 %).

4.1.3 Etude pétrographique

La caractérisation pétrographique a été réalisée sur des lames minces polies sélectionnées à partir d'échantillons représentatifs de carottes de forage. Les observations pétrographiques et les relations paragénétiques ont été effectuées au laboratoire GeoRessources (Nancy, France) en utilisant un microscope optique en lumière transmise et réfléchie, couplé à un microscope électronique à balayage (SEM) Tescan Vega 3 et JEOL J7600F, avec spectroscopie dispersive d'énergie (EDS) Brucker XFlash 6130. Pour les images, l'intensité du faisceau (BI) a été réglée entre 8 et 10 W/m² et la tension (HV) entre 15 et 20 kV. Pour les analyses EDS, l'intensité du faisceau a été fixée à 15 W/m² et la tension à 15 kV. Les spectres ont été traités avec le logiciel Esprit 2.5.

4.1.4 Cartographie élémentaire

La cartographie en micro-XRF (X-ray fluorescence) utilisée pour l'échantillon *MCS-34_229,9* a été réalisée sur lame mince avec l'appareil Brucker M4 Tornado du service SCMEM du laboratoire GeoRessources à Nancy, équipé d'un tube Rh et de deux détecteurs EDS de 30 mm². Dans cette étude, la cartographie micro-XRF permet d'obtenir la répartition élémentaire et non minéralogique. Les éléments Na, Mg, Al, Si, P, S, K, Ca, Cr, Mn, Fe, Ni, Zn, Sr, Rb, Ti, Zr et Pb ont été ciblés. Dans les conditions d'analyses utilisées, le diamètre du point d'analyse est de 30 µm. Les spectres ont été traités avec le logiciel du même nom que l'appareil.

Des analyses en micro-LIBS (Micro Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) ont été réalisées de manière complémentaire aux analyses en micro-XRF afin de pouvoir observer la répartition du carbone (C) dans les échantillons. La cartographie utilisée pour l'échantillon *MCS-*

35C_228B a été réalisée à l'iLM (Institut Lumière Matière, Lyon, France). L'analyse a été menée sur une section de roche polie pour obtenir une surface plane, afin d'optimiser la stabilité de l'efficacité du laser sur la surface, permettant une excellente reproductibilité du signal LIBS. Un laser à grenat d'yttrium et d'aluminium dopé au néodyme (Nd:YAG) émettant à la longueur d'onde fondamentale (1064 nm) avec une durée d'impulsion de 7 ns et une fréquence de répétition de 100 Hz a été utilisé (Centurion GRM, Lumibird). Une lentille de grossissement 15x (LMM-15X-P01, Thorlabs) a permis de focaliser le faisceau laser sur la surface de l'échantillon. L'énergie d'impulsion a été fixée à 1,2 mJ. Dans cette configuration, la résolution spatiale était d'environ 25 µm, avec une taille de cratère de 7 µm. L'émission du plasma a été collectée à l'aide de plusieurs systèmes lentille-fibre couplés à quatre spectromètres, permettant de détecter simultanément les raies d'émission fortes de tous les éléments d'intérêt. Les spectres ont été enregistrés avec un délai de 1 µs et une fenêtre temporelle de 5 µs. Les échantillons ont été déplacés dans le plan XY, perpendiculaire au faisceau laser, à l'aide d'une platine de translation motorisée. Toutes les expériences ont été réalisées à température ambiante et sous pression atmosphérique, avec un flux d'argon de 1,0 L/min soufflé à travers le plasma pour éviter les contaminations de surface et améliorer l'émission du plasma.

4.2 Résultats

4.2.1 Observations de terrain : répartition des porteurs de soufre dans les lithologies et structures de déformation des zones de cisaillement de MCS et WF

Dans les métasédiments et les zones de cisaillement graphiteuses du THO, les porteurs de soufre principaux sont des sulfures, dont la pyrite est très majoritairement représentée. De façon générale, les métasédiments non affectés par des failles présentent une concentration en pyrite (Py_1) qui ne dépasse pas le grade 1. À MCS (Figure 4.1 et Figure 4.2), les métasédiments semblent contenir moins de pyrite (Py_1) qu'à WF (Figure 4.2), avec peu ou pas d'intervalles enrichis en pyrite (par ex. MCS-49, MCS-50 et MCS-57). Les zones de faille sont généralement plus riches en pyrite (cf. *sous-partie 4.2.2* pour les descriptions typologiques des pyrites dans les mylonites et cataclasites ; Figure 4.1) dans les deux zones d'étude.

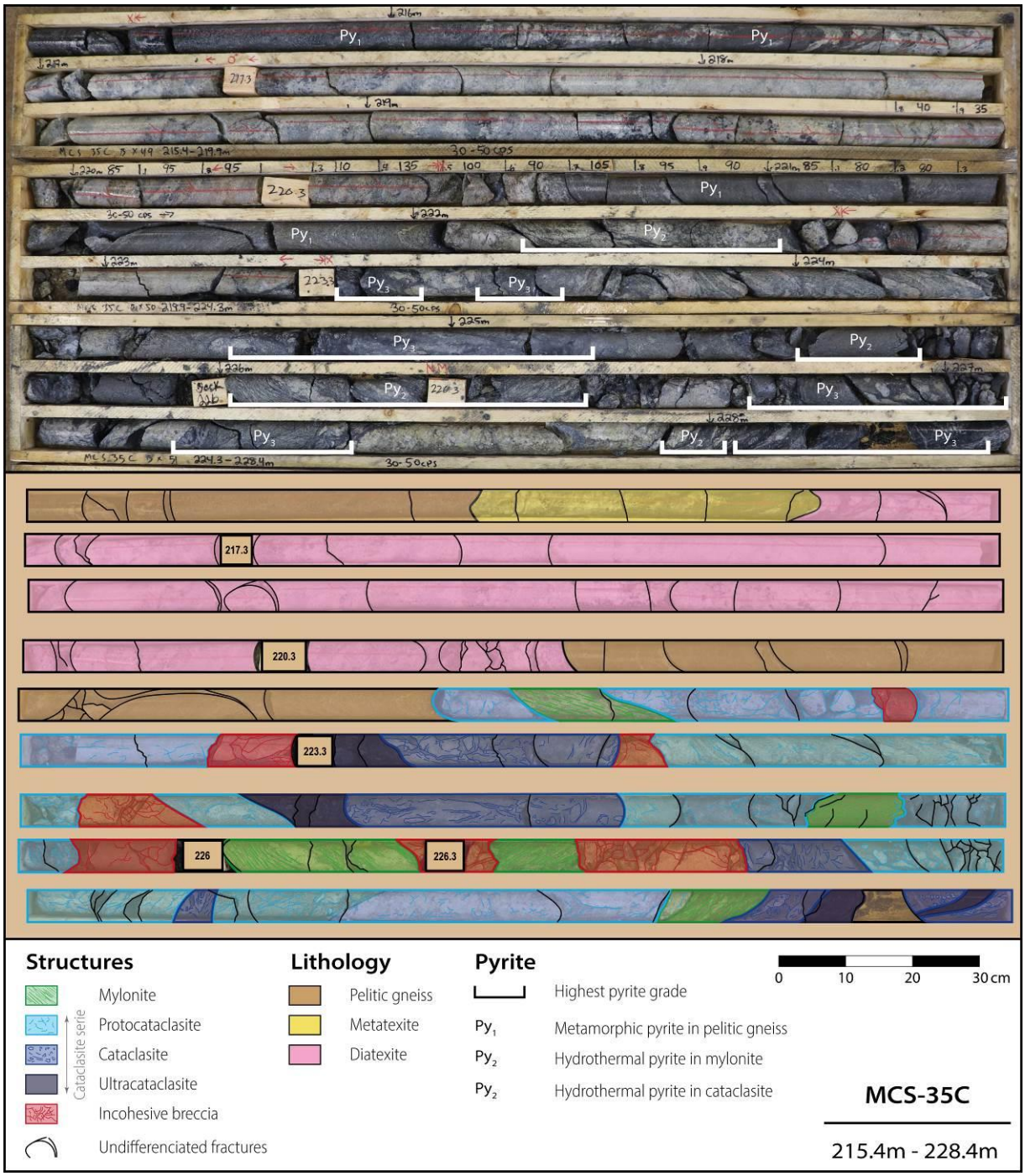


Figure 4.1 : Lithologies et structures représentatives observées au sein des zones de cisaillement riches en graphite et pyrite de la zone de transition Wollaston-Mudjatik (WMTZ, Saskatchewan, Canada), illustrées l'intervalle entre 215,4 m à 228,4 m du forage MCS-35C (projet d'exploration McClean South). Ces zones de cisaillement sont composées de gneiss pélitques paléoprotérozoïques (marron) enrichis de manière variable en pyrite (Py_1, teneur 0-1), de métatexites (jaune, teneur en pyrite Py_1 0-1), et de diatexites (rose, teneur en pyrite 0). Les zones de cisaillement riches en graphite et pyrite sont présentent des roches issues de déformations ductiles (mylonites, vert), ductile-fragile (cataclasites, bleu) et fragile (gouges et brèches incohésives, rouge). Les mylonites contiennent de la pyrite hydrothermale Py_2 (teneur 1-2) et les cataclasites contiennent de la pyrite hydrothermale Py_3 (teneur 1-3).

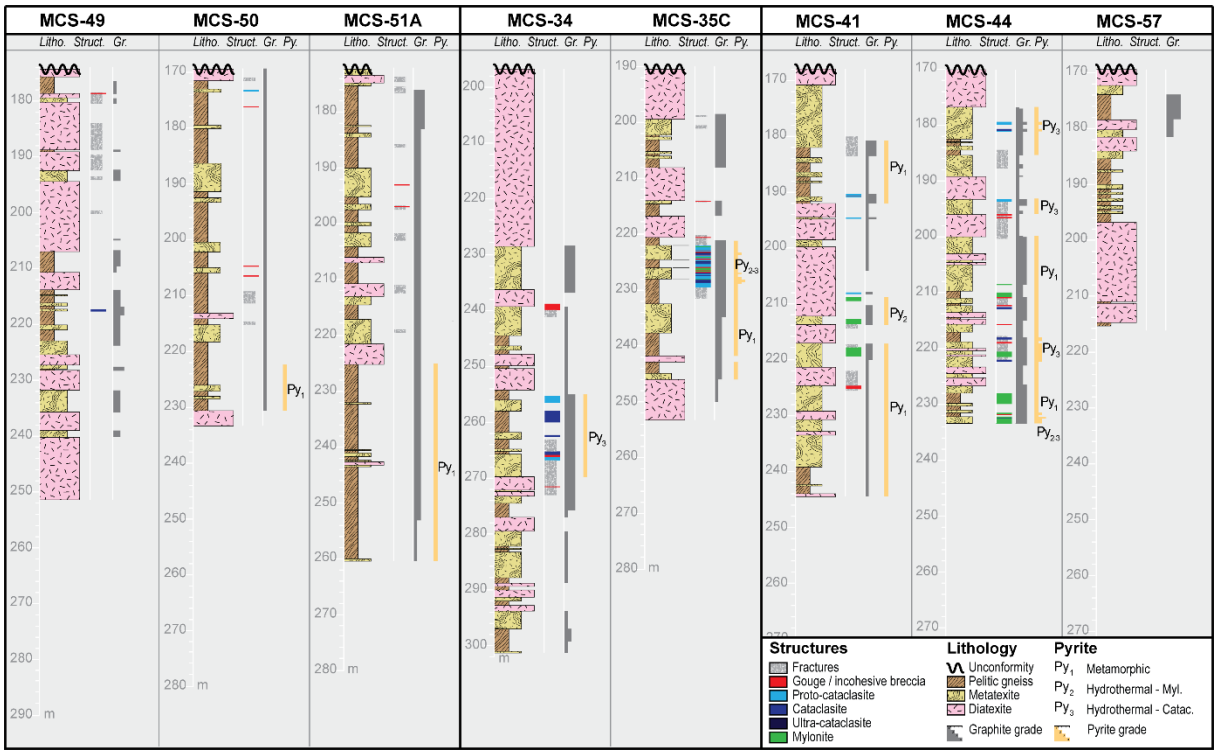


Figure 4.2 : Logs des faciès lithologiques (Litho.) et structuraux (Struct.) des forages de McClean South (MCS) présentés dans le Chapitre 1 avec ajout des concentrations relatives de pyrite (Py.), estimées de la même manière que pour le graphite (Gr.), allant de 0 à 4. Py1 = pyrite métamorphique, Py2 = pyrite hydrothermale dans les mylonites, Py3 = pyrite hydrothermale dans les cataclasites.

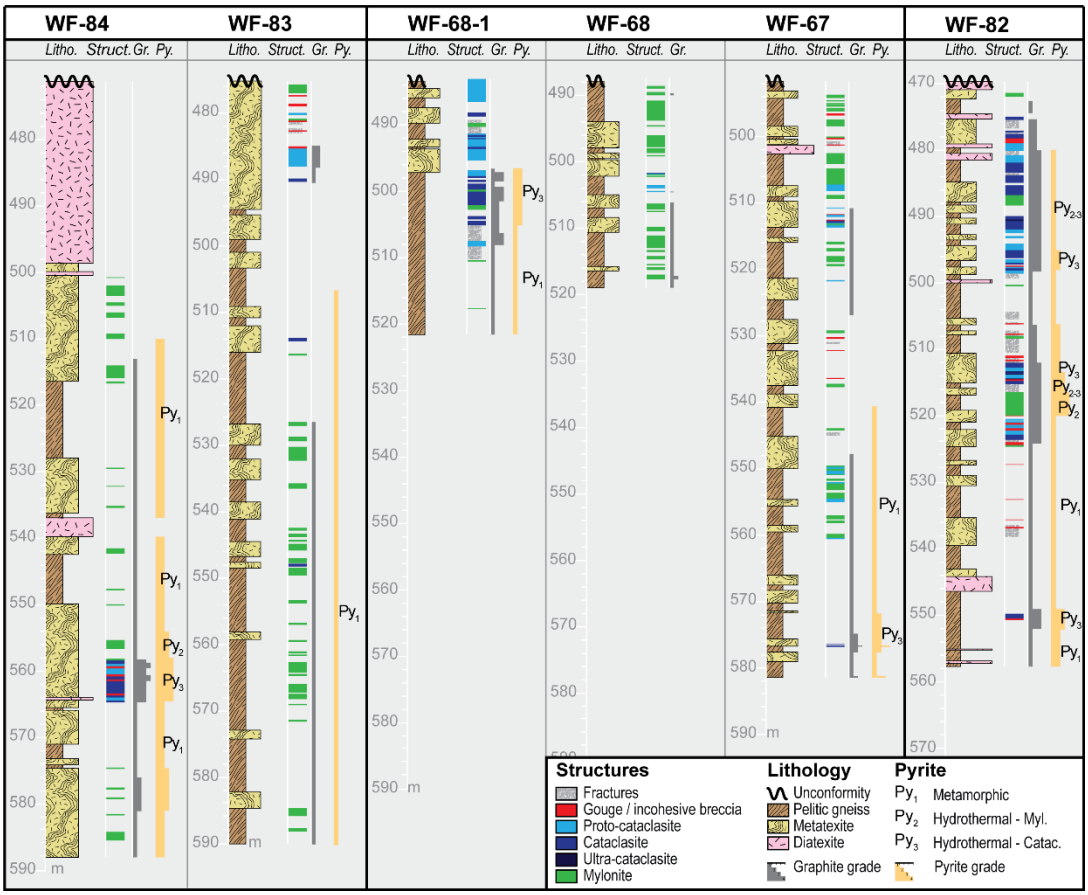


Figure 4.3 : Logs des faciès lithologiques (Litho.) et structuraux (Struct.) des forages de Waterfound (WF) présentés dans le Chapitre 1 avec ajout des concentrations relatives de pyrite (Py.), estimées de la même manière que pour le graphite (Gr.), allant de 0 à 4. Py_1 = pyrite métamorphique, Py_2 = pyrite hydrothermale dans les mylonites, Py_3 = pyrite hydrothermale dans les cataclasites.

4.2.2 Observations macroscopiques et microscopiques

4.2.2.1 Métasédiments – Py_1

En raison des altérations successives qu'il a subies (par ex. métamorphisme rétrograde et diverses altérations hydrothermales), le socle métamorphique de la WMTZ en lien spatial direct avec les zones de cisaillement graphiteuses a largement perdu sa paragénèse minérale originelle. Cependant, les échantillons les plus préservés montrent que le gneiss pélitique est de couleur gris foncé (Figure 4.4A), à granulométrie fine (< 1 mm) à moyenne (1–5 mm), et présente une foliation bien développée. Cette foliation S1 est marquée par l'orientation préférentielle des biotites

et du graphite (Gr_1) souvent associés. Localement, des grains de pyrite (Py_1) sont présents et co-génétiques du Gr_1, principalement le long de S1 (Figure 4.4A-F). Cependant, la présence de Gr_1 n'est pas systématiquement associée à celle de Py_1, cette dernière n'étant pas tout le temps présente (par exemple Figure 4.2 – Forage MCS-49). La pyrite (Py_1), en dehors des zones de cisaillement, ne montre pas de signes d'altération pendant cet épisode de métamorphisme, à l'exception de la recristallisation de certains grains disséminés en veinules de pyrite (Figure 4.4C). Les sulfures présents dans les métasédiments pré-Athabasca sont essentiellement des pyrites, avec quelques occurrences de chalcopyrite. En général, les cristaux de pyrite (Py_1) sont relativement allongés (subidiomorphes) et ont des textures irrégulières xénomorphes avec des dimensions allant d'une dizaine de micromètre (Figure 4.4E-F) à un demi-millimètre (Figure 4.4C et E-F). Les métasédiments ont un grade de Py_1 entre 0 et 1 à MCS, tandis qu'ils ont un grade de Py_1 entre 1 et 2 à WF.

Lorsque le gneiss est altéré pendant le métamorphisme rétrograde, correspondant à l'épisode de métasomatisme à C décrit dans le *Chapitre 1*, il prend une couleur gris moyen à gris clair (Figure 4.4B et D). Les grains de K-feldspars sont partiellement voire totalement remplacés par de la séricite, la biotite est altérée en chlorite ferromagnésienne type clinochlore (Annexes 6-7), le grenat est remplacé par du quartz et de la chlorite, la cordiérite est altérée en pinite et chlorite, et la pyrite reste stable ou recristallise *in-situ* sous forme de veinules dans la foliation (Figure 4.4C).

4.2.2.2 Mylonites – Py_2

Des forts enrichissements en pyrite (et graphite, cf. *Chapitre 1*) sont enregistrés dans les mylonites (Figure 4.5 A-D), associés à un assemblage minéral à séricite, muscovite, chlorite ferromagnésienne et oxydes de titane. La pyrite (Py_2) se présente sous forme de grains isolés allongés, de veinules (> 0,5 cm) ou de veines plus massives (> 1 cm) précipités au sein de la zone de déformation ductile dans les plans de cisaillement suivant globalement la foliation métamorphique S1 (Figure 4.5 A-D). La pyrite est fréquemment associée au graphite (Gr_2), et ces deux minéraux sont fortement remobilisés et/ou recristallisés le long de ces plans dans les intervalles mylonitisés (Figure 4.5 A-B). Dans ces roches, la minéralisation de pyrite se surimpose

souvent aux minéraux préexistants (par exemple Figure 3.7C), tels que le Gr_2, les K-feldspars et les biotites, montrant une recristallisation après le pic de métamorphisme.

De manière générale, les forages de WF montrent plus d'intervalles de mylonites riches en Py_2, avec des teneurs allant de 2 à 3. Ces zones de déformation ductiles sont également plus épaisses à WF qu'à MCS (cf. *Chapitre 1*). Par conséquent, le volume total de Py_2 y est plus important.

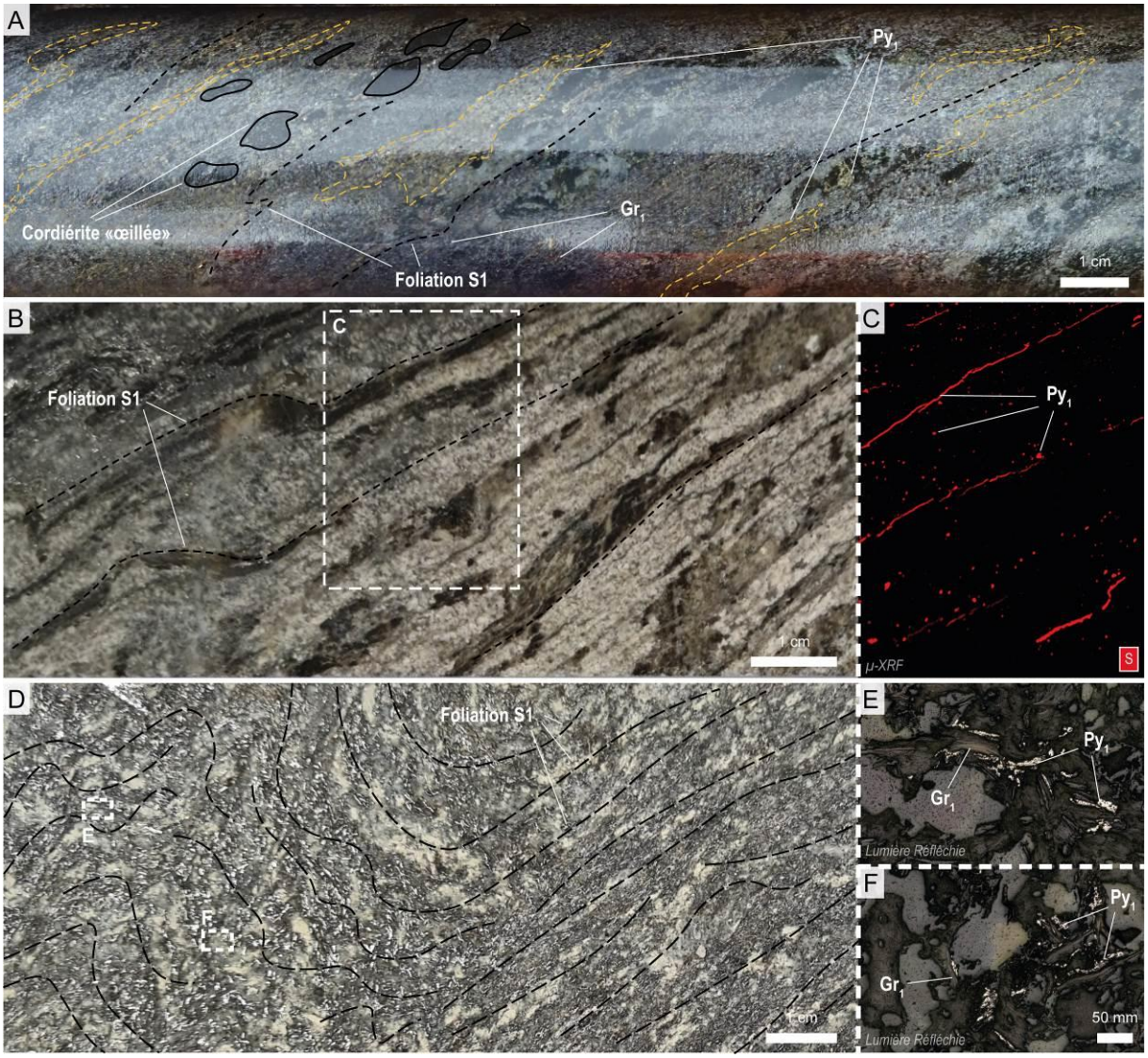


Figure 4.4 : A) Echantillon MCS-06_316,9. Gneiss pélitique riche en graphite (Gr1) et pyrite (Py1) présentant des traces de fusion partielle (amas de minéraux centimétriques). La pyrite (Py1) est concentrée sur des intervalles millimétriques à centimétriques (cerclage en pointillés orange) et orientée selon la foliation métamorphique (S1), avec d'autres minéraux caractéristiques du pic de métamorphisme tels que le graphite (Gr1) et la cordiérite à texture « œillée ». B-C)

Echantillon MCS-34_229,9. B/ Gneiss pélitique présentant une foliation métamorphique (S1) caractérisée par des porphyroblastes allongés de feldspath chloritisé (vert foncé), alternant avec des couches claires à granulométrie fine, riches en quartz et feldspath, avec présence de Gr1 et Py1. C/ Image de cartographie µ-XRF du soufre pour la portion délimitée en pointillés blancs sur la photographie B. Le soufre est uniquement porté par la pyrite (Py1) dans cet échantillon. La Py1 est sous forme de minéraux micrométriques à millimétriques isolés, ou est présente en veines millimétriques orientées le long de la S1. D-F) Echantillon MCS-35C_240,8. Gneiss pélitique à graphite (Gr1) et pyrite (Py1) à fusion partielle intermédiaire (Métatexite). D/ L'échantillon est riche en Gr1 (paillettes brillantes) suivant la fabrique métamorphique S1 fortement plissée. E-F) Photographies microscopiques en lumière réfléchie. La pyrite (Py1), en association avec le graphite (Gr1), est sous forme d'agrégats micrométriques sub-automorphes, orientés le long de la foliation.

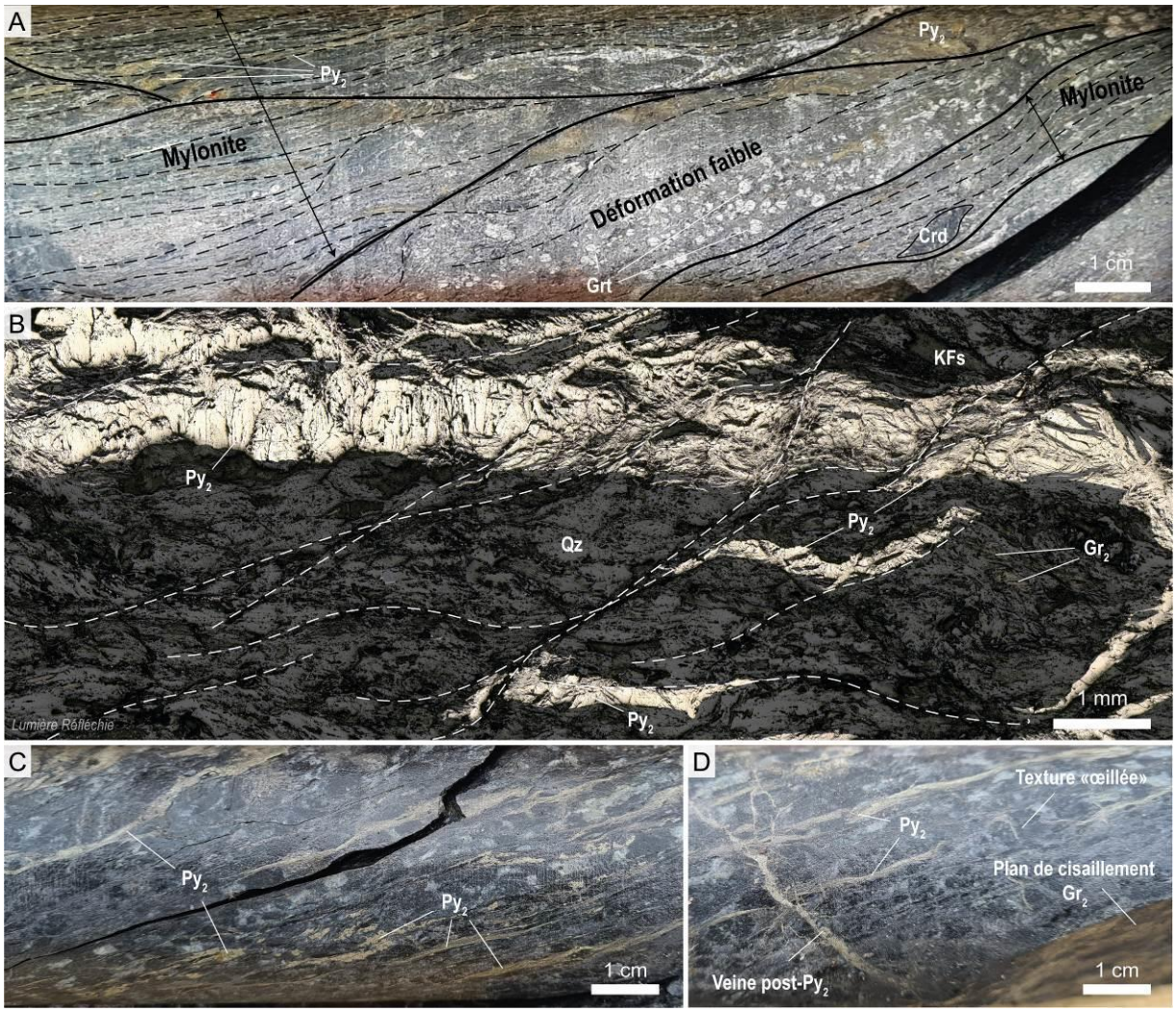


Figure 4.5: A-B) Echantillon WF-69_536,7. A/ Intervalles à déformation mylonitique riches en pyrite (Py_2). Les intervalles faiblement déformés conservent la foliation métamorphique originelle (S1) et présentent des grenats (Grt) automorphes. Les intervalles à forte déformation portent des cordiérites (Crd) et grenats partiellement étirés voire complètement aplatis, montrent une foliation secondaire (pointillés noirs) engendrée par la déformation ductile se superposant à la foliation primaire, et voient la concentration en Py_2 croître fortement. B/ Photographie microscopique en lumière réfléchie d'une veine de pyrite dans la mylonite. Plusieurs structures de déformation ductile de type C-S (en pointillés blancs) sont visibles, montrant une cristallisation syn-déformation de la pyrite (Py_2), et affectant les grains de quartz (Qz) et K-Feldspars (KFs). Le graphite (Gr_2) n'est pas directement associé à Py_2, mais possiblement précipité avant Py_2. C-D) Echantillon WF-82_519. Mylonite à texture « œillée » affectant un gneiss pélitique, dans laquelle la Py_2 précipite le long de la fabrique induite par la déformation ductile. Les plans de cisaillement ont aspect « lustré », caractéristique de la présence de graphite microcristallin (Gr_2) précipité syn-déformation. Des veines de pyrite perpendiculaires recoupent les veines de Py_2, et sont possiblement liées à la déformation ductile-fragile ultérieure (Py_3).

4.2.2.3 Cataclasites – Py_3

Les cataclasites et les cataclasites foliées contiennent des clastes sub-angulaires pluricentimétriques, de quartz principalement pour les cataclasites foliées, représentant plus de 50 % de la roche totale (Figure 4.6C). Les intervalles de cataclasites foliées peuvent atteindre plusieurs mètres d'épaisseur à WF et sont épais de plusieurs dizaines de centimètres jusqu'à un mètre à MCS. Les cataclasites non foliées, présentant des clastes angulaires sont généralement moins épaisses et contiennent un ratio matrice / clastes beaucoup plus important (Figure 4.6A-B et E ; Figure 4.7A ; Figure 4.8A). Le volume total de Py_3, étant directement proportionnel à l'épaisseur des cataclasites, est ainsi plus important à WF qu'à MCS.

Les sulfures présents dans les cataclasites sont principalement de la pyrite. Elles sont disséminées dans la matrice. Deux types de pyrites sont présents dans ces structures de déformation : i) les pyrites (Py_3) automorphes ou sub-automorphes sont largement majoritaires et ont des tailles centimétriques (Figure 4.6A-C et E) à micrométriques (Figure 4.7 et Figure 4.8) ; ii) pyrites broyées ne montrant pas de textures de recristallisation (Figure 4.8C) associée au quartz et au graphite désorganisé (Gr_d), contribuant par ailleurs à la couleur sombre de ce type de roche de faille (Kaneki and Hirono, 2016). Les larges cristaux de pyrite automorphes semblent croître dans la matrice des cataclasites en association avec des phyllosilicates potassiques, de la chlorite ferromagnésienne (Figure 4.7E-G ; Figure 4.8D-E) et parfois une recristallisation de quartz (Figure 4.8D-E). Des cristaux automorphes de pyrite (Py_3) de différentes tailles peuvent coexister dans une même zone (Figure 4.7D-E).

Bien que présente dans la même structure de déformation (i.e., cataclasite), la pyrite (Py_3) ne montre pas d'association directe avec le graphite (Gr_2) qui pourrait témoigner de la coprécipitation de ces deux minéraux. La cartographie LIBS (Figure 4.7B) révèle des zones fracturées ou fortement déformées avec la seule présence de Gr_2 (au centre-droit de l'image). Lorsqu'elle est présente (partie gauche de l'image), la Py_3 ne semble associée qu'au graphite désorganisé montrant une taille très réduite (i.e. quelques micromètres) de ses cristaux en imagerie LIBS. Les photographies au microscope (Figure 4.6D ; Figure 4.7D) révèlent que le Grd est xénomorphe dans la matrice tandis que la Py_3 est automorphe. L'association entre Py_3 et Gr_d se trouve également dans les stylolites (Figure 4.6D) où le graphite y est accumulé *in-situ* et désorganisé (cf. *Chapitre 1*), et où la pyrite (Py_3) y est précipitée sous de fortes contraintes.

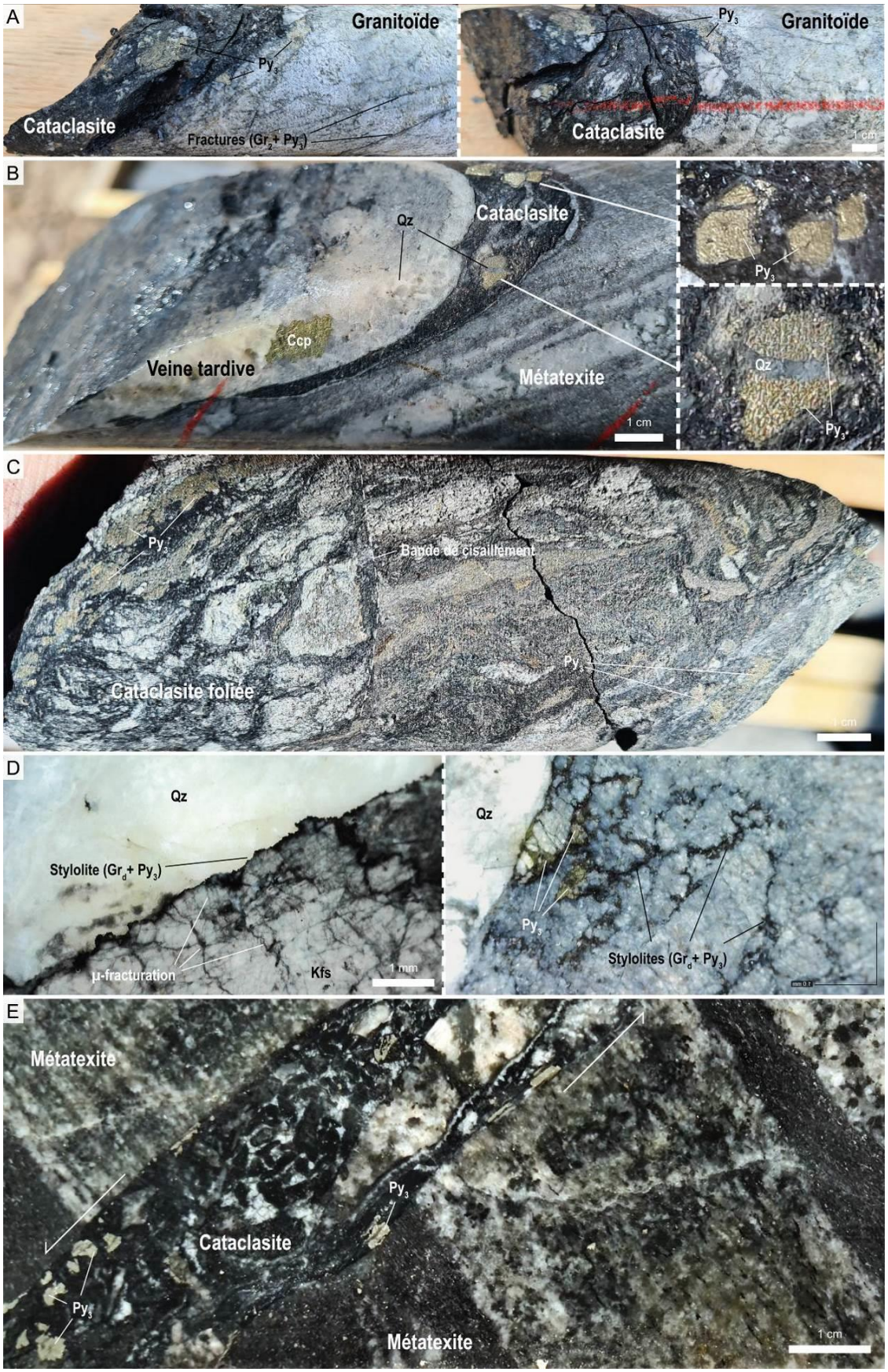

A
Granitoïde
Py3
Cataclasite
Fractures (Gr2+ Py3)
Py3
Granitoïde
Cataclasite
1 cm
B
Qz
Cataclasite
Py3
Ccp
Veine tardive
Métatexite
1 cm
Qz
Py3
C
Py3
Bande de cisaillement
Py3
Cataclasite foliée
1 cm
D
Qz
Stylolite (Grd+ Py3)
µ-fracturation
Kfs
1 mm
Qz
Py3
Stylolites (Grd+ Py3)
E
Métatexite
Py3
Cataclasite
Py3
Métatexite
1 cm

Figure 4.6: A) Echantillon WF-82_513,7. Cataclasite riche en graphite (Gr_2 et Gr_d) et pyrite (Py_3) située au niveau d'un contact lithologique entre un gneiss pélitique et un granitoïde. Les cristaux de pyrite sub-automorphes à automorphes sont généralement centimétriques (jusqu'à 5cm). Des fractures à remplissage de graphite (Gr_2) et pyrite (Py_3) pénètrent dans le granitoïde affecté par la déformation cataclastique. La matrice noire est principalement composée de quartz microcristallins, de phyllosilicates et de Gr_d. B) Echantillon WF-84_558. Cataclasite dans une métatexite, recoupée plus tardivement par une veine de quartz (Qz) et chalcopyrite (Ccp). La pyrite (Py_3) dans la cataclasite, lorsqu'elle n'est pas fracturée par le quartz, y est automorphe. C) Echantillon WF-82_497,6. Cataclasite foliée à graphite (Gr_2 et Gr_d) et pyrite (Py_3) montrant des traces de déformation ductile et de déformation fragile. La pyrite se présente sous-forme de grains automorphes disséminés dans la matrice de la roche de faille, ou en veines semi-massive suivant la foliation induite par la faille. L'échantillon enregistre plusieurs épisodes de déformation, avec notamment une réactivation marquée par la présence d'une bande de cisaillement. D) Echantillon WF-84_564. Cataclasite dans une pegmatite, montrant une micro-fracturation particulièrement marquée dans les K-feldspars (KFs), avec de nombreux plans stylolitiques enrichis en graphite (Gr_d) et en pyrite (Py_3) sub-automorphe aux contacts inter-grains. E) Echantillon MCS-05_256,3. Cataclasite dans une métatexite, perpendiculaire à la foliation métamorphique. La pyrite (Py_3) est essentiellement localisée dans le cœur de faille. Les cristaux sont sub-automorphes, voire automorphes par endroits.

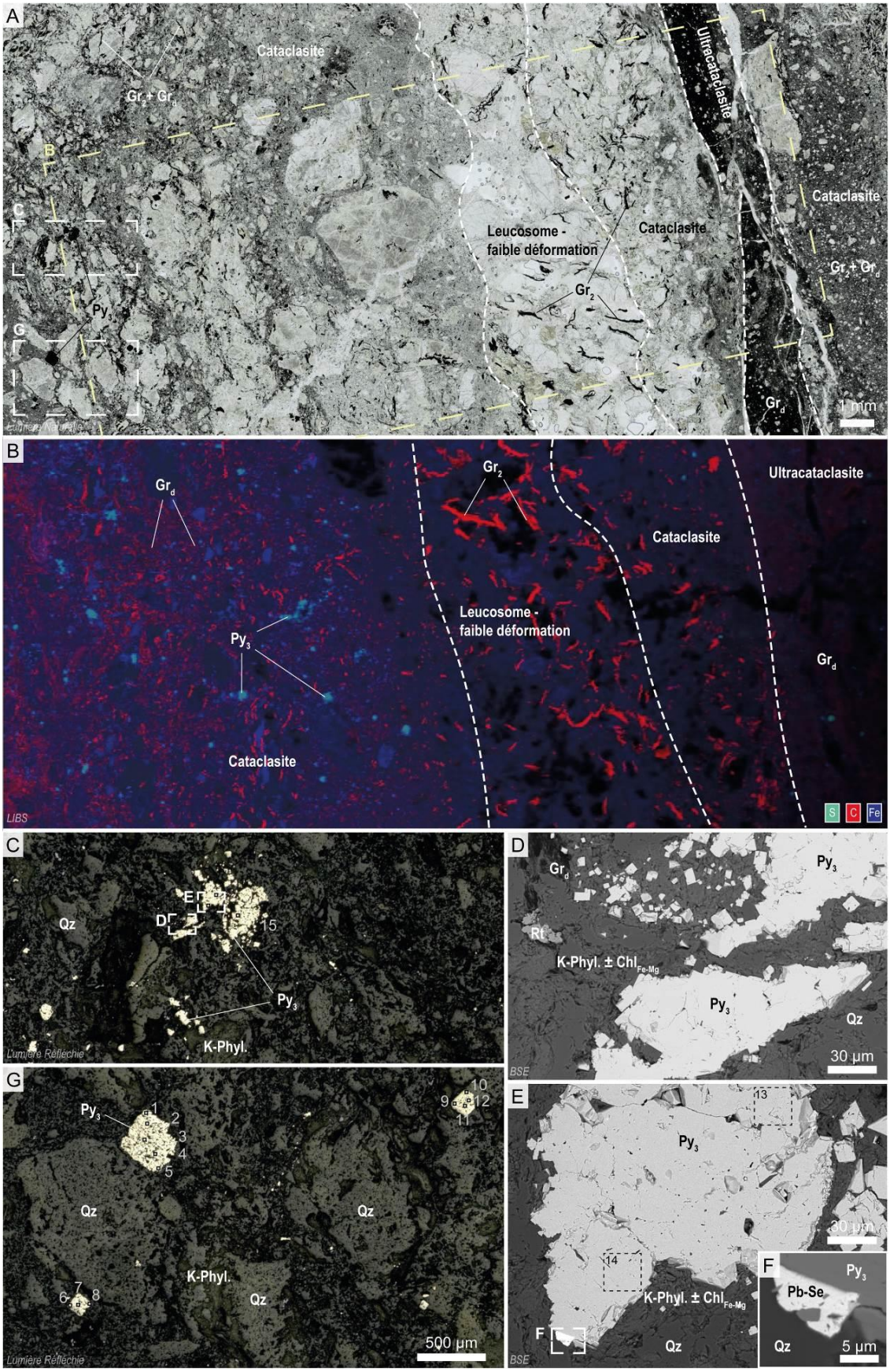

A
Cataclasite
Gr2 + Grd
Ultracataclasite
B
C
Leucosome - faible déformation
Cataclasite
Cataclasite
Gr2 + Grd
Py3
Gr2
G
Grd
1 mm
Lumière Naturelle
B
Grd
Gr2
Ultracataclasite
Cataclasite
Leucosome - faible déformation
Py3
Grd
Cataclasite
LIBS
S
C
Fe
C
Qz
E
D
15
Py3
K-Phyl.
Lumière Réfléchie
D
Grd
Py3
Rt
K-Phyl. ± Chl Fe-Mg
Py3
Qz
30 µm
BSE
G
Py3
1
2
3
4
5
9
10
11
12
Qz
Qz
K-Phyl.
6
7
8
Qz
500 µm
Lumière Réfléchie
E
13
Py3
30 µm
14
K-Phyl. ± Chl Fe-Mg
F
Qz
BSE
F
Py3
Pb-Se
Qz
5 µm

Figure 4.7: A-E) Echantillon MCS-35C_228B. A/ Photographie microscopique en lumière naturelle transmise. Plusieurs zones (délimitées par des pointillés blancs) sont identifiable sur cette lame mince (de la droite vers la gauche) : i) une cataclasite à granulométrie fine, la matrice broyée apparaît gris foncé, les clastes sont micrométriques et anguleux ; ii) une ultracataclasite dont la matrice de couleur noire est très finement broyée et dont les grains ne sont pas discernables à cette échelle, avec quelques clastes micrométriques anguleux ; iii) une cataclasite avec peu de matrice, principalement constituée de quartz, de feldspaths et de graphite (Gr2) ; iv) un intervalle leucocrate peu déformé portant quelques fractures à graphite (Gr2) et micas ; et v) une cataclasite à granulométrie plus grossière, dont les clastes millimétriques exhibent des textures de déformation ductile, portant de fines baguettes de graphite (Gr2 et Grd) et nombreux cristaux de pyrite (Py3). B/ Image de cartographie LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) des éléments S (turquoise), C (rouge) et Fe (bleu) sur la portion représentée en pointillés jaune clair sur la photo A. Dans cet échantillon, le carbone est exclusivement contenu dans le graphite (Gr2 et Grd) et le soufre dans la pyrite (Py3). La taille des cristaux de graphite est considérablement réduite dans la cataclasite à gauche, par rapport aux zones moins déformées au centre. La pyrite se concentre principalement dans cet intervalle de forte déformation. La zone extrêmement finement broyée à droite, correspondant à l'ultracataclasite, semble contenir du graphite et de la pyrite, mais la taille nanométrique à micrométrique des grains ne permet pas de les visualiser avec la résolution de l'analyse. C/ Photographie en lumière réfléchie de la zone encadrée en pointillés blancs sur l'image A. La matrice est essentiellement composée de quartz (Qz), phyllosilicates potassiques (K-Phyl.) et pyrite (Py3). Les carrés gris correspondent aux points d'analyse en sonde ionique présentés dans le Chapitre 3. D/ Image MEB (Microscope à Balayage Electronique) en BSE (Backscattered Electron – électrons rétrodiffusés) de la partie encadrée en pointillés blancs sur la photographie C. La pyrite (Py3) apparaît automorphe et synchrone à la précipitation de K-Phyl et chlorites ferromagnésiennes (ChlFe-Mg). Du quartz (Qz), du rutile (Rt) et du graphite désorganisé (Grd) sont également présents dans la matrice. E/ Image MEB en BSE de l'encadré en pointillés blancs sur la photographie C. Les carrés en pointillés noirs correspondent aux points d'analyse en sonde ionique présentés dans le Chapitre 3. Même paragénèse minérale que pour D, hormis pour la surcroissance en surbrillance en bas à gauche de l'image. F/ Zoom sur la surcroissance de l'image E. Les points d'analyse EDS révèlent la présence de séléniure de plomb, possiblement de la clausthalite (PbSe), contenant des clastes de Py3 en gris foncé à l'intérieur. G/ Même description que pour C.

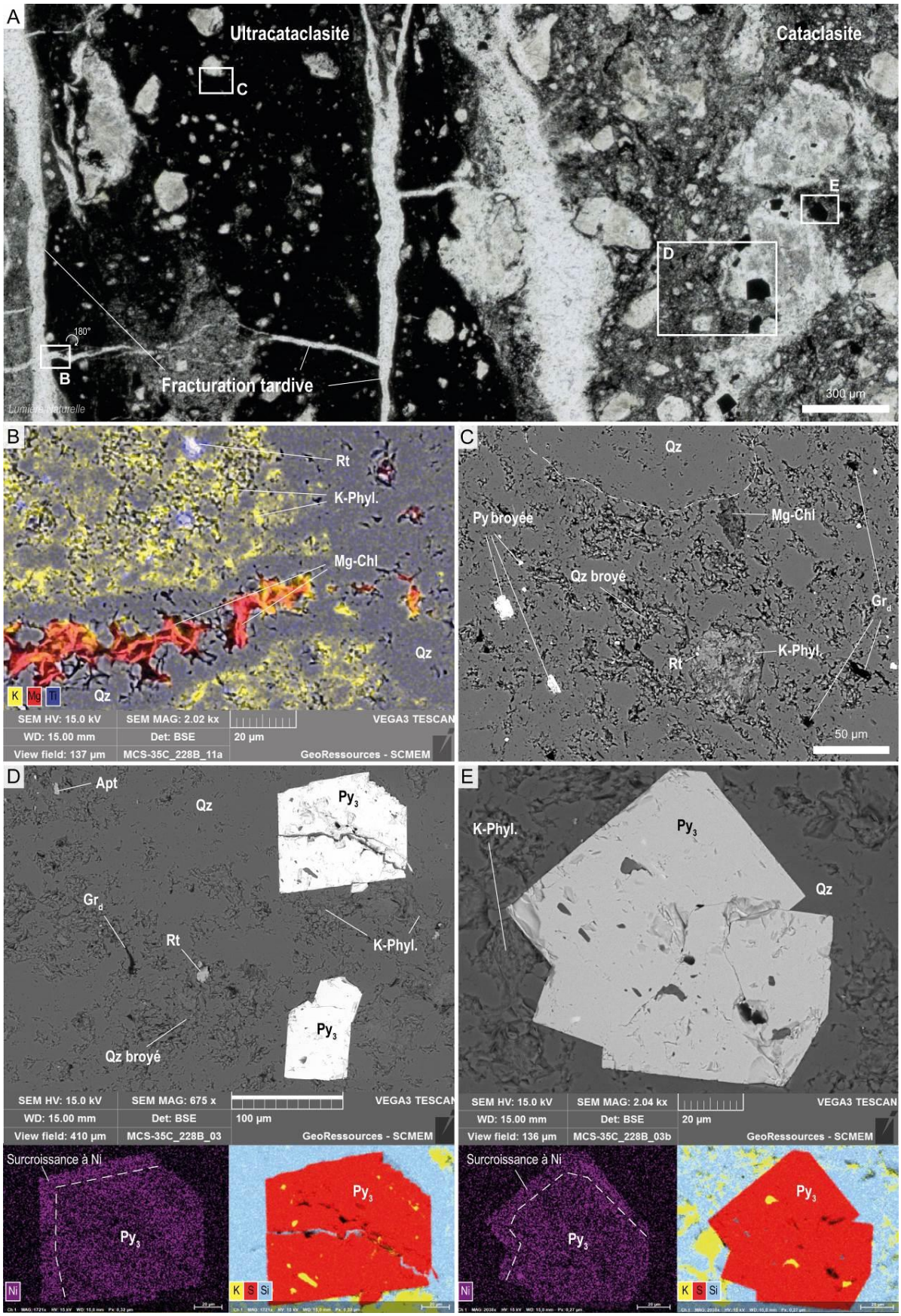

A
Ultracataclasite
Cataclasite
C
E
D
180°
B
Fracturation tardive
Lumière naturelle
300 µm
B
Rt
K-Phyl.
Mg-Chl
Qz
K Mg Ti
Qz
SEM HV: 15.0 kV
SEM MAG: 2.02 kx
VEGA3 TESCAN
WD: 15.00 mm
Det: BSE
20 µm
View field: 137 µm
MCS-35C_228B_11a
GeoRessources - SCMEM
C
Qz
Py broyée
Mg-Chl
Qz broyé
Grd
Rt
K-Phyl.
50 µm
D
Apt
Qz
Py3
Grd
Rt
K-Phyl.
Py3
Qz broyé
SEM HV: 15.0 kV
SEM MAG: 675 x
VEGA3 TESCAN
WD: 15.00 mm
Det: BSE
100 µm
View field: 410 µm
MCS-35C_228B_03
GeoRessources - SCMEM
E
K-Phyl.
Py3
Qz
SEM HV: 15.0 kV
SEM MAG: 2.04 kx
VEGA3 TESCAN
WD: 15.00 mm
Det: BSE
20 µm
View field: 136 µm
MCS-35C_228B_03b
GeoRessources - SCMEM
Surcroissance à Ni
Py3
Ni
Py3
K S Si
Surcroissance à Ni
Py3
Ni
Py3
K S Si

Figure 4.8 : A-E) Echantillon MCS-35C_228B. A/ Photographie microscopique en lumière naturelle transmise du contact entre l'ultracataclasite et la cataclasite présentées en Figure 4.7. Ce contact est marqué par des fractures blanches (Fracturation tardive) postérieures à la déformation responsable de la série des cataclasites. B/ Image MEB (Microscope à Balayage Electronique) en BSE (Backscattered Electron – électrons rétrodiffusés) correspondant au zoom sur l'encadré blanc de l'image A. La cartographie élémentaire a été réalisée en EDS (spectroscopie à dispersion d'énergie) et montre les éléments K (en jaune), Mg (en rouge) et Ti (en bleu). Ainsi, la matrice de l'ultracataclasite est essentiellement constituée de phyllosilicates potassiques (K-Phyl) en jaune, de quartz (Qz) en gris et de rutile (Rt) en bleu. Les fractures tardives sont constituées de chlorite magnésienne (Mg-Chl, en rouge) au cœur des veines, et de quartz (en gris) aux épontes. C/ Zoom sur la matrice de l'ultracataclasite (encadré blanc sur l'image A). Le plus gros claste (Qz) mesure une cinquantaine de micromètres de largeur, le reste de la matrice est composé de minéraux à granulométrie très fine mesurant entre <1µm et 10µm : quartz (Qz broyé), pyrite (Py broyée), graphite désorganisé (Grd), rutile (Rt), micas (K-Phyl) et chlorite magnésienne (Mg-Chl). D-E/ Images MEB en BSE et cartographies élémentaires en EDS associées des cristaux automorphes de pyrite (Py3) dans la cataclasite (encadrés blancs à droite sur l'image A). La matrice de la cataclasite est la même que celle de l'ultracataclasite. La présence de microcristaux d'apatite (Apt) est à noter. La pyrite (en rouge) semble avoir précipité en même temps que les phyllosilicates potassiques (K-Phyl, en jaune), et que le quartz (Qz, en bleu) en bordure de grains apparaissant lisse (en opposition avec le quartz broyé dont la texture se distingue). Les cristaux de pyrite montrent un enrichissement en nickel (Ni, teintes de violet plus prononcées) sur leurs bordures.

4.3 Discussion

La quantité totale de graphite et de sulfures (principalement de la pyrite) dans les gneiss pélitiques autour des zones de cisaillement est considérée non pas comme le résultat d'une accumulation sédimentaire primaire "simple", mais plutôt comme le produit de remobilisations, de concentrations et de précipitations hydrothermales ayant significativement enrichi les concentrations initiales au cours des événements tectoniques et métamorphiques transhudsoniens entre 1850 Ma et 1720 Ma (cf. *Chapitre 1*). La présence d'un enrichissement exceptionnel de plusieurs types de graphite (cf. *Chapitre 1*) et de pyrite confère à ces zones de cisaillement du socle une conductivité électromagnétique (EM) anormalement élevée. Cela constitue la base de l'exploration de l'uranium dans le Bassin de l'Athabasca, où les conducteurs EM sont des cibles prioritaires pour sélectionner les emplacements de forage.

Les différentes générations de pyrite, identifiées par des observations macroscopiques et microscopiques, présentent des répartitions spatiales et des paragénèses distinctes. Elles sont liées aux processus métamorphiques, à la fusion partielle, aux déformations ductiles et fragiles, et aux interactions avec les fluides associés à chacun de ces évènements qui ont façonné ces

zones avant le dépôt du bassin. Une synthèse de ces observations est illustrée dans la séquence paragénétique présentée dans la Figure 4.9.

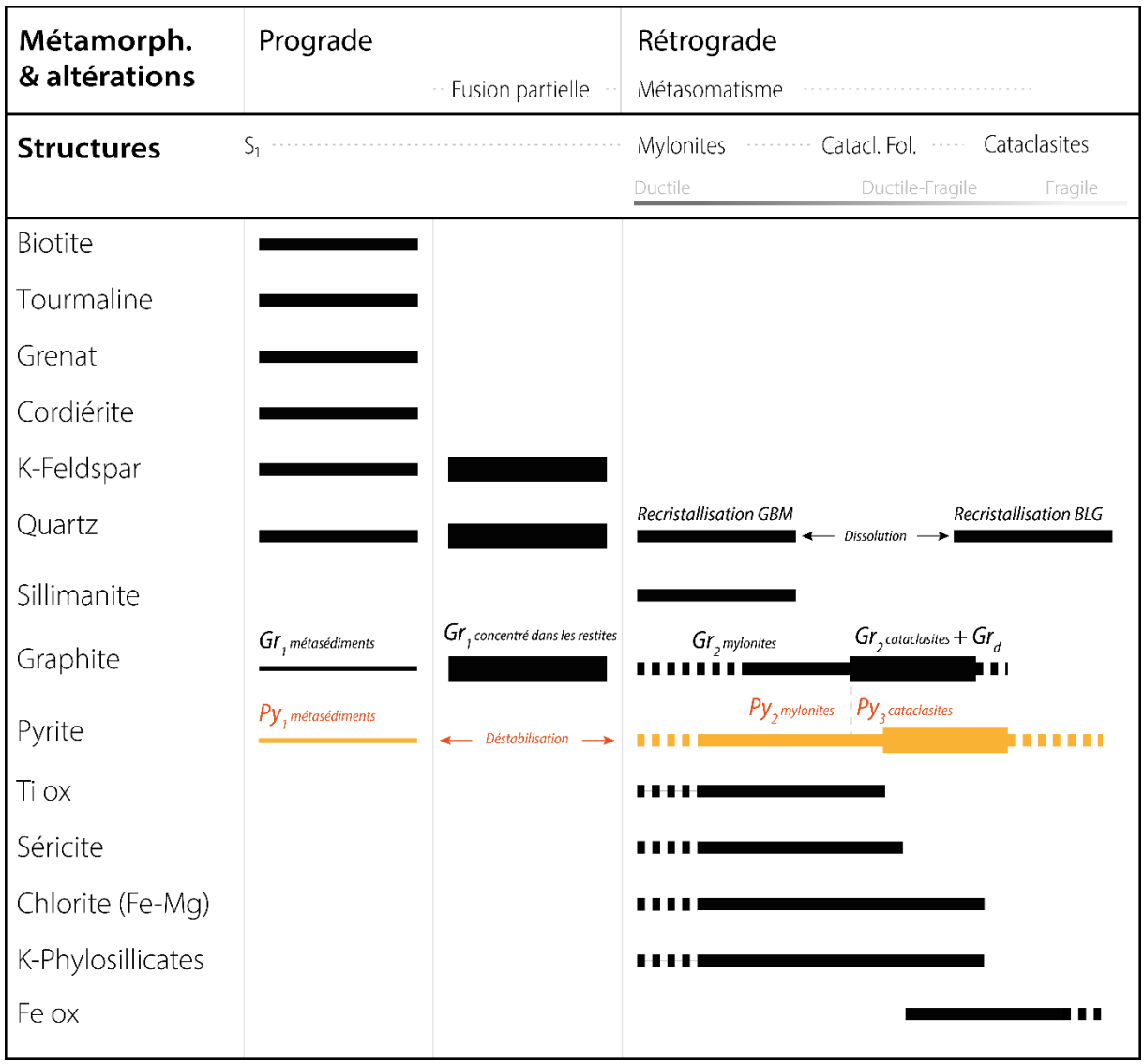


Figure 4.9 : Séquence paragénétique synthétique pour les zones de cisaillement riches en graphite de MCS et WF avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca, basée sur des observations pétrographiques et structurales effectuées sur carottes de forage et en lame mince. L'épaisseur des lignes est proportionnelle à la quantité de phase minérale formée à chaque stade considéré. Les évènements de précipitation de pyrite sont indiqués en jaune foncé dans la figure. Gr1 = graphite métamorphique, Gr2 = graphite hydrothermal, Grd = graphite désorganisé, Py1 = pyrite métamorphique, Py2 = pyrite hydrothermale dans les mylonites, Py3= pyrite hydrothermale dans les cataclasites.

4.3.1 Origine des différents types de pyrite

4.3.1.1 Pyrite métasédimentaire (Py_1)

Avant de subir un métamorphisme de faciès amphibolite supérieur / granulite, les gneiss psammitiques et pélitiques de la zone de transition Wollaston-Mudjatik (WMTZ) étaient des sédiments paléoprotérozoïques, riches en matière organique pour certaines séries. Dans ces dernières, une génération initiale de pyrite a minéralisé par réduction bactérienne des sulfates. Cette première étape ne peut se dérouler que dans un environnement anoxique (Berner, 1970, 1984). Ces conditions sont généralement présentes dans la plupart des sédiments en raison de la quantité significative de matière organique qu'ils contiennent, jouant un rôle de barrière à proximité de l'interface eau-sédiment en consommant l'oxygène et empêchant sa pénétration en profondeur. Les bactéries décomposent ainsi la matière organique en CO_2 et créent les conditions anoxiques nécessaires à la réduction des sulfates [1] :

(1) $SO_4^{2-} + 2CH_2O \rightarrow H_2S + 2HCO_3^-$

La pyrite ne se forme pas directement à partir d'une solution homogène, mais à partir de solutions initialement sursaturées en FeS amorphe (Schoonen and Barnes, 1991), selon [2] (Rickard, 1995) :

(2) $Fe^{\{2+\}} + H_2S \rightarrow FeS + 2H^+$

La présence de FeS permet alors la formation de pyrite selon les équations [3, 4] :

(3) $FeS + S^0 \rightarrow FeS_2$ (Berner, 1970, 1984)

(4) $FeS + H_2S \rightarrow FeS_2 + H_2$ (Rickard, 1997 ; Rickard et Luther, 1997)

Ces sédiments contenant pyrite et matière organique sont subductés et métamorphosés lors de l'orogénèse transhudsonienne (THO). La matière organique est graphitisée jusqu'à transformation complète en graphite (cf., Gr_1 – *Chapitre 1*) et la pyrite est recristallisée (Py_1). Dans les métasédiments, les deux minéraux opaques se trouvent généralement dans les mêmes plans de foliation (S1) et sont souvent associés (Figure 4.4-F). La pyrite possède une grande stabilité thermique à des pressions élevées (810 ± 5 °C à 5 kbar, Kullerud and Yoder, 1959) et une forte résistance physique, ce qui lui permet d'exister sous de nombreux faciès métamorphiques, excepté les plus extrêmes (Craig and Vokes, 1993 ; Craig et al., 1998). A MCS et WF, la Py_1 est présente partout sauf dans les premiers mètres / premières dizaines de mètres ayant subi une altération paléorégolithique, ainsi que dans les zones aux plus forts taux de fusion partielle (Figure

4.2 ; Figure 4.3). À la différence du graphite qui s'y trouve enrichi, la pyrite est absente dans les restites de fusion partielle. Il est proposé que les conditions atteintes lors de ce processus entraînent la déstabilisation du sulfure (Figure 4.11). Des différences de composition chimique dans les sédiments avant métamorphisme, concernant notamment les teneurs initiales en soufre, pourraient également expliquer les différences entre WF et MCS.

4.3.1.2 Pyrite hydrothermale dans les mylonites (Py_2)

Les mylonites de la zone de la WMTZ sont des roches déformées en régime ductile, pouvant être associées i) au métamorphisme prograde / pic de métamorphisme, ou ii) à des zones de cisaillement profondes liées à l'exhumation de l'orogène transhudsonienne (*Chapitre 1*). La pyrite (Py_2) apparait principalement le long des bandes de cisaillement, indiquant une précipitation syntectonique sous des conditions de déformation ductile (Figure 4.5 ; Figure 4.10C). La présence de veines à pyrite épaisses témoigne d'une forte mobilité du soufre lors de ces évènements de déformation et de conditions favorables à la précipitation massive de sulfures. Les veines de pyrite (Py_2) ne sont pas directement associées au graphite (Gr_2) bien que ces deux minéraux soient présents dans les mêmes structures. Les structures S-C portant Py_2 semblent venir après les structures S-C portant Gr_2 (Figure 4.5B), montrant que les mêmes intervalles mylonitiques ont permis les circulations de fluides différents (i.e., à dominante C lors de la précipitation de graphite et à dominante S lors de la précipitation de pyrite). Cependant, Py_2 et Gr_2 étant associés aux mêmes minéraux du rétrométamorphisme (Figure 4.9), ces épisodes hydrothermaux successifs ont eu lieu lors d'un même évènement géodynamique à des conditions P-T similaires.

4.3.1.3 Pyrite hydrothermale dans les cataclasites (Py3)

Les pyrites hydrothermales des cœurs de faille ductile-fragile et fragile apparaissent automorphes ou sub-automorphes et peuvent croitre jusqu'à des tailles centimétriques (Figure 4.6 ; Figure 4.7 ; Figure 4.8). Les pressions élevées des cœurs de failles augmentent la solubilité des espèces soufrées telles que HS^- ou S_3^- dans les fluides hydrothermaux (Pokrovski and Dubessy, 2015), constituant des ligands pour différents métaux tels que Fe, Cu, Ni et facilitant la précipitation de pyrites. Une diminution soudaine de la pression du fluide associée à la formation de ces objets structuraux peut entrainer une saturation rapide de ces éléments puis leur

cristallisation via la pyrite. Les surcroissances en Ni, Pb et Se sur les pyrites (Figure 4.7 E-F) témoignent des différents épisodes de réactivation de faille.

La croissance de grains de pyrites automorphes dans les cœurs de faille peut nécessiter un site de nucléation (Graham et Ohmoto, 1994). Les failles de type cataclasite ont affecté les métasédiments et les mylonites, où se trouvent respectivement Py_1 et Py_2, entraînant la remobilisation des cristaux dans les matrices de cataclasite et créant ainsi des sites de nucléation propices à la croissance de Py_3 (par ex. Figure 4.8C).

Ce type de pyrite se trouve également en remplissage de fractures à proximité (quelques dizaines de centimètres maximum) des cœurs de faille (Figure 4.6 A et D ; Figure 4.10D), mais disparaît à mesure que l'on s'en éloigne. Le graphite hydrothermal (Gr_2) n'a pas le même comportement et peut se trouver en remplissage de fractures éloignées de plusieurs dizaines de mètres des cœurs de faille.

4.4 Lien génétique entre graphite hydrothermal et pyrite hydrothermale

Py_2 et Gr_2 sont liés par la structure qui les porte (i.e., mylonite) mais ne sont pas co-précipités. Aucune preuve n'indique une croissance simultanée de ces deux minéraux, le graphite (Gr_2) semblant même être en place avant la pyrite (Py_2). Cependant, sur une échelle de temps légèrement supérieure, les grands événements de déformation ayant permis la circulation des phases fluides responsables de leur précipitation peuvent être considérés comme synchrones.

Py_3 et Gr_2 sont liés par les structures qui les portent (i.e., cataclasite foliée et cataclasite) et sont parfois co-précipités, bien que Py_3 continue de précipiter après Gr_2. La déformation ductile-fragile des cœurs de faille favorise la croissance des pyrites (Py_3) tout en déformant et désorganisant le graphite (Gr_d) dans les stylolites (Figure 4.6D) et dans la matrice des cataclasites (Figure 4.7 A-B et D ; Figure 4.8 C-E).

La précipitation de la pyrite hydrothermale dans les zones de cisaillement ductiles (Py_2) et les zones de faille ductile-fragile (Py_3) est favorisée par l'environnement très réducteur créé par le graphite (Gr_2) déjà en place, ainsi que par le graphite (Gr_1) et la pyrite (Py_1) d'origine métasédimentaire remobilisés dans les cœurs de faille (Craw, 2002 ; Majumdar et al., 2020).

4.4.1 Comparaison entre MCS et WF

Les enrichissements en pyrite pré-Athabasca se concentrent principalement dans les zones de failles ductiles (mylonites) et ductile-fragiles (cataclasites), aussi bien à MCS qu'à WF. Il n'y a donc pas de différence notable entre les deux projets d'exploration, la pyrite étant localisée uniquement dans les cœurs de faille et sur quelques dizaines de centimètres autour, contrairement au graphite hydrothermal (Gr_2) se trouvant également dans les halos d'altération métasomatique jusqu'à plusieurs dizaines de mètres des cœurs de faille (cf. *Chapitre 1*).

À MCS et WF, les premiers mètres sous la discordance sont systématiquement dépourvus de pyrite. Cette absence de sulfures est associée à une altération oxydante intense dans cette zone, décrite par certains auteurs comme typique d'un paléorégolithe (par ex. Kotzer et al., 1992 ; Macdonald, 1980 ; Qiu et al., 2023). L'absence de pyrite dans les mylonites et cataclasites à moins de 20 m sous la discordance, pour des forages tels que WF-68-1, WF-82 ou WF-83 (Figure 4.3), alors que ces mêmes roches de faille sont enrichies en pyrite à plus de 20 m de sous la discordance, indique que l'altération oxydante paléorégolithique est survenue après les déformations ductile et ductile-fragile ayant précipité les pyrites (Py_2 et Py_3). Lorsque les métasédiments ne sont pas affectés par cette altération, ils contiennent de la pyrite (Py_1), plus abondante à WF (Figure 4.3) qu'à MCS (Figure 4.2). Cette différence pourrait s'expliquer par les conditions de fusion partielle plus intenses et possiblement les conditions P-T plus élevées (cf. *Chapitre 1*) subies lors du métamorphisme. Le domaine de stabilité de la pyrite durant le métamorphisme est en effet limité à environ 810 °C à 5 kbar (Kullerud and Yoder, 1959).

4.5 Zones de failles à pyrite analogues

Les processus responsables de l'enrichissement en pyrite et en graphite dans les zones de cisaillement ductiles de la WMTZ ressemblent fortement à ceux impliqués dans la formation

des gisements d'or orogéniques, tels que définis par Groves et al. (1998). Certains de ces processus sont liés à l'orogenèse transhudsonienne (THO) du Paléoprotérozoïque, comme dans la ceinture de roches vertes de Lynn Lake (Manitoba, Canada), où les minéralisations primaires en Au-Ag se localisent dans des zones de cisaillement mylonitisées dans un faciès métamorphique de schiste vert (Hastie et al., 2018). D'autres gisements aurifères du domaine de Flin Flon, également associés au THO, se sont formés entre 1791 ± 4 et 1760 ± 9 Ma, à des températures de 360 à 420 °C, dans des veines de quartz, pyrite et arsénopyrite affectées par des déformations ductile-fragiles (Ansdell and Kyser, 1992).

Ces conditions sont proches de celles observées dans les déformations du socle avant le dépôt du bassin de l'Athabasca (cf. *Chapitre 1*). Un échantillon de cataclasite, déformé dans des conditions analogues, montre en effet la présence d'or (cf. *Chapitre 1* - Figure 3.8C). Par ailleurs, certains auteurs ont documenté la coprécipitation de matière carbonée, de pyrite et d'or associé à la pyrite dans des failles similaires (Hu et al., 2017).

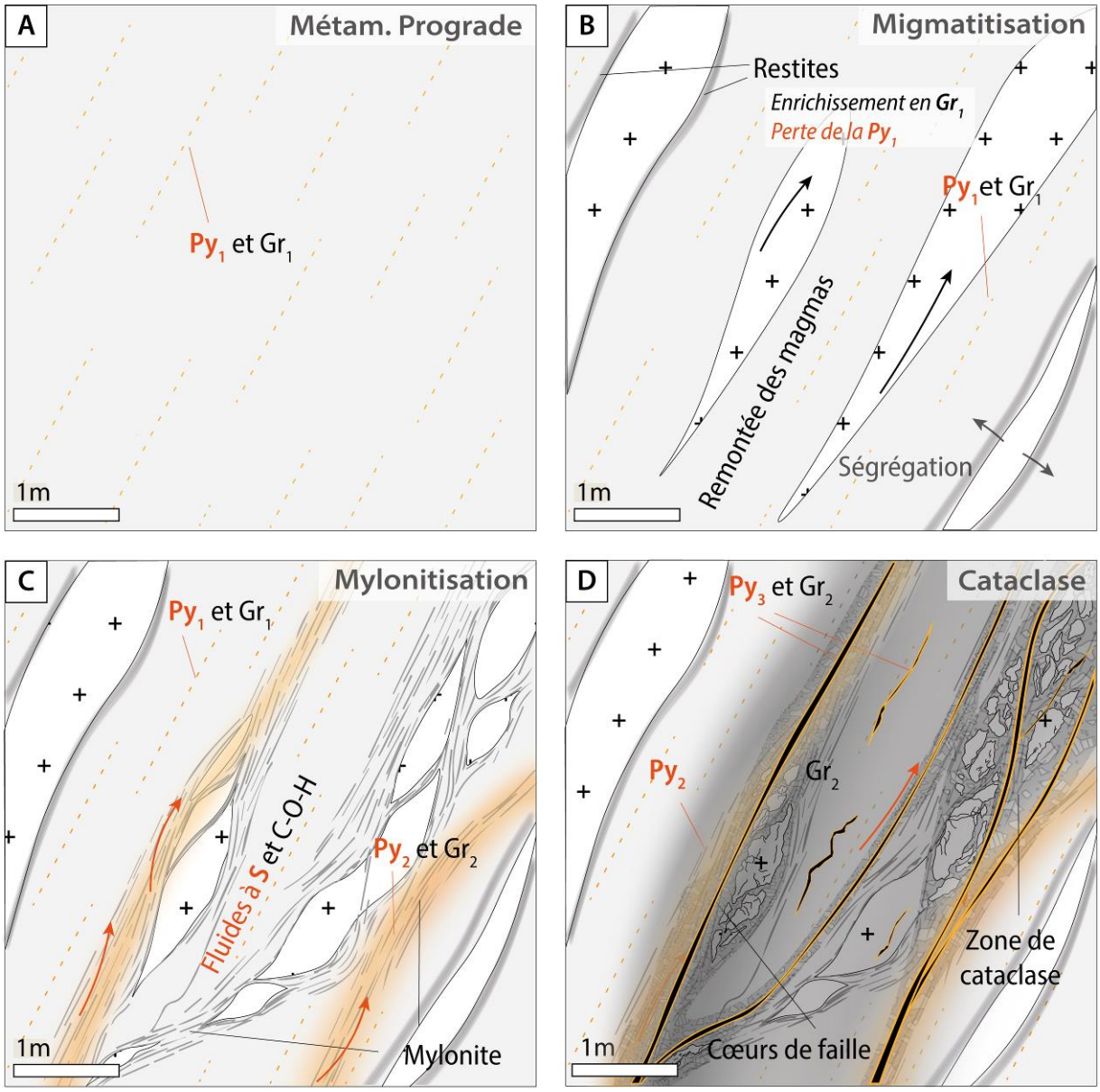


Figure 4.10 : Schémas des événements successifs jusqu'à l'enrichissement en pyrite dans les failles avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca. La chronologie des évènements suit la flèche colorée dans le diagramme P-T en Figure 4.11. A) Le métamorphisme prograde des sédiments paléoprotérozoïques riches en C et S a favorisé la graphitisation de la matière organique (Gr1) et la précipitation de pyrite (Py1, ligne orange hachurée). B) La fusion partielle a débuté avant le pic de métamorphisme et marque approximativement la limite supérieure du domaine de stabilité de la pyrite. La ségrégation des magmas à partir du protolithe métasédimentaire a conduit à la formation d'intervalles de restites enrichis en graphite (Gr1) mais où la pyrite a disparu. C-D : La phase d'exhumation durant le métamorphisme rétrograde permet le développement de structures de déformation i) ductiles (mylonite) et la précipitation de Py2 + Gr2 associées, ii) ductile-fragiles (cataclasites foliées et cataclasites) dans lesquelles précipitent Py3 + Gr2, et iii) fragiles (cataclasites et brèches de faille non cohésives) dans lesquelles précipitent Py3.

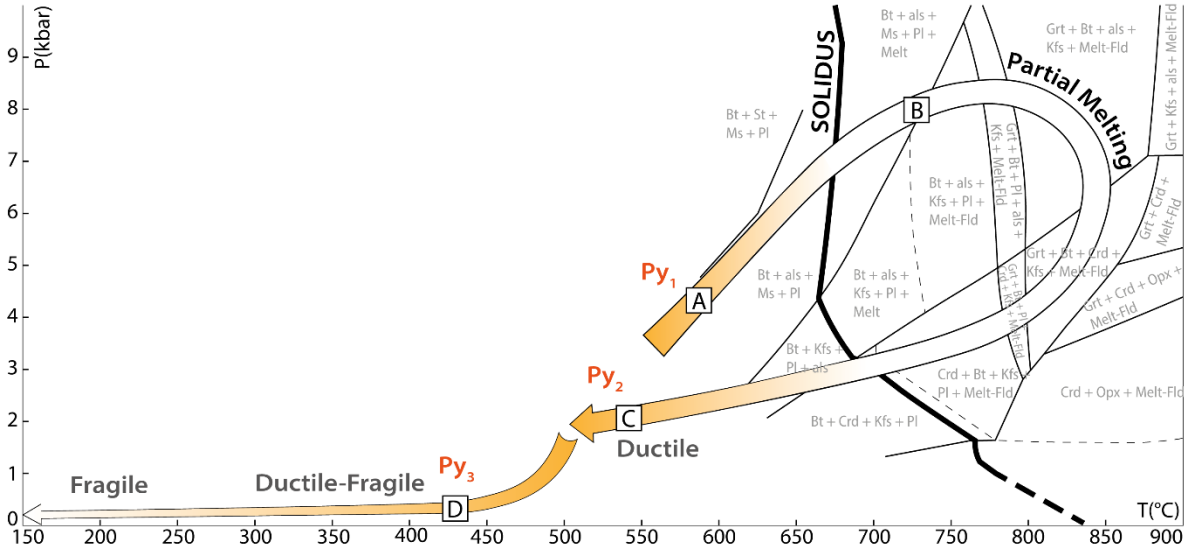


Figure 4.11 : Diagramme P-T estimé lors de l'évolution de l'orogenèse Trans-Hudson (THO, basé sur l'assemblage minéralogique, modifié d'après Annesley et al., 2005 ; Jeanneret et al., 2017 ; Martz et al., 2017), avec schémas de l'évolution de la zone de faille pendant le trajet prograde (A-B) et rétrograde (C-D) du métamorphisme. La pseudosection suprasolidus dans le système NCKFMASHTOC (+ Fld + Ilm + Q + Gr) est modifiée d'après Chu et Ague, 2013, avec des calculs pour les métapélites graphitiques en présence de CO_2. La courbe épaisse noire représente le solidus, et les courbes en pointillés dénotent les limites de saturation en fluide. Grt = grenat ; Q = quartz ; Bt = biotite ; Crd = cordiérite ; Pl = plagioclase ; St = staurotide ; als = aluminosilicate ; Ilm = ilménite ; Kfs = K-feldspath ; Fld = fluide C-O-H ; Ms = muscovite ; Opx = orthopyroxène ; Melt = magma silicatée. Py1 = pyrite métamorphique ; Py2 = pyrite hydrothermale dans les mylonites ; Py3 = pyrite hydrothermale dans les cataclasites ; Gr1 = graphite métamorphique ; Gr2 = graphite hydrothermal.

4.6 Conclusion

- Trois types de pyrite existaient dans la WMTZ avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca : i) une première pyrite (Py_1) d'origine sédimentaire puis métamorphosé lors du métamorphisme prograde engendré par l'orogénèse transhudsonienne, une deuxième pyrite (Py_2) hydrothermale précipitée dans les zones de cisaillement ductiles (i.e. mylonites) mises en place après le pic de métamorphisme en chemin rétrograde, et iii) une troisième pyrite (Py_3) hydrothermale formée dans les cœurs de faille ductile-fragiles et fragiles (i.e. cataclasites) montrant les plus gros cristaux ainsi que des textures automorphes.

- Py_1 est génétiquement et spatialement associée avec le graphite métamorphique (Gr_1) mais tend à disparaître dans les terrains de MCS ayant subi les plus hauts degrés de métamorphisme et fusion partielle.
- Py_2 se forme pendant la déformation ductile liée à l'exhumation de la THO, dans les plans de cisaillement des mylonites. Bien qu'elle se trouve dans les mêmes structures, elle n'est pas directement associée au Gr_2.
- Py_3 se forme durant la déformation ductile-fragile et fragile (c'est-à-dire dans les cataclasites foliées et les cataclasites, respectivement), dans les cœurs de faille où les contraintes sont maximales. Cette pyrite se développe avec une texture automorphe dans la matrice des roches de faille, sans nécessairement être associée à des veines. À l'instar de Py_2, elle n'est pas directement liée au Gr_2 et continue même de précipiter après le graphite.

.

Chapitre 3

Compositions isotopiques du carbone et du soufre dans les zones de cisaillement graphiteuses avant le dépôt du bassin de l'Athabasca : source(s) de ces éléments et conditions physico-chimiques pour leur précipitation

5 Introduction au chapitre 3

L'objectif de ce chapitre est d'apporter des contraintes sur les teneurs en carbone et soufre et leur composition isotopique dans les zones de cisaillement graphiteuses, en focalisant sur les minéraux formés avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca : graphite, dolomite et pyrite. Les lithologies et structures de déformation sous-jacentes aux minéralisations d'uranium de McClean South (MCS) et Waterfound (WF), situés dans la zone de transition Wollaston-Mudjatik (WMTZ), sont ciblés (Figure 2.3). Ce travail s'appuie sur les deux chapitres précédents qui ont caractérisé les porteurs de C et S dans cet environnement. Ce chapitre intègre les analyses des rapports isotopiques du carbone ($\delta^{13}C$) dans le graphite et les dolomites, du carbone et de l'oxygène ($\delta^{13}C$ et $\delta^{18}O$) dans les dolomites et du soufre ($\delta^{34}S$, $\delta^{33}S$ et $\Delta^{33}S$) dans les pyrites. Ces analyses sont couplées à des mesures multi-élémentaires en roche totale (dont C et S) de plusieurs échantillons représentatifs des différents types de lithologies et structures porteuses de carbone et de soufre. L'objectif est de réaliser un bilan géochimique et isotopique global du carbone et de soufre avant les dépôts sédimentaires du Bassin de l'Athabasca. Ces analyses visent à caractériser la composition isotopique initiale en carbone et soufre du socle et des structures associées pour ensuite qualifier et quantifier les mobilités de ces deux éléments, induites par les processus post-Athabasca synchrones ou postérieurs à la formation des minéralisations d'uranium.

5.1 Matériel et méthodes

5.1.1 Mesures du ^{12}C et ^{13}C dans les graphites et calcul du $\delta^{13}C$

Les rapports isotopiques du carbone des différents types de graphite caractérisés dans le *Chapitre 1* ont été mesurés in situ en utilisant la microsonde ionique CAMECA IMS 1270 E7 du Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques (CRPG) à Nancy. Un faisceau d'ions primaires Cs^+ de 2,5 nA, accéléré à 20,0 kV, a été focalisé sur un spot d'environ 20 µm de diamètre. La tension d'accélération de l'échantillon est réglée à -10,0 kV. Les masses ^{12}C et ^{13}C ont été détectées simultanément par un détecteur multi-collection et mono-collection, utilisant des amplificateurs avec résistances (L'2 à 10^{10} ohm pour le ^{12}C, FC2 à 10^{12} ohm pour le ^{13}C). L'intensité de mesure varie entre $1{,}8 \times 10^8$ et $9{,}3 \times 10^8$ cps sur le ^{12}C. Un indice de fractionnement de masse instrumental (IMF) est calculé pour le graphite en utilisant la composition du standard interne « Sri Lanka » possédant un $\delta^{13}C_{V\text{-}PDB}$ = -6,81‰. Ce standard a été analysé de façon systématique au cours des séances. La reproductibilité des mesures,

exprimée par l'écart-type de la série de données, est strictement inférieure à 0,36 ‰ pour l'ensemble des sessions analytiques sur le carbone dans le graphite (Table 5.1). La précision analytique interne sur les valeurs de $\delta^{13}C$ des échantillons pour l'ensemble des sessions varie entre 0,10 ‰ et 0,50 ‰ avec pou moyenne 0,14 ‰. La valeur de $\delta^{13}C$ d'un échantillon est calculée telle que :

$$\boldsymbol{\delta^{13}C} = \left(\frac{(^{13}C/^{12}C)_{\,échantillon}}{(^{13}C/^{12}C)_{V-PDB}} - 1 \right) \times 1000$$

5.1.2 Mesures du ^{12}C et ^{13}C, et ^{16}O et ^{18}O dans la dolomite

Les rapports isotopiques de l'oxygène et du carbone ont été mesurés dans les dolomites provenant du socle et formées avant le dépôt du bassin. Une description minéralogique des dolomites et de leur contexte de formation vis-à-vis des graphites est donnée plus bas dans ce chapitre. Les mesures ont été réalisées sur le même appareil avec un faisceau d'ions primaires Cs+ de 2,5 nA, accéléré à 10,0 kV, focalisé sur un spot d'environ 20 µm de diamètre. Les masses ^{16}O et ^{18}O pour l'oxygène, et ^{12}C et ^{13}C pour le carbone, ont été détectées par un détecteur multi-collection (Faraday cup). Un IMF est calculé pour la dolomite en utilisant les compositions d'un standard développé en interne au CRPG dont les valeurs de référence sont les suivantes : $\delta^{18}O_{V\text{-}SMOW}$ = 20.04‰ et $\delta^{13}C_{V\text{-}PDB}$ = 3.56‰. Ce standard a été analysé de façon systématique au cours des séances. La reproductibilité des mesures, exprimée par l'écart-type de la série de données, est de 0,22 ‰ pour les analyses sur l'oxygène et 0,66 ‰ pour les analyses sur le carbone dans la dolomite (Table 5.1). La précision analytique interne sur les valeurs de $\delta^{18}O$ des échantillons de dolomite varie entre 0,14 ‰ et 0,24 ‰. De même, pour les valeurs de $\delta^{13}C$ de la dolomite, la précision analytique interne varie entre 0,29 ‰ et 0,57 ‰ avec en moyenne 0,45 ‰. La valeur de $\delta^{18}O$ 'un échantillon est calculée telle que :

$$\boldsymbol{\delta^{18}O} = \left(\frac{(^{18}O/^{16}O)_{\,échantillon}}{(^{18}O/^{16}O)_{V-SMOW}} - 1 \right) \times 1000$$

5.1.3 Mesures ^{32}S, ^{33}S et ^{34}S dans la pyrite

Les rapports isotopiques du soufre dans les différentes générations de pyrite pré-Athabasca ont été mesurés in situ en utilisant le même appareil que pour les mesures précédentes. Un faisceau d'ions primaires Cs^+ de 2,5 nA, accéléré à 10,0 kV, a été focalisé sur un spot d'environ 20 µm de diamètre. La tension d'accélération de l'échantillon est réglée à -10,0 kV. Les masses $^{32}S^-$, $^{33}S^-$ et $^{34}S^-$ ont été détectées simultanément par un détecteur multi-collection (Faraday cup) utilisant les amplificateurs L'2 pour $^{32}S^-$ (résistance 10^{10} Ω), C pour $^{33}S^-$ (résistance 10^{11} Ω), H1 pour $^{34}S^-$(résistance 10^{11} Ω). L'intensité de mesure varie entre $5{,}0 \times 10^8$ et $1{,}5 \times 10^9$ cps sur $^{32}S^-$. Un IMF est calculé pour la pyrite en utilisant la composition du standard « Spain pyrite » possédant un $\delta^{33}S$ = -1.52‰ et un $\delta^{34}S$ = -2.95‰ (Kitayama et al., 2012). Ce standard a été analysé de façon systématique au cours des séances. La reproductibilité des mesures, exprimée par l'écart-type de la série de données, est strictement inférieure à 0,15 ‰ pour l'ensemble des sessions analytiques du soufre dans la pyrite (Table 5.1). La précision analytique interne sur les valeurs de $\delta^{33}S$ des échantillons pour l'ensemble des sessions varie entre 0,02 ‰ et 0,39 ‰ avec en moyenne 0,10 ‰. La précision analytique interne sur les valeurs de $\delta^{34}S$ des échantillons pour l'ensemble des sessions varie entre 0,02 ‰ et 0,72 ‰ avec en moyenne 0,07 ‰. Les valeurs de $\delta^{33}S$ et $\delta^{34}S$ sont calculées telles que :

$$\boldsymbol{\delta^{33}S} = \left(\frac{(^{33}S/^{32}S)_{\,sample}}{(^{33}S/^{32}S)_{VCDT}} - 1 \right) \times 1000$$

$$\boldsymbol{\delta^{34}S} = \left(\frac{(^{34}S/^{32}S)_{\,sample}}{(^{34}S/^{32}S)_{VCDT}} - 1 \right) \times 1000$$

L'isotope ^{33}S du soufre, moins abondant, est également rapporté en utilisant la notation delta majuscule (Δ), telle que :

$$\boldsymbol{\Delta^{33}S} = \delta'^{33}S - 0{,}515 \times \delta'^{34}S$$

Avec :

$$\boldsymbol{\delta'^{33}S} = \left(\frac{\ln(\delta^{33}S)}{1000} + 1 \right) \times 1000$$

$$\boldsymbol{\delta'^{34}S} = \left(\frac{\ln(\delta^{34}S)}{1000} + 1 \right) \times 1000$$

La valeur de 0,515 dans l'équation du $\Delta^{33}S$ définit la ligne de fractionnement de référence les effets d'échange isotopique à l'équilibre thermodynamique à basse température (Hulston and Thode, 1965).

Date	Type de séance	Durée	Nb pts	σ std. (‰)	Localisation
févr-22	32S, 33S et 34S - Pyrite	3 j	159	δ 33S = 0,053 δ 34S = 0,069	Cigar Lake - Sue D - Nikita
mai-22	12C et 13C - Graphite	5 j	380	δ 13C = 0,283	Cigar Lake
févr-23	12C et 13C - Graphite	5 j	393	δ 13C = 0,279	Cigar Lake - McClean South - Waterfound
juin-23	12C et 13C - Carbonates	2,5 j	89	δ 13C (sid) = 1,196 δ 13C (dol) = 0,658	Cigar Lake - McClean South - Waterfound
juin-23	16O et 18O - Carbonates	2,5 j	102	δ 18O (sid) = 1,134 δ 18O (dol) = 0,222	Cigar Lake - McClean South - Waterfound
oct-23	32S, 33S et 34S - Pyrite	5 j	393	δ 33S = 0,112 δ 34S = 0,103	McClean South - Waterfound
déc-23	12C et 13C - Graphite	5 j	336	δ 13C = 0,355	Mc Clean South - Waterfound - Wheeler River - Hook Lake - Laurie Lake - Mirror River
mai-24	12C et 13C - Graphite	3 j	156	δ 13C = 0,237	McArthur River
août-24	32S, 33S et 34S - Pyrite	4 j	395	δ 33S = 0,106 δ 34S = 0,146	McClean South - Waterfound - McArthur River - Hook Lake - Laurie Lake

Table 5.1 : Tableau des différentes séances analytiques en sonde ionique sur graphite, pyrite et carbonates (sidérite et dolomite) avec les éléments mesurés, la durée des séances (en nombre de jours), le nombre de points de mesure réalisés, la reproductibilité des mesures sur le standard au cours de chaque session (σ std.) et la localisation des échantillons analysés.

5.1.4 Mesure des concentrations élémentaires en roche totale

Les teneurs en éléments majeurs (Table 5.2) et traces (Annexe 8), le carbone organique (C_{Org}) et inorganique ($CO_{2\ total}$), ainsi que le soufre (S_{total}) d'échantillons représentatifs des différentes lithologies et structures des zones de cisaillement graphiteuses ont analysés au Service d'Analyses des Roches et des Minéraux (SARM, CRPG, Vandœuvre-lès-Nancy, France). Le choix de ces échantillons a été fait pour faire un bilan le plus pertinent possible, en s'appuyant sur des échantillons décrits dans les chapitres 1 et 2, et pour dont les valeurs

isotopiques en C et S ont été mesurés *in-situ* pour certains. Afin de réaliser les mesures des concentrations élémentaires, les échantillons analysés ont été broyés par un concasseur à mâchoires et un broyeur à cylindres, homogénéisés, puis porphyrisés jusqu'à des granulométries de quelques dizaines de µm avec un broyeur planétaire en agate. Pour les éléments majeurs et en traces, l'échantillon en poudre est fusionné avec du métaborate de lithium ($LiBO_2$) puis dissout par de l'acide nitrique (HNO_3). Les éléments majeurs sont analysés par spectroscopie d'émission optique à plasma à couplage inductif (ICP-OES) et les éléments en traces par spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif (ICP-MS). Le carbone organique est mesuré après décarbonation à l'acide chlorhydrique (HCl), le graphite présent dans l'échantillon est dosé dans la mesure du C_{org}. Pour la méthodologie détaillée, se référer au site web du SARM (*https://sarm.cnrs.fr/index.html/*).

5.2 Résultats

5.2.1 Mesures des concentrations élémentaires en roche totale

Les analyses de concentrations élémentaires réalisées sur des échantillons de roche totale provenant des lithologies (métasédiments, métasédiments altérés et roche magmatique) et des structures de déformation (faille pré-Athabasca : mylonites et cataclasites, et faille post-Athabasca : brèches non cohésives et gouges argileuses) du socle à MCS et WF (Table 5.2). Les données obtenues sur les concentrations en CO_2, H_2O, S et C_{org} mettent en évidence des tendances significatives selon les lithologies et structures (Table 5.2, Figure 5.1) :

- Les roches de faille pré-Athabasca (cf. *Chapitre 1* et *Chapitre 2*) présentent des teneurs élevées en CO_2, atteignant 20,8 % dans *SueD_Muon_225*, reflétant une forte proportion de phases carbonatées. Les concentrations en C_{org} varient de 0,5 % à 4,0 %, témoignant concentrations variables en graphite. Les teneurs en H_2O varient entre 1,4 % et 9,2 %, et les concentrations en S montrent une forte variabilité, allant de 0,0 % dans certains échantillons à 2,9 % dans *WF-69_547,4*.

- Les roches de faille post-Athabasca montrent des concentrations plus faibles en CO_2, généralement inférieures à 5 %, à l'exception de *MCS-35C_225,9* qui atteint 11,7 %. Les teneurs en H_2O sont élevées, comprises entre 1,7 % et 5,9 %, tandis que les concentrations en S varient de 0,1 % à 4,3 %. Le C_{org} est globalement faible, proche de 1,0 %, bien que quelques enrichissements localisés soient notables (par ex, 3,3 % dans *MCS-35C_225,9*).

- Les métasédiments altérés, comme *MCS-57_177,3* et *MCS-44_201*, présentent des concentrations très élevées en CO_2 (30,7 % et 13,3 %, respectivement) et en C_{org} (8,6 % et 3,9 %). Les métasédiments non altérés, tels que *WF-67_503,9*, montrent des teneurs beaucoup plus faibles, inférieures à 1 % pour CO_2 et C_{org}. Les niveaux en H_2O sont élevés dans l'ensemble des métasédiments, atteignant 8,0 % pour *WF-67_571,4*. Les concentrations en S sont globalement faibles et varient entre 0 % et 0,5 %.

- Les roches magmatiques, comme *WF-68_498,5* et *MCS-57_211,5*, montrent des teneurs extrêmement faibles en CO_2 (< 0,1 %), en Corg (< 0,1 %) et en S (< 0,1 %). Les concentrations en H_2O sont plus élevées et atteignent 5,9 % dans *WF-68_498,5*.

Toutefois, il n'apparaît pas de corrélation évidente entre quantité de graphite (directement liée à la concentration de C_{Org}) et quantité de pyrite (concentration S) dans les lithologies et structures, à l'exception des failles pré-Athabasca, où une corrélation positive pourrait être envisagée (Figure 5.2).

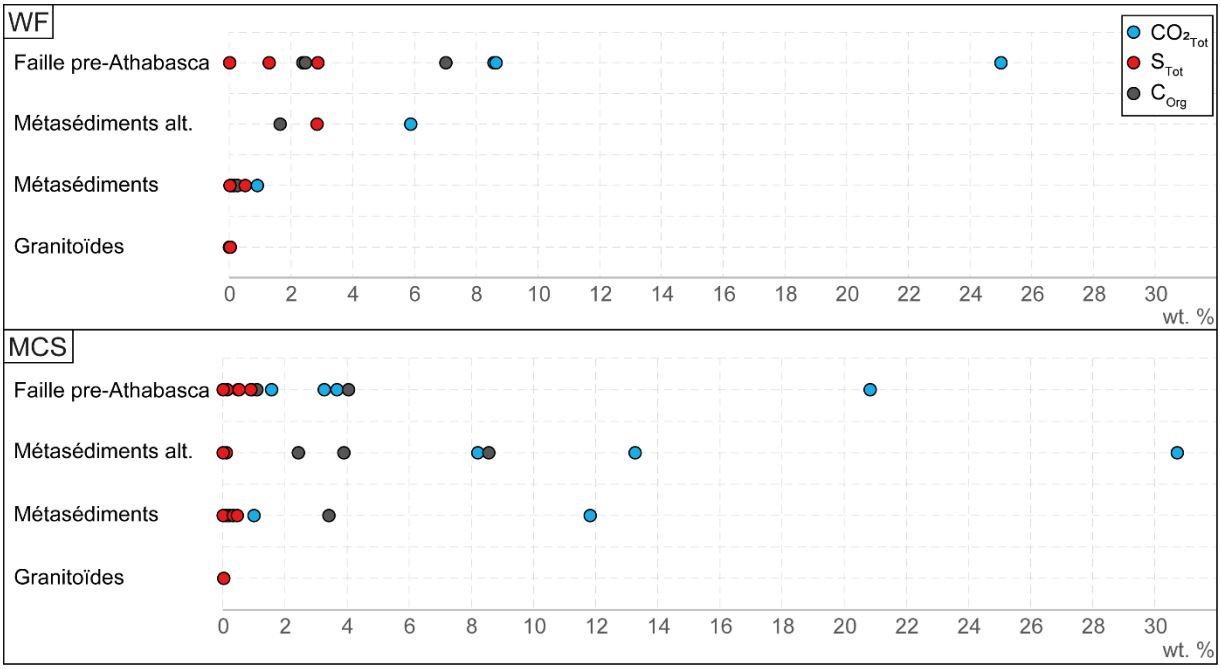


Figure 5.1 : Diagrammes des valeurs de concentration en roche totale du CO_2 (bleu), S (rouge) et C (noir) par lithologie ou structure à WF (en haut) et MCS (en bas) selon les données présentées dans le Table 5.2.

Echantillon	Lithologie / Structure	CO_2	H_2O	S	C_{org}	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MnO	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O	PF	Total	Isotopie
		%				%												
MCS-01_321.6	Faille pré-Athabasca	3.3	1.2	0.1	0.9	89.0	4.2	1.3	< L.D.	0.6	0.1	< L.D.	1.1	0.2	0.1	2.4	99.0	
MCS-01_324	Faille post-Athabasca	0.3	1.7	0.1	0.1	84.7	7.8	0.7	< L.D.	0.9	0.2	0.0	2.2	0.1	0.1	2.1	98.8	
MCS-01_374.6	Faille post-Athabasca	7.8	3.7	0.0	2.2	72.1	11.3	3.6	0.0	2.9	0.2	0.0	2.3	0.5	0.2	5.9	99.0	
MCS-34_229.9	Métasédiments	1.0	5.5	0.3	0.3	63.6	19.2	1.1	< L.D.	4.4	0.1	0.0	3.5	0.9	0.1	6.5	99.5	
MCS-34_271.6	Faille post-Athabasca	0.3	3.0	0.2	0.1	72.5	13.6	1.3	< L.D.	2.4	0.1	0.2	5.9	0.1	0.1	3.7	100	
MCS-34_273.7	Métasédiments alt.	8.2	4.7	0.1	2.4	63.0	16.5	1.8	< L.D.	4.7	0.2	0.1	5.0	0.2	0.2	7.2	98.9	Gr.
MCS-35C_225.9	Faille post-Athabasca	11.7	4.4	0.1	3.3	65.8	15.6	1.2	< L.D.	4.1	0.2	0.0	3.3	0.8	0.2	7.7	99.0	
MCS-35C_228A	Faille pré-Athabasca	3.7	1.4	0.9	1.1	85.9	5.7	1.4	< L.D.	0.6	0.1	< L.D.	1.7	0.3	< L.D.	3.1	98.8	Gr.
MCS-35C_228B	Faille pré-Athabasca	1.6	1.8	0.5	0.5	82.1	9.3	1.2	< L.D.	0.8	0.1	0.0	2.8	0.1	< L.D.	2.9	99.3	Py.
MCS-35C_240.8	Métasédiments	11.8	6.0	0.5	3.4	61.3	15.7	4.0	0.0	7.0	0.2	< L.D.	1.6	0.7	0.1	9.4	100	Gr + Py.
MCS-41_212.4	Métasédiments	0.2	4.6	0.0	0.1	60.7	19.6	4.9	0.0	4.1	0.1	0.1	4.9	1.2	< L.D.	4.6	100	
MCS-44_201	Métasédiments alt.	13.3	5.2	0.1	3.9	64.3	16.4	1.1	< L.D.	4.1	0.1	0.0	3.2	0.9	< L.D.	9.0	99.1	
MCS-57_177.3	Métasédiments alt.	30.7	5.3	0.0	8.6	61.4	12.4	3.3	0.0	5.8	0.2	< L.D.	1.1	0.7	< L.D.	14.2	99.1	Gr.
MCS-57_211.5	Roche magmatique	0.0	3.7	0.0	0.0	79.5	10.5	0.5	< L.D.	3.2	0.1	0.0	1.7	0.1	< L.D.	4.2	99.8	
SueD_Muon_225	Faille pré-Athabasca	20.8	3.0	0.0	4.0	59.0	12.4	0.4	0.1	2.9	8.0	0.1	2.0	0.8	0.1	13.4	99.2	Gr.
WF-67_493.8	Faille pré-Athabasca	0.1	9.2	0.0	0.0	56.6	25.6	2.0	< L.D.	3.1	0.0	< L.D.	1.7	1.5	< L.D.	9.5	99.9	
WF-67_503.9	Métasédiments	0.2	4.1	0.0	0.1	61.2	17.6	8.0	0.0	3.0	0.0	0.1	5.1	1.2	< L.D.	4.2	100	
WF-67_571.4	Métasédiments	0.9	8.0	0.5	0.3	44.9	24.1	9.8	0.3	6.1	0.1	0.2	4.6	1.1	< L.D.	8.4	99.7	Gr. + Py
WF-68_498.5	Roche magmatique	0.0	5.9	0.0	0.0	65.6	18.2	4.5	0.0	2.8	0.0	0.0	2.0	0.6	0.1	6.1	100	
WF-68-01_504	Faille post-Athabasca	0.1	5.9	0.0	0.0	61.7	15.5	3.3	0.0	6.8	1.2	0.0	2.3	1.4	0.9	6.1	99.2	
WF-69_521.1	Métasédiments	25.0	6.5	0.0	7.0	41.4	26.8	2.8	< L.D.	5.4	0.2	0.1	6.2	3.0	0.1	13.8	99.8	
WF-69_541.1	Faille pré-Athabasca	8.6	5.6	1.3	2.4	58.3	11.9	11.4	0.1	6.5	0.7	0.0	1.0	0.8	0.5	8.1	99.5	
WF-69_545.8	Faille post-Athabasca	4.6	4.0	4.3	1.3	66.1	10.3	9.1	0.0	3.8	0.1	0.1	1.4	0.6	< L.D.	8.2	99.8	
WF-69_547.4	Faille pré-Athabasca	8.6	5.8	2.9	2.5	51.8	18.2	10.6	0.1	4.4	0.2	0.1	3.8	1.3	< L.D.	9.4	99.7	
WF-69_555.4	Faille post-Athabasca	3.2	5.4	1.0	1.0	59.4	17.3	7.1	0.1	4.8	0.1	0.1	3.4	0.9	0.1	7.0	100	
WF-69_556.2	Métasédiments alt.	5.9	5.5	2.8	1.6	56.6	16.0	9.1	0.1	5.2	0.1	0.1	3.2	1.0	< L.D.	8.9	100	

Table 5.2 : Tableau des valeurs des concentrations en roche totale (en %) des échantillons triés selon la lithologie (métasédiments, métasédiments altérés et roche magmatique) ou le type de structure de déformation (faille pré-Athabasca et faille post-Athabasca), mesurées pour le CO_2, H_2O, S, Carbone organique (C_{org}) et pour les poids oxydes des éléments majeurs (PF = perte au feu). La dernière colonne (Isotopie) relève les échantillons où des mesures isotopiques in-situ ont été effectuées dans le (Gr.) ou dans la pyrite (Py.).

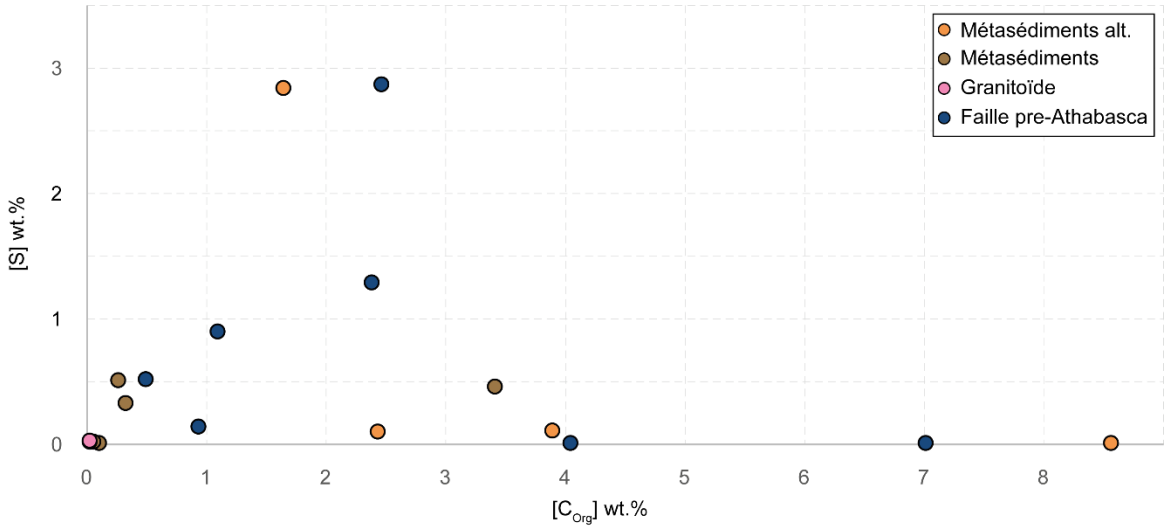


Figure 5.2 : [S] wt.% en fonction de [C_{Org}] wt.% pour MCS et WF, par lithologie et structure (orange = métasédiments affectés par l'altération liée au rétrométamorphisme, marron = métasédiments frais, rose = roche magmatique, bleu = faille pré-Athabasca).

5.2.2 Mesures du δ ^{13}C dans le graphite

Les échantillons ont été regroupés par projet d'exploration (i.e., MCS ou WF). Pour chacune des deux zones d'étude, les trois types de graphite (i.e., Gr_1, Gr_2 et Gr_d) définis dans le *Chapitre 1* ont été analysés.

Les mesures de $\delta^{13}C$ du Gr_1 obtenues à partir de 7 échantillons pour un total de 142 points (Figure 5.3 ; Table 5.3) révèlent des différences significatives avec des moyennes et des intervalles distincts entre les deux zones (Figure 5.4). Pour MCS, les valeurs de $\delta^{13}C$ du Gr_1 varient entre -27,46 ‰ et -19,25 ‰ (Figure 5.3 ; Figure 5.4 ; Table 5.3). La moyenne est de -23,71 ‰, avec un premier quartile (Q1) à -23,93 ‰ et un troisième quartile (Q3) à -22,87 ‰ (Figure 5.4 ; Table 5.3), ce qui suggère une distribution relativement concentrée autour de la moyenne, également mise en avant par le faible écart entre les quartiles, témoignant d'une homogénéité des valeurs $\delta^{13}C$ pour ce type de graphite au sein de cette zone d'étude. WF présente des valeurs de $\delta^{13}C$ pour le Gr_1 significativement plus faibles, avec un minimum de -32,08 ‰ et un maximum de -25,80 ‰ (Figure 5.3 ; Figure 5.4 ; Table 5.3). La moyenne y est de -28,22 ‰, indiquant une signature isotopique plus appauvrie en ^{13}C par rapport à MCS. Le Q1 est à -29,0 3‰ et le Q3 à -26,84 ‰ (Figure 5.4 ; Table 5.3), suggérant une plus grande variabilité qu'à MCS. Les différences entre les deux zones sont donc notables, avec en moyenne des valeurs de $\delta^{13}C$ environ 4,5 ‰ plus faibles à WF en comparaison avec MCS (Figure 5.4). Les mesures *in-situ* sur un même minéral de graphite ont été effectuées de

manière systématique sur chaque échantillon et ne montrent pas de variations significatives au sein d'un même grain de Gr_1.

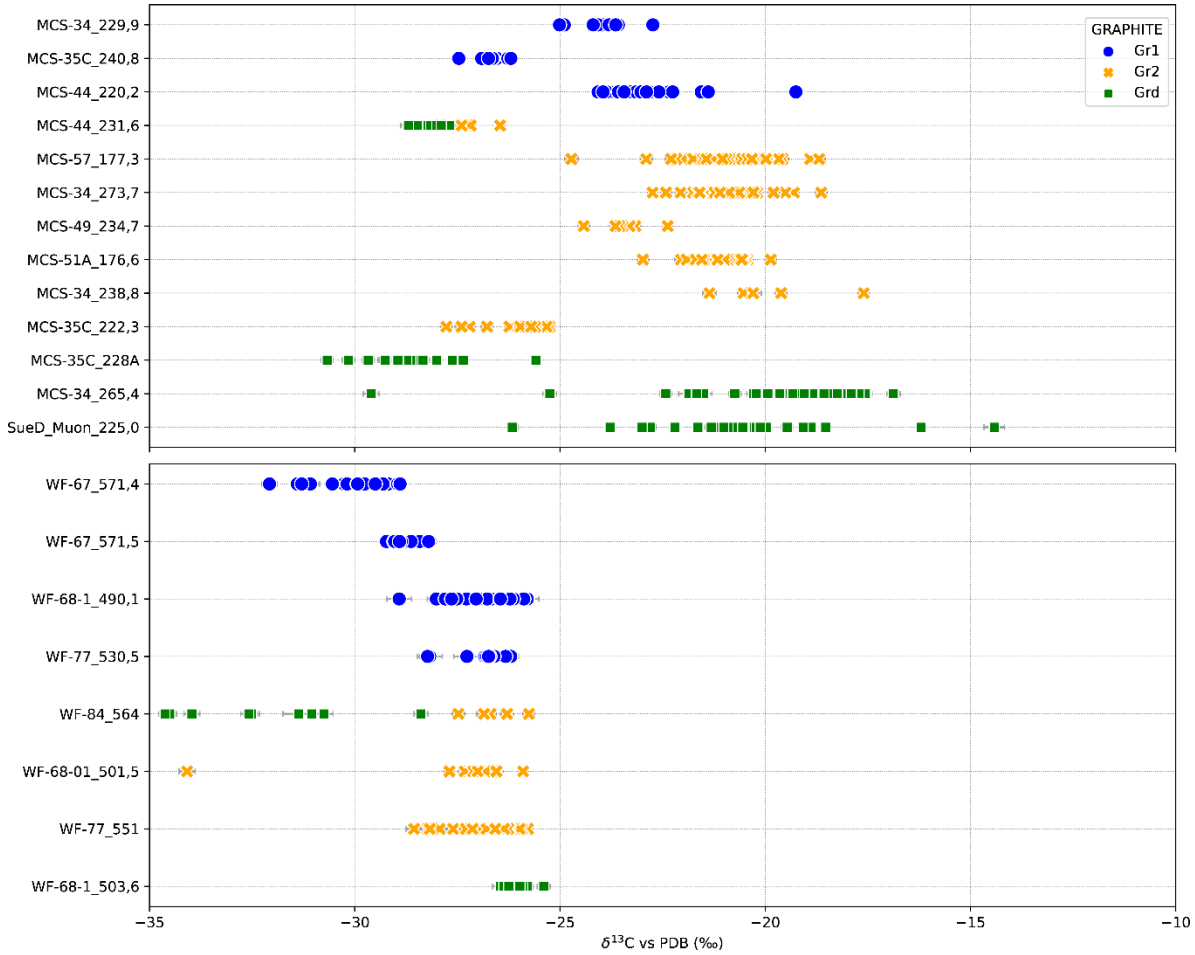


Figure 5.3 : Diagramme des valeurs de $\delta^{13}C$ par échantillon et par type de graphite (défini dans le Chapitre 1) à MCS (en haut) et WF (en bas) selon les données présentées dans la Table 5.3. Les ronds bleus correspondent au graphite métamorphique (Gr_1), les croix orange correspondent au graphite hydrothermal (Gr_2) et les carrés verts correspondent au graphite « désorganisé » (Gr_d).

Les mesures de $\delta^{13}C$ du Gr_2 ont été effectuées sur 11 échantillons pour un total de 340 points (Figure 5.3 ; Table 5.3). Les analyses isotopiques du Gr_2 montrent des signatures isotopiques contrastées selon les zones d'étude de MCS et WF. A McClean, les valeurs de $\delta^{13}C$ du Gr_2 varient de -27,91 ‰ à -17,60 ‰ (Figure 5.3 ; Figure 5.4 ; Table 5.3). La moyenne est de -21,59 ‰, avec un premier quartile (Q1) à -21,65 ‰ et un troisième quartile (Q3) à -20,57‰ (Figure 5.4 ; Table 5.3). Ces résultats révèlent une distribution isotopique relativement homogène pour la majorité des points de mesure, avec des valeurs concentrées autour de la moyenne. L'échantillon de cataclasite *MCS-35C_222,3* présente une moyenne de $\delta^{13}C$, et des valeurs centrées autour de cette moyenne, plus faibles que le reste des échantillons de la zone d'étude (Table 5.3). A WF, les valeurs de $\delta^{13}C$ sont plus faibles, variant entre -34,08 ‰

et -25,76 ‰ (Figure 5.3 ; Figure 5.4 ; Table 5.3). La moyenne pour cette zone est de -26,93 ‰, ce qui révèle un graphite hydrothermal plus appauvri en ^{13}C qu'à McClean. Le Q1 est à -27,15 ‰ et le Q3 à -26,55 ‰ (Figure 5.4 ; Table 5.3), suggérant une plus grande homogénéité dans les valeurs isotopiques du Gr_2. La différence moyenne entre les deux projets d'exploration est de près de 5‰ (Figure 5.4). Les mesures au sein de même grains de Gr_2 montrent des différences de valeurs de $\delta^{13}C$ inférieures à 2 ‰.

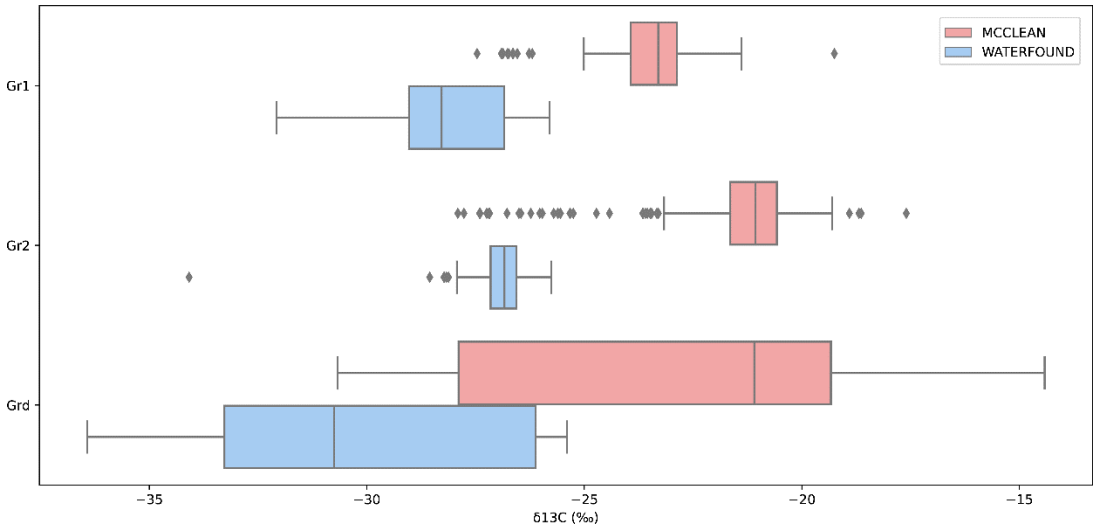


Figure 5.4 : Diagramme en boîtes à moustache des valeurs de δ13C par type de graphite (définis dans le Chapitre 1) et par projet d'exploration (MCS en rouge et WF en bleu) à partir des données présentées dans la Table 5.3. La première ligne correspond aux valeurs de δ13C du graphite métamorphique (Gr1), la deuxième à celles du graphite hydrothermal (Gr2) et la dernière à celles du graphite « désorganisé » (Grd). Une boîte à moustache représente 95% des valeurs, le reste étant représenté par des losanges gris sur la même ligne. De la gauche vers la droite : valeur minimale, premier quartile, médiane, troisième quartile, valeur maximale.

Les mesures sur Gr_d ont été faites sur 5 échantillons pour un total de 80 points (Figure 5.3 ; Table 5.3). Les analyses isotopiques à MCS et WF révèlent encore une fois des différences marquées entre les deux zones. Les valeurs de $\delta^{13}C$ à MCS varient entre -30,67 ‰ et -14,42 ‰, avec une moyenne de -23,78‰ (Figure 5.3 ; Figure 5.4 ; Table 5.3). Le premier quartile (Q1) est à -27,89 ‰ et le troisième quartile Q3 à -19,30 ‰, montrant une très large gamme de valeurs (Figure 5.4 ; Table 5.3). Les échantillons de brèche de faille non cohésive *MCS-34_265,4* et *SueD_Muon_225* présentent la plus large distribution de valeurs de $\delta^{13}C$ (Table 5.3) pour ce type de graphite, incluant à la fois le graphite le plus appauvri et le plus enrichi en ^{13}C. Pour WF, les valeurs de $\delta^{13}C$ sont globalement plus faibles, oscillant entre -36,43 ‰ et -25,40 ‰. La moyenne est de -29,98 ‰, le Q1 est à -33,97 ‰ et le Q3 à -25,99 ‰ (Figure 5.4 ; Table 5.3). Les mesures réalisées au sein d'un même échantillon révèlent une

forte dispersion des valeurs. En raison des cristallites de graphite Gr_d, de très petite taille, le spot d'analyse ne permet généralement pas de réaliser plusieurs mesures sur un même grain.

Echantillon	Lithologie et/ou structure	n	δ 13C (‰)						Graphite type / texture
			Min	Q1	Moy	Q3	Max	Err (± 2σ)	
MCS-34_229,9	Gneiss pélitique migmatisé	10	-25	-24.2	-23.9	-23.6	-22.7	0.01	Graphite métamorphique (Gr1) orienté dans la foliation.
MCS-34_238,8	Roche de faille non cohésive	6	-21.4	-20.5	-20.0	-19.8	-17.6	0.02	Graphite hydrothermal (Gr2) en fractures dans un granitoïde affecté par une faille post-Athabasca riche en illite.
MCS-34_265,4	Roche de faille non cohésive	33	-29.6	-20.7	-19.9	-18.5	-16.9	0.01	Graphite désorganisé (Grd) dans un gneiss affecté par une faille post-Athabasca riche en illite.
MCS-34_273,7	Pegmatoïde	62	-22.7	-21.4	-20.9	-20.5	-18.6	0.00	Graphite hydrothermal (Gr2) en remplissage de fracture dans une pegmatite, associé avec muscovite et chlorite Fe-Mg.
MCS-35C_222,3	Roche de faille cohésive	13	-27.8	-26.8	-26.2	-25.5	-25.3	0.01	Protocalaclasite dans un leucosome avec plans de dissolution riches en graphite hydrothermal (Gr2).
MCS-35C_228A	Roche de faille cohésive	16	-30.7	-29.2	-28.5	-27.9	-25.6	0.03	Roche de faille ductile-fragile (intervalles de mylonite et cataclasite) avec de nombreux plans de dissolution à graphite désorganisé (Grd).
MCS-35C_240,8	Gneiss pélitique migmatisé	12	-28.7	-26.9	-26.9	-26.6	-26.2	0.04	Graphite métamorphique (Gr1) orienté dans la foliation.
MCS-44_220,2	Gneiss pélitique migmatisé	49	-24.1	-23.4	-23	-22.8	-19.3	0.00	Graphite métamorphique (Gr1) concentré dans une restite de fusion partielle.

Echantillon	Lithologie et/ou structure	n	δ 13C (‰)						Graphite type / texture
			Min	Q1	Moy	Q3	Max	Err (± 2σ)	
MCS-44_231,6	Roche de faille cohésive	20	-28.7	-28	-27.7	-27.4	-26.5	0.01	Gneiss pélitique recoupé par une cataclasite. Gr2 en bordure de la roche de faille et Grd dans la matrice.
MCS-49_234,7	Gneiss pélitique migmatisé	13	-24.4	-23.6	-23.4	-23.3	-22.4	0.01	Graphite métamorphique (Gr1) concentré dans une restite de fusion partielle.
MCS-51A_176,6	Gneiss pélitique migmatisé	63	-23	-21.3	-21	-20.7	-19.9	0.00	Graphite hydrothermal (Gr2) dans un gneiss pélitique, recoupé par une veine de sidérite.
MCS-57_177,3	Gneiss pélitique	47	-24.7	-21.4	-20.8	-20.3	-18.7	0.01	Graphite hydrothermal (Gr2) en feuillets micrométriques à millimétriques, recoupé par des veines de dolomite.
SueD_225	Roche de faille non cohésive	24	-26.2	-21.4	-20.5	-19.9	-14.4	0.01	Graphite désorganisé (Grd) dans un gneiss affecté par une faille post-Athabasca riche en illite et chlorite.
WF-67_571,4	Gneiss pélitique migmatisé	18	-32.1	-30.5	-30.1	-29.4	-28.9	0.02	Graphite métamorphique (Gr1) dans une restite de fusion partielle avec biotite et grenat. Gr1 est altéré par un mélange de chlorite et phyllosilicates.
WF-67_571,5	Gneiss pélitique migmatisé	20	-29.2	-28.9	-28.7	-28.4	-28.2	0.01	Graphite métamorphique (Gr1) dans une restite de fusion partielle avec biotite et grenat.
WF-68-1_490,1	Gneiss pélitique	24	-28.9	-27.5	-27.0	-26.4	-25.8	0.02	Gneiss pélitique argilisé avec graphite métamorphique (Gr1) non altéré orienté dans la foliation métamorphique.

Echantillon	Lithologie et/ou structure	n	δ 13C (‰)						Graphite type / texture
			Min	Q1	Moy	Q3	Max	Err (± 2σ)	
WF-68-1_501,5	Roche de faille cohésive	19	-34.1	-27.2	-27.3	-26.7	-25.9	0.01	Veine de graphite hydrothermal (Gr2) dans un granitoïde à proximité d'une cataclasite.
WF-68-1_503,6	Roche de faille cohésive	8	-26.4	-26.3	-26.0	-25.9	-25.4	0.02	Graphite désorganisé (Grd) dans une matrice de cataclasite.
WF-77_530,5	Gneiss pélitique	10	-28.2	-27.2	-27.0	-26.6	-26.2	0.04	Graphite métamorphique (Gr1) orienté dans la foliation d'un gneiss pélitique peu altéré.
WF-77_551	Gneiss pélitique migmatisé	80	-28.6	-27.2	-26.9	-26.5	-25.8	0.01	Veine de graphite hydrothermal (Gr2) dans un gneiss pélitique au contact d'un granitoïde.
WF-84_564	Roche de faille cohésive	17	-36.4	-34.0	-30.6	-26.8	-25.8	0.03	Cataclasite dans une pegmatite avec graphite hydrothermal (Gr2) en rempllissage de fractures, et graphite désorganisé (Grd) dans des stylolites.

Table 5.3 : Valeurs de $\delta^{13}C$ pour différents échantillons de graphite à MCS et WF, triés par catégorie (lithologie ou structure) et type de graphite (définis dans le Chapitre 1).

5.2.3 Mesures du $\delta^{13}C$ et $\delta^{18}O$ dans la dolomite

La dolomite est présente en fractures traversant l'encaissant et n'étant pas forcément orientée dans la foliation métamorphique (Figure 5.5A), disséminée dans la matrice des cataclasites et associée structuralement à de la Py_3 (Figure 5.5B-D), et en fractures associée à du quartz dans des brèches hydrothermales proches de déformations cataclastiques majeures (Figure 5.5E-G). Elle ne présente pas d'association minérale particulière avec d'autre porteur de carbone (par ex, le graphite). Sa présence est nettement plus marquée à MCS qu'à WF.

Echantillon	Lithologie et structure	n	**$\delta^{13}C$**						**Commentaires**
			Min	Q1	Moy	Q3	Max	Err (± 2σ)	
MCS-01_356,6	Gneiss pélitique	27	-7.5	-6.1	-5.2	-4.3	-3.5	0.022	Veines et veinules de dolomite recoupant la foliation métamorphique.
MCS-05_256,3	Cataclasite	9	-14.2	-10.6	-10.1	-9.4	-6.2	0.035	Clastes de dolomite dans la matrice de la cataclasite.
MCS-31_191,9A	Brèche hydroth.	8	-9.4	-9.2	-8.7	-8.3	-7.7	0.051	Veine dans une brèche hydrothermale à quartz et dolomite.
WC-449_534,8A	Cataclasite	8	-9.3	-7.8	-7.3	-6.4	-5.9	0.052	Veine de dolomite au sein de la cataclasite.

Table 5.4 : Valeurs de $\delta^{13}C$ dans les dolomites de McClean South et Cigar Lake (absence d'échantillon pour Waterfound).

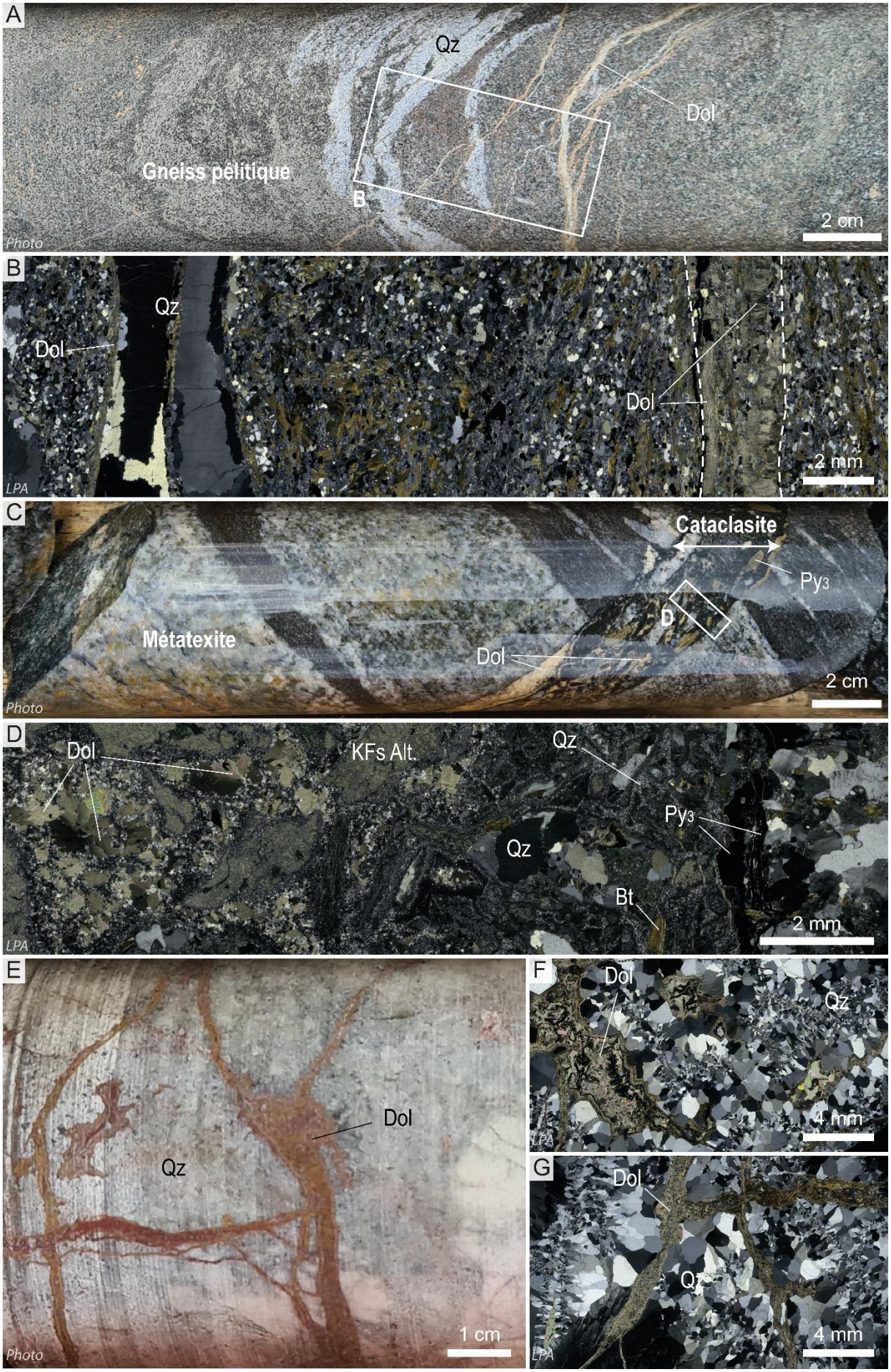

A
Qz
Dol
Gneiss pélitique
B
2 cm
Photo
B
Qz
Dol
Dol
2 mm
LPA
C
Cataclasite
Py3
D
Métatexite
Dol
2 cm
Photo
D
Dol
KFs Alt.
Qz
Py3
Qz
Bt
2 mm
LPA
E
Dol
Qz
1 cm
Photo
F
Dol
Qz
4 mm
LPA
G
Dol
Qz
4 mm
LPA

Figure 5.5 : A–B) Echantillon MCS-01_356,6. A : Gneiss pélitique recoupé par des veines orange/beige de dolomite (Dol) et des veines blanches de quartz (Qz). B : Image en lumière polarisée analysée (LPA) des différentes veines. C-D) Echantillon MCS-05_256,3. C : Métatexite recoupé par une cataclasite contenant de la dolomite (Dol) et de la pyrite (Py_3). D : Image en LPA de la matrice de la cataclasite. La dolomite y est abondante, la pyrite est sub-automorphe aux épontes. Du quartz, des feldspaths altérés (KFs Alt.) et des traces de biotite (Bt) composent également la matrice. E-G) Echantillon MCS-31_191,9. E : Brèche hydrothermale à quartz (blanc translucide et laiteux) et dolomite plus ou moins oxydée (orange à brun) en fractures. F, G : Images en LPA des fractures à dolomite et du quartz sub-automorphe dans la brèche hydrothermale.

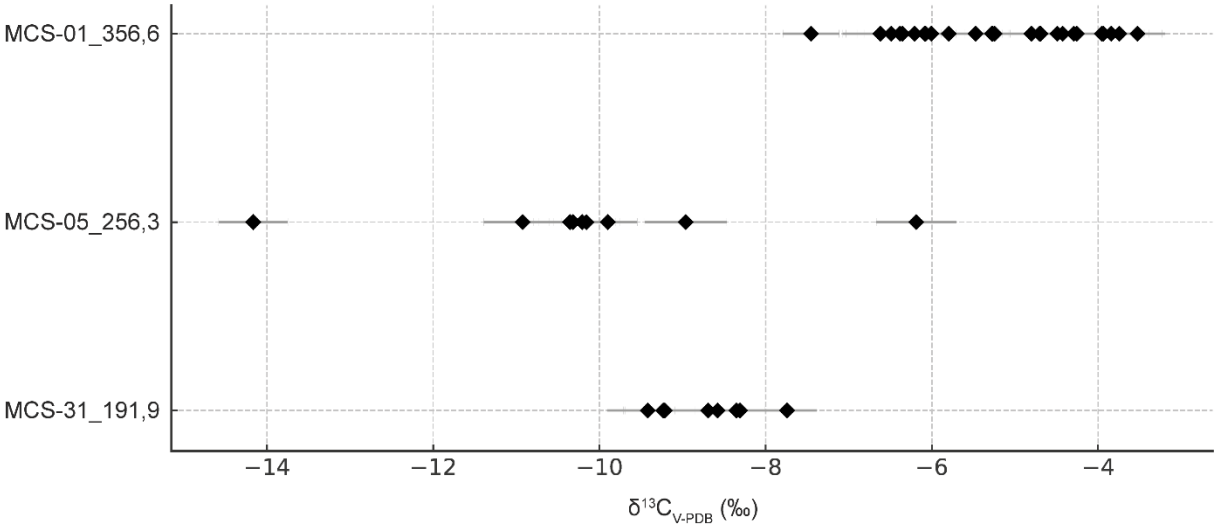


Figure 5.6 : Diagramme des valeurs de $\delta^{13}C$ de la dolomite à McClean South à partir des données présentées dans la Table 5.4. Les barres d'erreur pour chaque point sont représentées en un trait fin de la même couleur et correspondent à 2 écart-types.

Les mesures de $\delta^{13}C$ pour les échantillons de dolomite montrent une large gamme de valeurs, comprises entre -14.16‰ et -3.53‰ (Figure 5.6 ; Table 5.4). La moyenne des valeurs $\delta^{13}C$ est de -6.93‰. Le premier quartile (Q1) est de -8.66‰ et le troisième quartile (Q3) est de -5.25‰. Les mesures de $\delta^{18}O$ pour ces mêmes échantillons sont compilées en Annexe 9.

5.2.4 Mesures $\delta^{34}S$ et $\Delta^{33}S$ dans la pyrite (Py_1 à Py_3)

Un total de 117 données de $\delta^{34}S$ et $\Delta^{33}S$ dans la Py_1 ont été acquises. Les valeurs de $\delta^{34}S$ varient entre −1,45 ‰ et +10,79 ‰, avec une moyenne de +5,03 ‰. Le premier quartile (Q1) est à +4,48 ‰ et le troisième quartile (Q3) à +5,85 ‰, suggérant une distribution homogène autour de la moyenne (Figure 5.7, Table 5.5). Les valeurs de $\Delta^{33}S$ sont comprises entre −0,24 ‰ et +0,10 ‰, avec une moyenne de −0,05 ‰. Le Q1 est à −0,09 ‰ et le Q3 à +0,00 ‰, indiquant une distribution centrée autour de zéro (Figure 5.8, Table 5.5). Les valeurs de $\delta^{34}S$ et $\Delta^{33}S$ ne varient pas au sein de mêmes grains de pyrite.

Concernant la Py_2, 32 points de mesures ont pu être effectués. Les analyses isotopiques montrent des valeurs de $\delta^{34}S$ variant entre +6,12 ‰ et +13,20 ‰, avec une moyenne de +8,54 ‰. Le Q1 est à +6,45 ‰ et le Q3 à +11,35 ‰, suggérant une distribution relativement homogène autour de la moyenne (Figure 5.7, Table 5.5). Les valeurs de $\Delta^{33}S$ varient entre −0,24 ‰ et +0,16 ‰, avec une moyenne de −0,03 ‰. Le Q1 est à −0,11 ‰ et le Q3 à +0,04 ‰, montrant également une distribution centrée autour de zéro (Figure 5.8, Table 5.5). Un transect a été effectué pour la veine de pyrite de l'échantillon *WF-77_551*, ne montrant pas de variation $\delta^{34}S$ ni de $\Delta^{33}S$.

Les échantillons de Py_3 présentent une grande variabilité isotopique. Les valeurs de $\delta^{34}S$, mesurées en 84 points, varient entre −23,99 ‰ et +9,62 ‰, avec une moyenne de −2,76 ‰. Le Q1 est à −6,77 ‰ et le Q3 à +5,54 ‰ (Figure 5.7, Table 5.5) montrant une étendue de valeurs bien différente des deux premiers types de pyrite. Pour les échantillons *WF-68-1_501,5*, *WF-68-1_503,6* et *WF-84_564* les grains de pyrite montrent des fractionnements isotopiques très élevés, allant jusqu'à 25 ‰ pour *WF-84_564* (Figure 5.7, Table 5.5). Le $\Delta^{33}S$ pour la Py_3 montre une variation plus importante, avec des valeurs comprises entre −0,23 ‰ et +0,29 ‰ pour une moyenne de +0,01 ‰. Le Q1 est à −0,06 ‰ et le Q3 à +0,10 ‰ (Figure 5.8, Table 5.5).

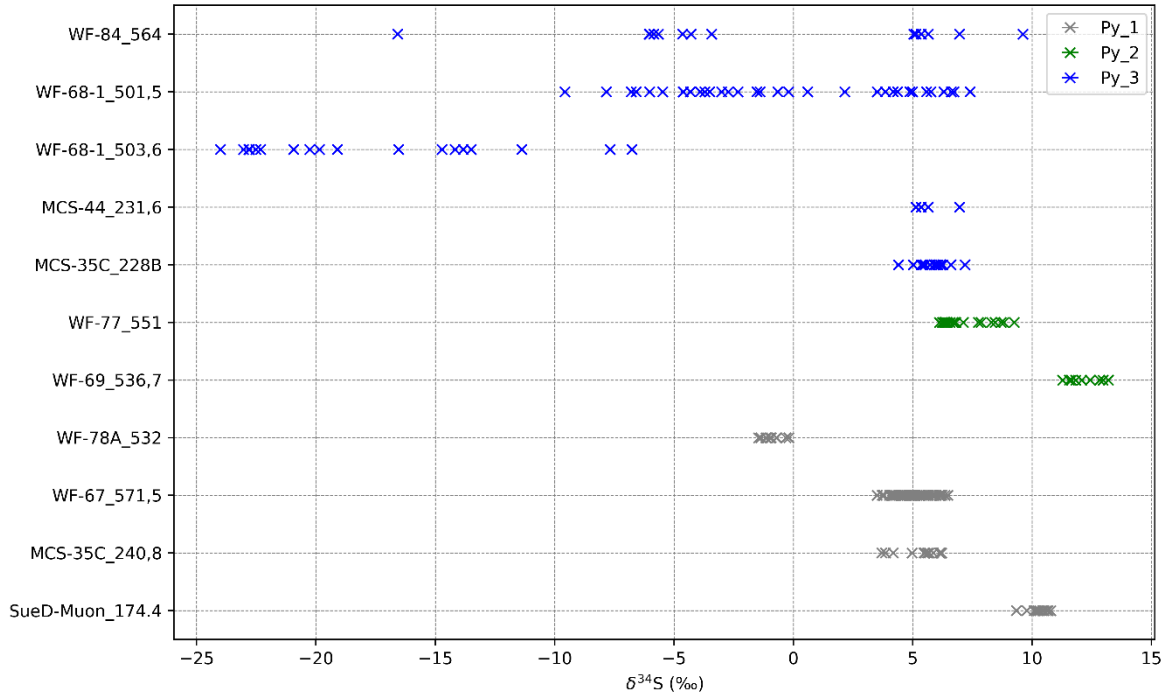


Figure 5.7 : Diagramme des valeurs de $\delta^{34}S$ par échantillon et par type de pyrite (défini dans le Chapitre 2) à MCS et WF selon les données présentées dans la Table 5.5. La couleur grise est attribuée à la pyrite méta-sédimentaire (Py_1), la couleur verte est attribuée à la pyrite hydrothermale dans les mylonites (Py_2) et la couleur bleue correspond à la pyrite hydrothermale dans les cataclasites (Py_3).

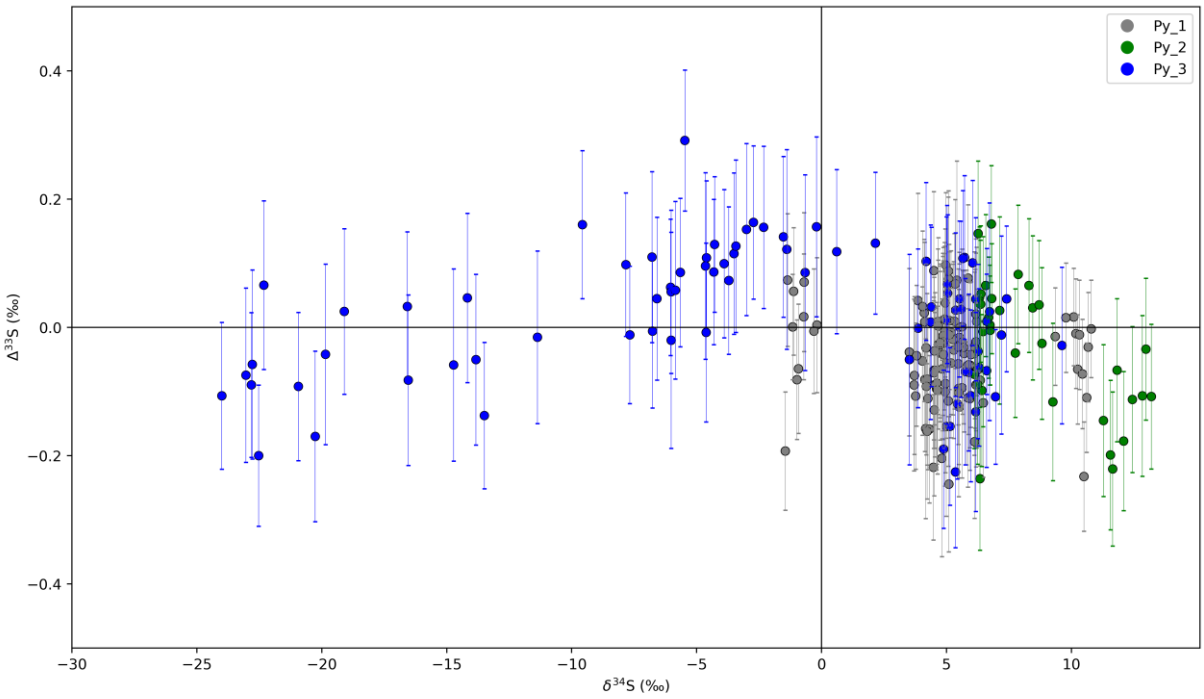


Figure 5.8 : Diagramme des valeurs de $\Delta^{33}S$ en fonction des valeurs de $\delta^{34}S$ par type de pyrite (définis dans le Chapitre 2) regroupant les deux projets d'explorations MCS et WF à partir des données présentées dans la Table 5.5. La couleur grise est attribuée à la pyrite méta-sédimentaire (Py_1), la couleur verte est attribuée à la pyrite hydrothermale dans les mylonites (Py_2) et la couleur bleue correspond à la pyrite hydrothermale dans les cataclasites (Py_3).

Echantillon	Lithologie et structure	n	δ ^{34}S (‰)						Δ ^{33}S (‰)						Observations
			Min	Q1	Moy	Q3	Max	Err (± 2σ)	Min	Q1	Moy	Q3	Max	Err (± 2σ)	
SueD-Muon_ 174,4	Gneiss pélitique	11	9.4	10.1	10.3	10.6	10.8	0.00	-0.23	-0.07	-0.05	-0.01	0.02	0.00	Gneiss pélitique à graphite (Gr_1) et pyrite (Py_1) orientés le long de la foliation métamorphique.
MCS-35C_ 240,8	Gneiss pélitique	15	3.7	5.2	5.4	6.0	6.2	0.00	-0.12	-0.04	-0.01	0.01	0.10	0.01	Grains de pyrite (Py_1) sub-automorphes orientés dans la foliation métamorphique.
WF-67_ 571,5	Gneiss pélitique	81	3.5	4.5	5.0	5.5	6.5	0.00	-0.24	-0.09	-0.05	-0.02	0.09	0.00	Veine massive centimétrique de pyrite (Py_1) orientée le long de la foliation métamorphique.
WF-78A_ 532	Gneiss pélitique	10	-1.5	-1.1	-0.9	-0.7	-0.2	0.00	-0.19	-0.05	-0.01	0.05	0.07	0.00	Grains de pyrite (Py_1) sub-automorphes orientés dans la foliation métamorphique.
MCS-35C_ 228B	Cataclasite	15	4.4	5.5	5.8	6.2	7.2	0.00	-0.13	-0.06	0.00	0.06	0.11	0.01	Grains de pyrite (Py_3) sub-automorphes dans la matrice de la cataclasite.
MCS-44_ 231,6	Cataclasite	4	5.1	5.3	5.8	6.0	7.0	0.00	-0.23	-0.17	-0.10	-0.05	0.11	0.01	Grains de pyrite (Py_3) fracturés dans la matrice de la cataclasite.
WF-68-1_ 501,5	Cataclasite	33	-9.6	-4.3	-0.4	4.4	7.4	0.00	-0.19	0.01	0.07	0.12	0.30	0.01	Veines millimétriques de pyrite (Py_3) remplissant des fractures dans la cataclasite.
WF-68-1_ 503,6	Cataclasite	18	-24.0	-22.5	-17.6	-13.9	-6.8	0.00	-0.14	-0.04	-0.02	0.01	0.13	0.01	Grains néoformés de pyrite automorphe (Py_3) associés à du quartz dans des bandes de déformation de cataclasite.
WF-84_ 564	Cataclasite	10	-16.6	-6.0	-3.8	-3.6	9.6	0.00	-0.03	0.05	0.07	0.09	0.13	0.01	Pegmatite cataclasée avec des fractures remplies de graphite (Gr_d) et de pyrite (Py_3).
WF-69_ 536,7	Mylonite	9	11.3	11.7	12.2	12.8	13.2	0.00	-0.20	-0.16	-0.11	-0.09	-0.01	0.00	Veine de pyrite (Py_2) cisaillée (textures de déformation S-C) orientée dans la foliation mylonitique.
WF-77_ 551	Mylonite	25	6.1	6.4	7.1	7.8	6.5	0.00	-0.24	-0.03	0.01	0.05	0.16	0.01	Veine massive centimétrique de pyrite (Py_2) orientée selon la foliation mylonitique.

Table 5.5 : Valeurs de $\delta^{34}S$, $\delta^{33}S$ et $\Delta^{33}S$ pour différents échantillons de pyrite à MCS et WF, triés par catégorie (lithologie ou structure) et type de pyrite (définis dans le Chapitre 2).

5.3 Discussion

5.3.1 Une composition isotopique initiale différente entre MCS et WF

La différence de valeurs de $\delta^{13}C$, de l'ordre de 5 ‰ en moyenne (Figure 5.4), observée entre le Gr_1 de MCS et le Gr_1 de WF peut indiquer deux scénarios : (i) une source de matière organique présentant initialement un $\delta^{13}C$ différent, correspondant à cet écart de valeurs ; (ii) des processus métamorphiques divergents ayant affecté les deux zones, ayant conduit à un fractionnement isotopique inégal entre les deux zones pour le graphite métamorphique (Gr_1).

Concernant la première hypothèse, la matière organique initialement piégée dans les sédiments du groupe de Wollaston aurait été principalement déposée dans un seul sous-groupe (Tran, 2001) à une période géologique où la diversité biologique était moindre (Aubineau, 2020), suggérant une homogénéité relative du vivant. Les valeurs de $\delta^{13}C$ de la matière organique au Paléoprotérozoïque sont généralement comprises entre -20‰ et -30‰, reflétant une activité biologique basée sur la photosynthèse (Schidlowski, 1988, 2001). Ces valeurs peuvent varier en fonction des groupes de plantes et de micro-organismes, mais sont en moyenne bien inférieures aux valeurs de $\delta^{13}C$ du CO_2 mantellique et du CO_2 provenant de carbonates marins, comprises respectivement entre -5‰ et -7‰ (Craig, 1953 ; Deines, 1992), et -5‰ et +5‰ (Dunn and Valley, 1992 ; Popp et al., 1986 ; Veizer et al., 1999) avec une valeur moyenne de 0‰ au Paléoprotérozoïque (Hoffman et al., 1998). Un parallèle peut être établi avec le Bassin de Franceville (Gabon), qui représente un analogue sédimentaire pertinent pour les gneiss du Wollaston, ayant également été déposé au début du Paléoprotérozoïque (ca. 2,1 Ga) mais n'ayant pas subi de métamorphisme. Ce bassin est constitué de plusieurs séries sédimentaires de grès et schistes noirs (Reynaud et al., 2018), et les analyses isotopiques du carbone dans la matière organique dans plusieurs formations sédimentaires de ce bassin révèlent des valeurs moyennes de $\delta^{13}C$ de -33,43 ‰ (Weber and Gauthier-Lafaye, 2013), de -32,94 ‰ ± 1,17 (1σ) (Aubineau et al., 2018), et entre -36,17 ‰ et -30,05 ‰ (Aubineau, 2020). Selon Weber et Gauthier-Lafaye (2013), une tendance vers des valeurs $\delta^{13}C$ plus négatives est corrélée avec une réduction de la bathymétrie, suggérant dans le cas analogue du Wollaston que les premiers environnements de dépôt auraient pu être relativement enrichis en ^{13}C. Néanmoins, les valeurs de $\delta^{13}C$ restant globalement stables sur plusieurs formations stratigraphiques, l'hypothèse d'une source unique de matière organique reste à privilégier. Par conséquent, les différences de $\delta^{13}C$ observées entre

MCS et WF seraient plus probablement attribuées à des processus métamorphiques distincts après le dépôt du protolithe sédimentaire des deux zones d'étude.

Les localisations des deux projets d'exploration par rapport à la géométrie de la WMTZ, révèlent une différence importante : WF se trouve en bordure extérieur tandis que MCS est dans une position plus centrale. Un haut degré de métamorphisme peut modifier la signature isotopique du carbone dans le graphite vers des valeurs plus lourdes avec l'augmentation de la température (Buseck and Beyssac, 2014 ; Hoefs and Frey, 1976 ; Wada et al., 1994). Du faciès amphibolite au faciès granulite, ce déplacement est estimé à ~ 5 ‰ (Barker and Friedman, 1969 ; Wada et al., 1994) et est probablement causé par la libération de méthane isotopiquement léger pendant le métamorphisme (Luque et al., 2012 ; Morikiyo, 1986). Ainsi, en considérant une source de matière organique unique dont le $\delta^{13}C \approx -33$ ‰, le Gr_1 à MCS ($\delta^{13}C = -23{,}71$ ‰) aurait subi un fractionnement isotopique du carbone de l'ordre de 10 ‰ durant le métamorphisme prograde, tandis qu'à WF ($\delta^{13}C = -28{,}22$ ‰) il ne serait que d'environ 5 ‰. Ces données isotopiques, en prenant comme référence le $\delta^{13}C$ de la matière organique du Bassin de Franceville pour le Gr_1, associées aux proportions de lithologies affectées par la fusion partielle détaillées dans le *Chapitre 1*, suggèrent un pic de métamorphisme de plus haut degré à MCS.

5.3.2 Fractionnement isotopique lors de la fusion partielle des lithologies à graphite (Gr_1)

Le Gr_1 est désormais considéré comme la source principale de carbone pour les mécanismes abordés ultérieurement. Il sert également de témoin des valeurs initiales de $\delta^{13}C$ dans les métasédiments, représentant un graphite qui n'a pas été altéré par les processus qui seront discutés par la suite. Lors de la fusion partielle d'une roche contenant du graphite, dans les systèmes à haute température (>700°C), la principal gaz libéré par la déstabilisation du graphite est généralement du CO_2 (**réaction 3.1** ; Huizenga and Touret, 2012 ; Martz et al., 2017) :

(**3.1**) $C + 2H_2O \rightarrow (CO_2)_A + 2H_2$

Holloway (1998) propose une production de CO_2 à partir du graphite impliquant le fer III présent dans le manteau ou dans les magmas (**réaction 3.2**), où *z* représente les moles de $(CO_2)_A$ produites :

(**3.2**) $zC + 2zFe_2O_3 = z(CO_2)_A + 4zFeO$

Ainsi, l'équation pour le δ¹³C du $(CO_2)_A$ issu de la déstabilisation du graphite à haute température en utilisant les coefficients de fractionnement de (Bottinga, 1969) pour des températures supérieures à 700°C (i.e., $\alpha_{CO_2-Gr} \approx 7{,}7$; Annexe 10) serait :

$$\delta^{13}C_{(CO_2)_A} = \delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{CO_2-C}$$

Si les réactions (**3.1**) et (**3.2**) ne sont pas complètes, un fractionnement opposé pourrait affecter le graphite non réagi. Aucun échantillon de graphite présentant des signes d'altération partielle à haute température n'a été observé. Étant donné que les fluides peuvent migrer sur de très longues distances, il est possible que ces échantillons n'aient pas été interceptés par les forages, qui ne traversent que quelques centaines de mètres sous la discordance. Une autre possibilité est que le graphite impliqué dans la génération du $(CO_2)_A$ ait été entièrement consommé au cours des réactions (**3.1**) et/ou (**3.2**). En utilisant les valeurs de δ¹³C moyennes du Gr_1 de chacune des deux zones d'études : à MCS, $\delta^{13}C_{(CO_2)_A} \approx -16$ ‰ et à WF, $\delta^{13}C_{(CO_2)_A} \approx -20{,}5$ ‰.

5.3.3 Fractionnement isotopique lors de la précipitation du graphite hydrothermal (Gr_2)

Le fractionnement isotopique du carbone entre les fluides et le graphite joue un rôle majeur dans les valeurs observées de $\delta^{13}C$. Le graphite précipité à partir de fluides riches en CO_2 présente généralement une signature isotopique plus lourde, avec des valeurs de $\delta^{13}C$ pouvant aller jusqu'à -15‰ (Luque et al., 2012). En revanche, le graphite précipité à partir de fluides riches en CH_4 montre des valeurs isotopiques plus légères, souvent plus proches de -30‰ à -40‰ (Luque et al., 2012). Dans la WMTZ, une source continue de CO_2 produit en profondeur via les réactions (**3.1**) et/ou (**3.2**) migre le long des zones de cisaillement au cours de l'orogénèse transhudsonienne (cf. *Chapitre 1*). Pour une température donnée, ce fluide initial (*fluide A*) généré par la déstabilisation du graphite métamorphique (Gr_1) conserve une composition isotopique stable. À haute température, le *fluide A* est majoritairement composé de CO_2. Lorsque ce fluide se refroidit entre 400 et 600 °C, l'équilibre chimique évolue : le *fluide A* devient *fluide B* et s'enrichit progressivement en CH_4 (Figure 5.9). Ce refroidissement induit une baisse de la fugacité de l'oxygène (fO_2), favorisant ainsi la formation de CH_4 (Huizenga, 2011 ; Martz et al., 2017). Ce mécanisme est particulièrement efficace dans les environnements réduits, où le potentiel redox favorise la réduction du CO_2 (Sabatier et Senderens, 1902).

L'évolution d'un fluide à CO_2 vers un fluide à CO_2 et CH_4 implique un fractionnement entre les isotopes du carbone de ce CO_2 initial (i.e., $(CO_2)_A$) et le nouveau fluide généré : le CH_4 s'enrichit en ^{12}C tandis que le CO_2 n'ayant pas été consommé (i.e., $(CO_2)_B$) s'enrichit en ^{13}C en comparaison au rapport initial $^{13}C/^{12}C$ du $(CO_2)_A$ (Figure 5.9). La réduction du (CO_2) par le Fe (II) et le H_2S (**3.3**) est également envisageable dans ces environnements très réducteurs où la pyrite (Py_1 dans les gneiss pélitiques et Py_2 dans les mylonites – *Chapitre 2*) est présente :

(**3.3**) $(CO_2)_A + 4Fe^{2+} + 4H_2S \rightarrow CH_4 + 4FeS + 2H_2O$

La réaction (**3.4**) est la plus communément acceptée (cf. *Chapitre 1* et références associées) afin de précipiter le graphite hydrothermal (Gr_2) :

(**3.4**) $CO_2 + CH_4 \rightarrow 2C + 2H_2O$

Ainsi, en utilisant les coefficients de fractionnement définis par Bottinga (1969) (Annexe 10), l'équation du $\delta^{13}C_{Gr_2}$ selon la réaction (**3.4**) exprimé en fonction de la proportion x de $(CO_2)_A$ issu du graphite métamorphique Gr_1 dans le fluide à 700°C, et de la température T (400, 500 et 600°C) de précipitation du graphite hydrothermal Gr_2 (Figure 5.10) s'écrit comme suit :

- $\delta^{13}C_{CO_2} = x\delta^{13}C_{(CO_2)_A} + (1-x)\delta^{13}C_{(CO_2)_B}$

  $\delta^{13}C_{(CO_2)_A} = \delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_T}$

  $\delta^{13}C_{(CO_2)_B} = \delta^{13}C_{(CO_2)_A} + \alpha_{(CO_2-CH_4)_T} = \delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_T} + \alpha_{(CO_2-CH_4)_T}$

  $\delta^{13}C_{CO_2} = x(\delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_T}) + (1-x)(\delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_T} + \alpha_{(CO_2-CH_4)_T})$

  $\boldsymbol{\delta^{13}C_{CO_2} = \delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_T} + (1-x)\alpha_{(CO_2-CH_4)_T}}$

- $\delta^{13}C_{CH_4} = \delta^{13}C_{(CO_2)_A} - \alpha_{(CO_2-CH_4)_T}$

  $\boldsymbol{\delta^{13}C_{CH_4} = \delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_T} - \alpha_{(CO_2-CH_4)_T}}$

- $\delta^{13}C_{Gr_2} = \frac{1}{2}(\delta^{13}C_{CO_2} - \alpha_{(CO_2-C)_T} + \delta^{13}C_{CH_4} + \alpha_{(C-CH_4)_T})$

  $\delta^{13}C_{Gr_2} = \frac{1}{2}(\delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_T} + (1-x)\alpha_{(CO_2-CH_4)_T} - \alpha_{(CO_2-C)_T} + \delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_T} - \alpha_{(CO_2-CH_4)_T} + \alpha_{(C-CH_4)_T})$

  $\boldsymbol{\delta^{13}C_{Gr_2} = \delta^{13}C_{Gr_1} + \frac{1}{2}\alpha_{(C-CH_4)_T} + (1-x)\alpha_{(CO_2-CH_4)_T}}$

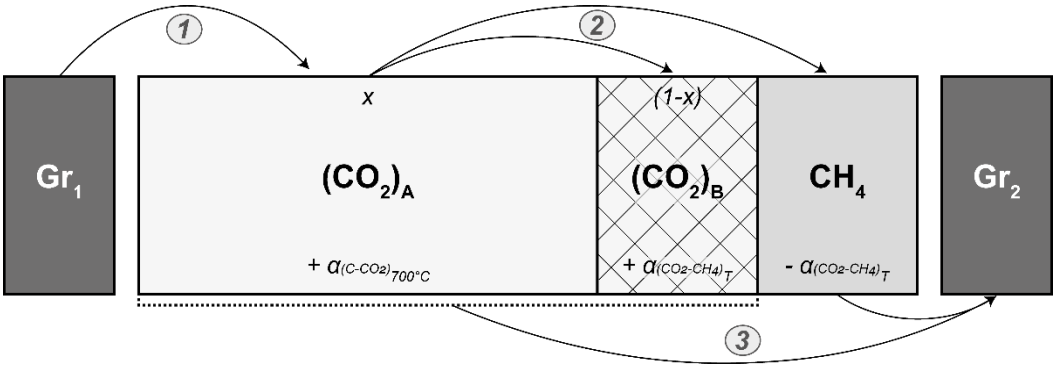


Figure 5.9 : Schéma des trois réactions successives pour la précipitation de Gr_2 à partir de Gr_1.

Exemple de calcul de $\delta^{13}C_{Gr_2}$ à MCS pour une température de précipitation à 400°C selon la réaction (**3.4**) :

- $CO_2 = x(CO_2)_A + (1-x)(CO_2)_B$ avec x la proportion de $(CO_2)_A$ dans le fluide provenant d'une source continue en profondeur (cf. *Chapitre 1*) et $(1-x)$ la proportion de $(CO_2)_B$ correspondant à la part de $(CO_2)_A$ ayant réagi (Figure 5.9).

- $\delta^{13}C_{Gr_1} = -23{,}29$ ‰
- $\alpha_{(CO_2-C)_{400°C}} = 11{,}5$
- $\alpha_{(CO_2-CH_4)_{400°C}} = 19{,}0$

$$\delta^{13}C_{(CO_2)_A} = \delta^{13}C_{Gr_1} + \alpha_{(CO_2-C)_{400°C}} = -23{,}29 + 11{,}5 = -11{,}79\ ‰$$

$$\delta^{13}C_{(CO_2)_B} = \delta^{13}C_{(CO_2)_A} + \alpha_{(CO_2-CH_4)_{400°C}} = -11{,}79 + 19 = 7{,}21‰$$

$$\delta^{13}C_{CH_4} = \delta^{13}C_{(CO_2)_A} - \alpha_{(CO_2-CH_4)_{400°C}} = -11{,}79 - 19 = -30{,}79\ ‰$$

$$\delta^{13}C_{CO_2} = x\delta^{13}C_{(CO_2)_A} + (1-x)\delta^{13}C_{(CO_2)_B} = -11{,}79x + 7{,}21(1-x) = 7{,}21 - 19x$$

$$\delta^{13}C_{Gr_2} = \frac{1}{2}(\delta^{13}C_{CO_2} - \alpha_{(CO_2-C)_{400°C}} + \delta^{13}C_{CH_4} + \alpha_{(CO_2-CH_4)_{400°C}}) = -13{,}84 - 9{,}5x$$

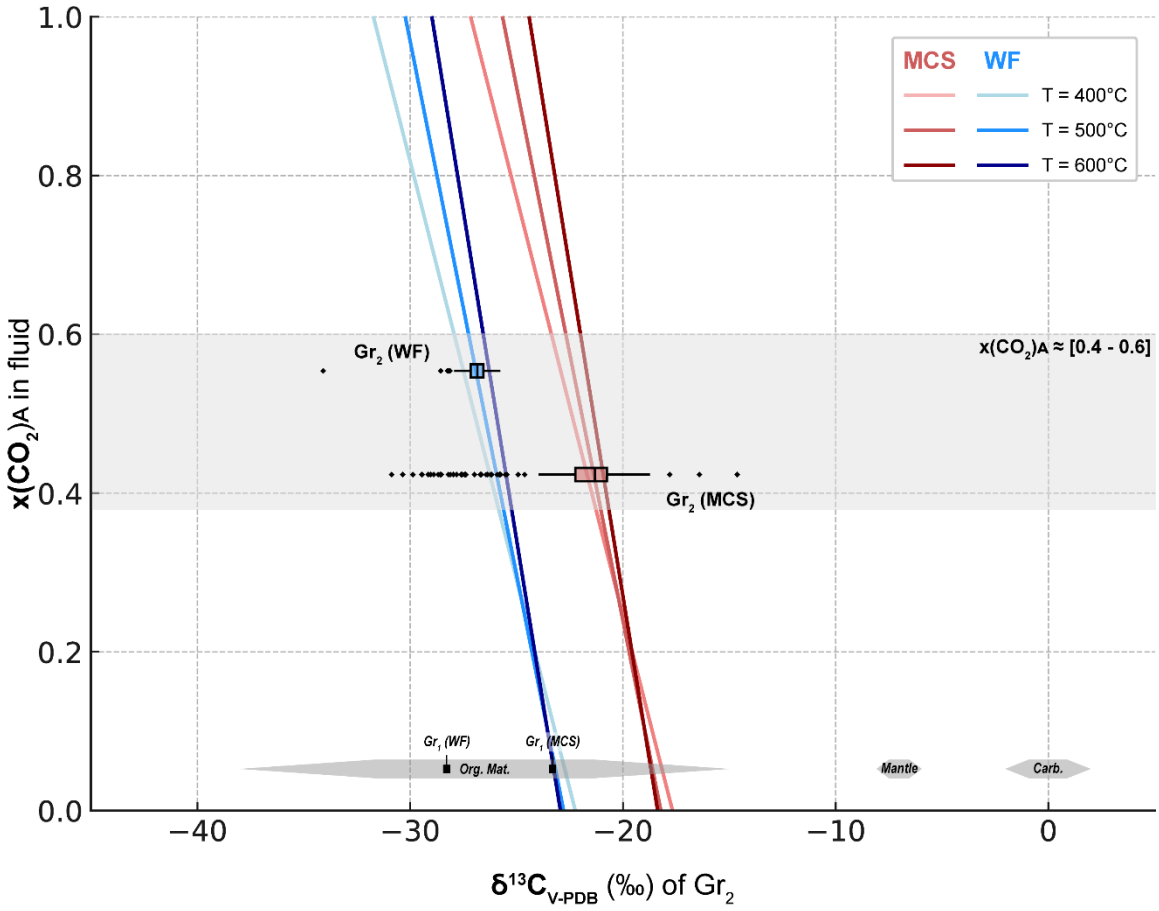


Figure 5.10 : Le diagramme montre la fraction molaire de $(CO_2)_A$ dans le fluide en fonction des valeurs théoriques $\delta^{13}C_{V\text{-}PDB}$ (‰) pour le graphite hydrothermal (Gr_2). Les valeurs théoriques de $\delta^{13}C$ sont calculées à partir des coefficients de fractionnement définis par Bottinga (1969), pour un fluide à $(CO_2)_A$ initial issu de la déstabilisation du graphite métamorphique (Gr_1) à plus de 700°C et évoluant vers des compositions à $CO_2 + CH_4$ en circulant dans les failles (Martz et al., 2017). En bleu, la droite des valeurs de $\delta^{13}C$ à Waterfound (WF) pour $\delta^{13}C_{(Gr1)}$ = -27,86 ‰ et des températures de précipitation allant de 400°C (bleu clair) à 600°C (bleu foncé). En rouge, la droite des valeurs de $\delta^{13}C$ à McClean South (MCS) pour $\delta^{13}C_{(Gr1)}$ = -23,29 ‰ et des températures de précipitation allant de 400°C (rouge clair) à 600°C (rouge foncé). Les valeurs réelles de $\delta^{13}C$ pour le Gr_2 sont représentées par des boîtes à moustache colorées, reprises de la Figure 5.4. Les valeurs de $\delta^{13}C$ des grands réservoirs à carbone ont été reportées en bas du diagramme : Org. Mat. = Matière organique ; Mantle = CO_2 mantellique ; Carb. = Carbonates marins.

Ainsi, en représentant ces droites d'équation à différentes températures pour MCS et WF, la précipitation du graphite hydrothermal (Gr_2) peut être expliquée par un fluide contenant 40-60 % de $(CO_2)_A$, et donc 20-30% de $(CO_2)_B$ et 20-30% de CH_4, pour des températures allant de 400 à 600°C (Figure 5.10). Dans de telles conditions, la température de précipitation du graphite ne semble pas avoir d'influence significative sur les valeurs de $\delta^{13}C$. À Cigar Lake, Martz et al. (2017)

ont observé jusqu'à 12,5 % de CH_4 dans les inclusions fluides associées aux failles contenant du Gr_2 (cf., Vcw-A et Vcw-B ; Martz et al., 2017). Les processus observés à WF et MCS apparaissent donc comparables à ceux de Cigar Lake.

Les valeurs les plus négatives de $\delta^{13}C$ pour le Gr_2 à MCS et WF (i.e., points en dehors des diagrammes à moustache) peuvent i) être expliquées par la différence initiale entre les valeurs de $\delta^{13}C$ du Gr_1, ii) montrer l'implication d'un fluide moins évolué (moins riche en CH_4) et donc possiblement une précipitation plus précoce de Gr_2. Les valeurs plus lourdes de $\delta^{13}C$ pour le Gr_2 à MCS impliquent que d'autres processus interviennent dans la précipitation du graphite. Un mélange de plusieurs sources de carbone dans les fluides est à considérer, comme par exemple la contribution de CO_2 issu de la décarbonatation de carbonates dans les failles (Martz et al., 2017).

5.3.4 Précipitation des dolomites dans les failles à partir des fluides à C issus du graphite.

Comme pour le graphite hydrothermal, la précipitation des carbonates hydrothermaux peut résulter de mélanges de fluides provenant de diverses sources (Spangenberg et al., 1996 ; Zheng and Hoefs, 1993), ce qui peut produire des signatures isotopiques en carbone plus lourdes que celles généralement observées dans les carbonates marins (c'est-à-dire entre -5‰ et 5‰).

À haute pression (dans les cœurs de faille), la solubilité du CO_2 dans les fluides hydrothermaux augmente, favorisant la formation de CO_3^{2-}. Dissolution du CO_2 dans les fluides hydrothermaux. Le fractionnement isotopique entre CO_2 et CO_3^{2-} de 10 ‰ (Mook, 1986) à 25°C donc considéré comme négligeable à partir de 300°C :

(**3.5**) $CO_2 + H_2O \leftrightarrow HCO_3^- + H^+$

(**3.6**) $HCO_3^- + H^+ \leftrightarrow CO_3^{2-} + 2H^+$

Précipitation de la dolomite dans les failles à partir de fluides riches en Ca et Mg :

(**3.6**) $Ca^{2+} + Mg^{2+} + 2CO_3^{2-} \rightarrow CaMg(CO_3)_2$

La dolomite précipite principalement sous 500-550°C (Olszak-Humienik and Jablonski, 2015). En utilisant des fluides riches en CO_2 formés à 700°C à partir de la déstabilisation du Gr_1

(cf. *sous-partie 5.3.2*) et 600°C pour la décarbonation de carbonates, et en considérant un fractionnement isotopique de 2,1 pour une précipitation de dolomite à 300°C (Bottinga, 1969) :

$$\delta^{13}C_{Dol} = x \cdot \left(\delta^{13}C_{(CO_2)_A} - 2.1\right) + (1-x) \cdot \left(\delta^{13}C_{(CO_2)_{marbles}} - 2.1\right)$$

En prenant $\delta^{13}C_{Gr1}$ = -23,71 ‰ (i.e., valeur moyenne pour MCS ; Figure 5.4 ; Table 5.3) et $\delta^{13}C_{(CO_2)_{marbles}}$ = 0‰ (Martz et al., 2017), les résultats de cette modélisation sont présentés sur la Figure 5.11. Il apparait que les fluides issus du Gr_1 contribuent significativement (jusqu'à 80% pour la valeur $\delta^{13}C$ minimale) dans la précipitation à 300°C des dolomites présentes dans les cataclasites (cœurs de faille) à McClean South (Figure 5.11).

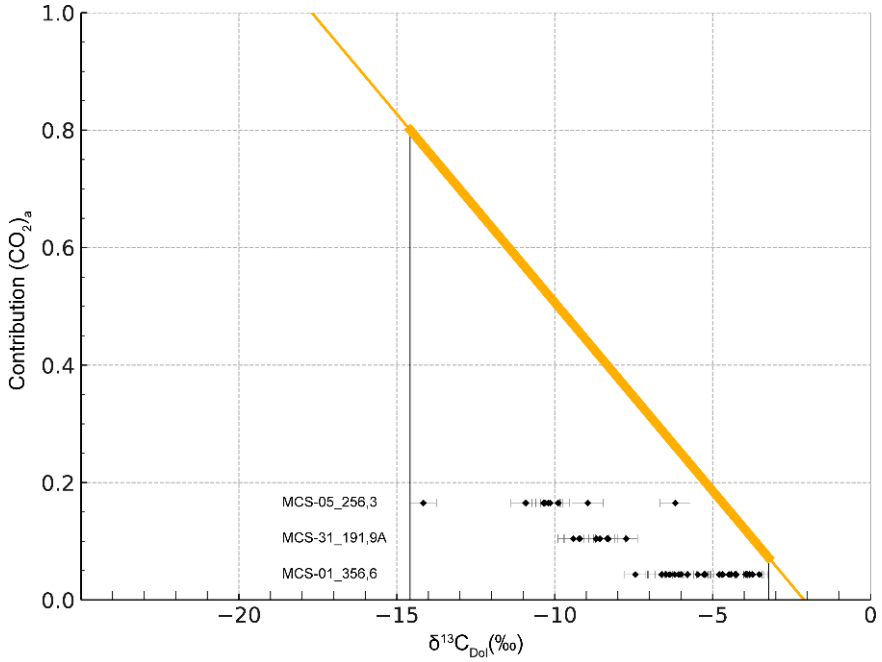


Figure 5.11 : Diagramme de la fraction molaire de $(CO_2)_A$ dans le fluide en fonction des valeurs théoriques $\delta^{13}C_{Dol}$ (‰) pour la dolomite précipitée dans les failles à MCS. Les valeurs théoriques de $\delta^{13}C$ (droite orange) sont calculées à partir des coefficients de fractionnement définis par Bottinga (1969), pour un fluide à $(CO_2)_A$ initial issu de la déstabilisation du graphite métamorphique (Gr_1) mélangé à un fluide riche en $(CO_2)_{Carb}$ aux valeurs plus lourdes.

5.3.5 Fractionnement isotopique du carbone dans le graphite post-précipitation, dans les failles (Gr_d)

Les valeurs de δ¹³C du graphite désorganisé (Gr_d) montrent une très grande variabilité (Figure 5.12), allant de valeurs plus négatives à des valeurs plus positives que celles des graphites initiaux considérés (i.e., Gr_1 ou Gr_2). Les objets dans lesquels le Gr_d est observé en contexte de faille pré-Athabasca sont des mylonites (i.e., roches de faille ductiles) et des cataclasites foliées (i.e., roches de faille marqueurs de la transition ductile-fragile). Le Gr_d se trouve accumulé dans des plans de pression-dissolution (i.e., stylolites ; *Chapitre 1*) ou, pour les évènements de déformation plus tardifs, déformé dans les matrices des cataclasites. Dans les roches de faille pré-Athabasca, les valeurs de δ¹³C du Grd ont tendance à être plus négatives que celles du Gr_1 ou Gr_2 (Figure 5.3 ; Figure 5.4 ; Table 5.3) avec par exemple les échantillons *MCS-44_231,6* (cœur de faille), *MCS-35C_228A* (stylolites) et *WF-84_564* (stylolites). Ces valeurs négatives peuvent être expliquées par un dégazage de CO_2 ± CH_4 (avec CO_2 comme phase majeure) dans les cœurs de faille ductiles et ductile-fragile (Figure 5.12 ; Nakamura et al., 2018). L'échantillon *WF-68-1_503,6* (cœur de faille) ne semble pas présenter de fractionnement intense, sa valeur étant proche de la valeur du Gr_1 voisin (échantillon *WF-68-1_490,1* ; Figure 5.3). Ainsi, certaines failles pourraient avoir seulement eu un effet mécanique sur le graphite, sans jouer un rôle dans la génération de gaz.

La modélisation du dégazage utilise un modèle de fractionnement de Rayleigh en système ouvert. Les équations utilisées pour calculer le δ¹³C du graphite résiduel après dégazage en CO_2 ± CH_4 (Mojzsis et al., 1996 ; Nakamura et al., 2018) sont telles que :

$$\delta^{13}C_{Gr-CO_2} = (\delta^{13}C^{i}_{Gr} + 1000) * f^{(\alpha_{C-CO_2}-1)} - 1000$$

$$\delta^{13}C_{Gr-CH_4} = (\delta^{13}C^{i}_{Gr} + 1000) * f^{(\alpha_{C-CH_4}-1)} - 1000$$

Avec $\delta^{13}C^{i}_{Gr}$ la valeur initiale de δ¹³C du graphite source, correspondant à la valeur moyenne du graphite métamorphique ou hydrothermal selon l'objet considéré ; f la fraction résiduelle de carbone dans le graphite (entre 0 et 1) ; α_{C-CO_2} le facteur de fractionnement isotopique entre le graphite et le CO_2 calculé à partir des valeurs $10^3 \ln(\alpha_{CO_2-C})$ en Annexe 10, telles que $\alpha_{C-CO_2} = -\alpha_{CO_2-C}$; α_{C-CH_4} est le facteur de fractionnement isotopique entre le graphite et le CH_4 calculé à partir des valeurs $10^3 \ln(\alpha_{C-CH_4})$ en Annexe 10.

Ainsi, en combinant les effets du dégazage en CO_2 et CH_4 exprimé par la fraction de CO_2 dans le fluide dégazé (Nakamura et al. 2018) :

$$\delta^{13}C^{f}_{Gr} = x_{CO_2} \cdot \delta^{13}C_{Gr-CO_2} + (1 - x_{CO_2}) \cdot \delta^{13}C_{Gr-CH_4}$$

Avec $\delta^{13}C^{f}_{Gr}$ la valeur observée de δ¹³C dans le graphite et x_{CO_2} la fraction molaire de CO_2 dans le fluide dégazé telle que $x_{CO_2} = \frac{[CO_2]}{[CO_2]+[CH_4]}$. La gamme de températures utilisée pour cette modélisation (500 à 300°C) est caractéristique pour ces types de faille, et a été déterminée sur base d'observation des textures de quartz déformés (cf. *Chapitre 1*).

Les failles mylonitiques et cataclastiques, réactivées à plusieurs reprises au cours de l'exhumation de l'orogène transhudsonien (cf. *Chapitre 1*), ont probablement favorisé la génération récurrente de CO_2 ± CH_4, lors du métamorphisme rétrograde associé. Cette activité tectonique répétée a ainsi permis plusieurs épisodes de précipitation de graphite hydrothermal (Gr_2) et de carbonates à partir des fluides générés et circulant dans ces failles.

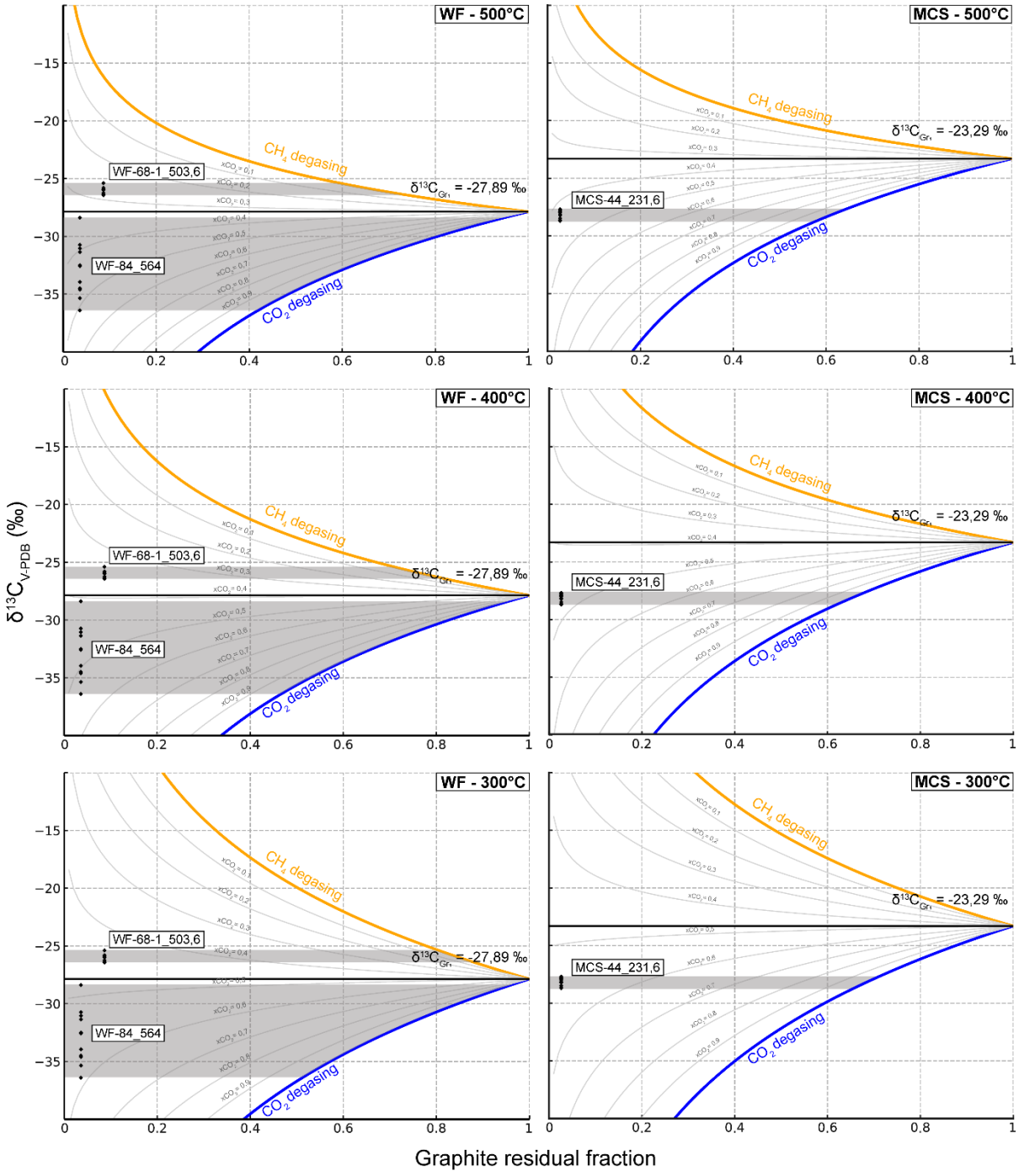


Figure 5.12 : Diagramme des valeurs de $\delta^{13}C$ en fonction de la fraction résiduelle de graphite (Grd) dans les failles à différentes températures (500°C, 400°C et 300°C), à MCS et WF selon un modèle de fractionnement de Rayleigh en système ouvert.

5.3.6 Fractionnement isotopique du soufre dans la pyrite

Les pyrites dans les métasédiments sont dérivées de la matière organique initialement présente dans les sédiments avant le métamorphisme (cf. *Chapitre 2*). Les pyrites dans les mylonites et dans les fractures sont possiblement associées au même évènement de déformation et semblent avoir pour source les pyrites métamorphiques (Py_1). Deux groupes de valeurs de $\delta^{34}S$ apparaissent pour les pyrites pré-Athabasca (Figure 5.7 ; Figure 5.8 ; Table 5.5) : i) un premier groupe de valeurs incluant les trois types de pyrite (i.e., Py_1, Py_2 et Py_3) avec un fractionnement par échantillon inférieur à 5 ‰, variant d'environ -2 ‰ à +13 ‰, et ii) un second groupe de valeur ne concernant que certains échantillons de Py_3 avec des fractionnements supérieurs à 15 ‰ et une gamme de valeurs allant d'environ -24 ‰ à +10 ‰.

5.3.6.1 Un faible fractionnement isotopique pour les Py_1 et Py_2

Les valeurs de $\delta^{34}S$ peu dispersées pour les pyrites métamorphiques (Py_1) de MCS et WF suggèrent une source de soufre homogène dans les deux zones. Cela implique également que les contributions de sources externes de soufre (i.e., hors fluides métamorphiques) étaient limitées, voire nulles lors du métamorphisme prograde (épisode pendant lequel la Py_1 s'est formée, cf. *Chapitre 2*). Par ailleurs, les conditions de métamorphisme peuvent favoriser l'homogénéisation des compositions isotopiques du soufre dans la Py_1 notamment par un rééquilibrage avec les fluides métamorphiques.

Les pyrites hydrothermales dans les zones de faille ductile (Py_2) enregistrent des valeurs très similaires à celles des Py_1 (Figure 5.7), suggérant une même source de soufre pour les deux types de pyrite ainsi qu'un lien pétrogénétique entre les deux évènements de précipitation ne provoquant pas ou peu de fractionnement isotopique.

5.3.6.2 Un fort fractionnement isotopique du soufre pour la Py_3

Les valeurs de $\delta^{34}S$ mesurées dans les cataclasites (Py_3) varient entre -25 et +10 ‰, une gamme particulièrement étendue qui suggèrerait soit i) plusieurs sources pour le soufre ou ii) des processus de fractionnement isotopique syn-précipitation. Cependant, la variabilité « aléatoire » des valeurs de $\delta^{34}S$ entre les grains de pyrite (Py_3) au sein d'un même échantillon, ainsi que l'absence d'une tendance particulière au sein d'un même grain, mènent à privilégier l'hypothèse du mélange de sources. Par ailleurs, la forme en « cloche » des points de données des Py_3 sur le

diagramme $\delta^{34}S$ versus $\Delta^{33}S$ (Figure 5.8) résulte d'un mélange de fluides, là où le fractionnement produirait une droite (Johnston, 2011).

La large gamme de valeurs isotopiques des Py_3 peut en effet s'expliquer par des sources multiples de soufre. Par exemple, les pyrites métamorphiques (Py_1) affichent des valeurs $\delta^{34}S$ comprises entre 5 et 10 ‰ et pourraient constituer la première source de soufre. Pour obtenir les valeurs de $\delta^{34}S$ intermédiaires, il faudrait mélanger cette première source à une deuxième source de fluide aux valeurs de très négatives. Pour l'échantillon *WF-68-1_503,6*, un cluster de valeurs semble se définir autour de -23 ‰. Le mélange des fluides formant la pyrite au $\delta^{34}S \approx 23$‰ et des fluides formant la pyrite au $\delta^{34}S \approx 5$‰ permet d'expliquer les valeurs de $\delta^{34}S$ intermédiaires entre 5 et -20 ‰ pour ce même type de pyrite (Py_3).

La présence de plusieurs sources de S reflète les multiples épisodes d'activation et de réactivation des failles impliquant des fluides de compositions isotopiques en S hétérogènes.

5.4 Conclusion

Les analyses isotopiques du carbone dans le graphite montrent une origine organique pour le Gr_1, essentiellement organique pour le Gr_2. Le graphite ayant subi des processus de déformation intenses, dont la structure apparaît désorganisée (Gr_d), est sujet à du fractionnement isotopique mettant en évidence une libération de fluide à $CO_2 \pm CH_4$ lors de la déformation pré-Athabasca.

Les analyses isotopiques du carbone dans les dolomites montrent des valeurs de $\delta^{13}C$ entre -14.16 ‰ et -3.53 ‰ mettant en évidence une contribution des fluides dérivés du graphite pour précipiter les dolomites aux $\delta^{13}C$ les plus légers.

Les analyses isotopiques du soufre dans les pyrites pré-Athabasca révèlent deux principaux groupes de pyrite formées avant le dépôt des séries sédimentaires :

- Un premier groupe constitué des pyrites métasédimentaires (Py_1), des pyrites hydrothermales dans les mylonites (Py_2) et de certaines pyrites hydrothermales dans les cataclasites (Py_3) dont les valeurs de $\delta^{34}S$ sont comprises entre −1,45 ‰ et +13,20 ‰ ; ce groupe contient les pyrites n'ayant pas ou peu fractionné et dont les valeurs de $\delta^{34}S$ sont proches des valeurs originelles dans les pyrites métasédimentaires.

- Un second groupe constitué de pyrites hydrothermales dans les cataclasites (Py_3) qui présente un fractionnement isotopique important résultant d'un mélange entre deux sources de fluide riche en S.

Partie B

Origine et mobilités du carbone et du soufre après le dépôt du Bassin de l'Athabasca

Chapitre 4

Porteurs de C et S formés en contexte post-Athabasca : caractérisation minéralogique, association paragénétique, contrôle structural et distribution spatiale dans le socle et le bassin

6 Introduction au chapitre 4

Le dépôt du Bassin de l'Athabasca en discordance sur le socle cristallin a entraîné des transformations majeures, notamment l'introduction et l'évolution de nouveaux fluides dans cet environnement. Ces fluides ont préférentiellement circulé à l'interface entre le bassin et le socle, sur des distances verticales mal contraintes mais supposées de plusieurs dizaines à centaines de mètres. Parmi ces fluides, les saumures d'origine évaporitiques en provenance du bassin ont joué un rôle déterminant dans la genèse des gisements d'uranium de type discordance à cette interface (Chi et al., 2019 ; Martz et al., 2019 ; Mercadier et al., 2010 ; Richard et al., 2011). Les circulations les plus importantes de ces fluides dans le socle et le bassin sont considérées comme associées à la réactivation de structures de socle, dont les zones de cisaillement graphiteuses, qui ont favorisé la création d'un nouveau réseau structural dans le socle et le bassin dans un régime de déformation fragile (par ex, Abdelrazek et al., 2021 ; Benedicto et al., 2021 ; Reid et al., 2014). Ces structures ont eu un rôle déterminant dans le développement de réseaux de perméabilité à cette interface qui ont joué le rôle de drains pour les fluides hydrothermaux (Scibek and Annesley, 2021). Ce phénomène a généré des interactions fluide-roche massives entraînant des changements chimiques majeurs pour les roches du bassin et du socle (par ex, Adlakha et al., 2014 ; Scibek and Annesley, 2021) et pour les saumures (par ex, Martz et al., 2019 ; Mercadier et al., 2010 ; Rabiei et al., 2021). C'est dans ce contexte que certains épisodes de circulation hydrothermale ont mené à la précipitation d'oxydes d'uranium. Cette précipitation massive d'uranium à l'interface bassin-socle est proposée comme liée à l'existence d'un front d'oxydo-réduction qui permis un changement brutal d'état rédox de l'uranium, d'un état oxydé dans les fluides à celui réduit dans les oxydes d'uranium. Différents scenarii ont été proposés pour expliquer ce processus, dont l'implication de minéraux ou de fluides (gaz, liquide) réducteurs originaires du socle. Il est en tout cas établi que la formation de tel gisement a nécessité la concordance : i) de saumures d'origine évaporitiques oxydantes qui ont transporté l'uranium suite à leur interaction avec les lithologies environnantes, ii) d'un front d'oxydo-réduction dont la source pourrait être des minéraux ou des liquides d'origine du socle, iii) d'un réseau structural permettant la circulation et la rencontre de ces fluides à l'apex des zones de cisaillement graphiteuses.

Plusieurs minéraux porteurs de carbone et de soufre sont présents dans les zones hydrothermalisées : des carbonates (Cloutier et al., 2010, 2009 ; Richard et al., 2016), des sulfures

(par ex, DeDecker, 2019 ; Kaczowka, 2017 ; Mount et al., 2022) et sulfates (Adlakha et al., 2015 ; Adlakha and Hattori, 2015 ; Cloutier et al., 2009 ; Gaboreau et al., 2007 ; Sheahan et al., 2016), des matières carbonées (Alexandre and Kyser, 2006 ; Kyser et al., 1989 ; Landais et al., 1993 ; Leventhal et al., 1987 ; Sangély et al., 2007 ; Stasiuk et al., 2001 ; Wilson et al., 2007). Des gaz porteurs de carbone (CO_2, CH_4) ont aussi été identifiés dans les inclusions fluides des quartz hydrothermaux (Martz et al., 2017 ; Pascal et al., 2016b). Ces minéraux et gaz porteurs de C et S sont spatialement associés à des altérations argileuses spécifiques, comme la chloritisation dans le socle et l'illitisation dans le socle et le bassin (Alexandre et al., 2005 ; Jefferson et al., 2007 ; Martz et al., 2019), ainsi que des épisodes de dissolution/reprécipitation du quartz (bassin et socle).

L'objectif de ce chapitre est d'identifier, caractériser et établir la chronologie des différentes phases de déformation post-Athabasca, ainsi que les processus d'altération hydrothermale qui leur sont associés. Un focus est fait sur les mobilités du carbone et du soufre, via l'étude du comportement face à l'hydrothermalisme des porteurs pré-Athabasca défini dans les chapitres 1 et 2, ainsi que des porteurs hydrothermaux post-Athabasca. Ce travail est conduit dans les zones de cisaillement du socle ainsi que dans le bassin. Une étude détaillée est réalisée sur les premières précipitations des minéralisations uranifères pour contraindre les conditions de leur formation. Ce travail a été réalisé sur les deux mêmes zones de cisaillement graphiteuses que pour les chapitres 1 et 2 : Waterfound et McClean South.

6.1 Matériel et méthode

Les échantillons étudiés ont été choisis avec la même philosophie que pour les *Chapitre 1* et *Chapitre 2*, en ciblant le socle et le bassin. L'étude s'est d'abord réalisée sur le terrain, via l'étude de carottes de forages des prospects MCS et WF. La description des différentes altérations a été réalisée en lien avec la précision de leur distribution spatiale dans les carottes de forages. L'orientation et le pendage des structures associées aux déformations post-Athabasca dans les carottes des mêmes forages que pour les *Chapitre 1* et *Chapitre 2* ont été mesurés de manière systématique. Ces mesures ont été faites dans le socle et le bassin (quand cela était possible, en fonction du degré d'altération hydrothermale subi) en utilisant la même méthode que pour le *Chapitre 1*. Ces mesures d'orientation ont été couplées à une description macroscopique des types de structures (faille, fracture) et de leurs caractéristiques associées (par ex, minéraux de remplissage), avec une attention particulière portée aux minéraux porteurs de C et S.

Ce travail sur le terrain a été complété par un travail au laboratoire sur certains échantillons sélectionnés. L'étude pétrographique sur lame mince avec l'utilisation des microscopes (optique et électronique à balayage) et de cartographies µ-XRF s'est également déroulée dans des conditions analytiques identiques à celles utilisées pour les *Chapitre 1* et *Chapitre 2*.

La cartographie élémentaire de l'échantillon *WF-67_503,9* à la microsonde électronique de Castaing ou Electron Probe MicroAnalyser (EPMA) a été faite avec l'appareil CAMECA SX-100 du service SCMEM du laboratoire GeoRessources à Nancy. Les analyses ont été menées sous un courant de 12 nA, avec une tension d'accélération de 15 kV et une taille de faisceau de 1 µm pour les éléments Na, Mg, Si, Al, K, Ca, Fe, Mn afin d'étudier la composition de carbonates hydrothermaux et la distribution des minéraux d'altération associés.

6.2 Résultats

6.2.1 Logging et caractérisation pétrographique des phases minérales formées en contexte post-Athabasca

Concernant le socle à MCS et WF, trois groupes paragénétiques post-Athabasca contenant des porteurs de C et/ou de S apparaissent comme majeurs, avec certains minéraux pouvant être absents ou présents à des proportions variables. Pour le bassin, deux principales paragénèses à C et/ou S ont été identifiées. Ces assemblages minéralogiques peuvent être associés à des cœurs de faille (i.e., brèches non cohésives et gouges), à des remplissages de fracture, et/ou à une altération pervasive (Table 6.1).

	SOCLE 1	**SOCLE 2**	**SOCLE 3**	**BASSIN 1**	**BASSIN 2**
MCS **WF**	MCS WF	MCS (+) WF (-)	MCS : sid seule ; sid + py WF : sid + ilt + mix chl-ilt	MCS WF	MCS (?) WF
Failles **Fractures** **Alt. pervasive**	*Fractures sub-horizontales *Brèches non cohésives	*Brèches non cohésives *Gouges	*Fractures	*Gouges *Fractures *Alt. Pervasive	*Fractures

Table 6.1: Tableau synthétique des paragénèses post-Athabasca et des structures associées à MCS et/ou WF. Les paragénèses d'altération post-Athabasca sont séparées entre le socle et le bassin, et triées selon le type d'objet qui les portent : Failles, Fractures et/ou Altération diffuse (Alt. d.). SOCLE 1 = Chlorite (Mg) + Phyllosilicate ± Sulfures (Pyrite et Chalcopyrite) ; SOCLE 2 = Illite ± Pyrite ± APS ; SOCLE 3 = Sidérite ± Illite ± mélange Chlorite (Mg) et Illite (mix chl-ilt) ± Pyrite (Py) ; BASSIN 1 = Illite + APS ± Pyrite ; BASSIN 2 = Illite + Sidérite + Matière Carbonée (MC).

6.2.1.1 Minéralisations d'uranium de MCS et WF

Les minéralisations uranifères à MCS et WF sont constituées d'oxydes d'uranium, localisées pour la majeure partie dans le bassin à quelques mètres de la discordance. Ces zones minéralisées sont situées directement au-dessus des zones de cisaillement graphiteuses, en étroite association spatiale avec les structures de socle à graphite et/ou pyrite décrites dans les *Chapitre 1* et *Chapitre 2* (pour MCS et Figure 6.2 pour WF). Les sédiments de base de bassin présentent une granulométrie élevée, se manifestant principalement sous forme de conglomérats, microconglomérats et grés grossiers dans lesquels les minéralisations uranifères s'insèrent (Figure 6.3). L'uraninite existe sous forme de veines (Figure 6.3B) et sous forme de minéralisation disséminée dans la porosité inter-grains des roches sédimentaires (Figure 6.3D-G). Elle est associée à de la chlorite vert kaki ferromagnésienne (Figure 6.3E-F) et parfois recoupée par un assemblage à sulfures et arséniures (Annexe). La zone du bassin comprenant les minéralisations uranifères et les roches sédimentaires sous-jacentes sont affectées par une fracturation intense (Figure 6.3C et Figure 6.4C) Cette fracturation n'est pas présente à la base du bassin hors des zones localisées au-dessus des zones de cisaillement de socle, ni au-dessus de la zone de cisaillement graphiteuse lorsqu'elle est éloignée des zones minéralisées. Ces zones de fracturation contiennent des failles d'épaisseur centimétrique à décimétrique (Figure 6.4C) caractérisées par la présence de gouges argileuses (Figure 6.6A et C).

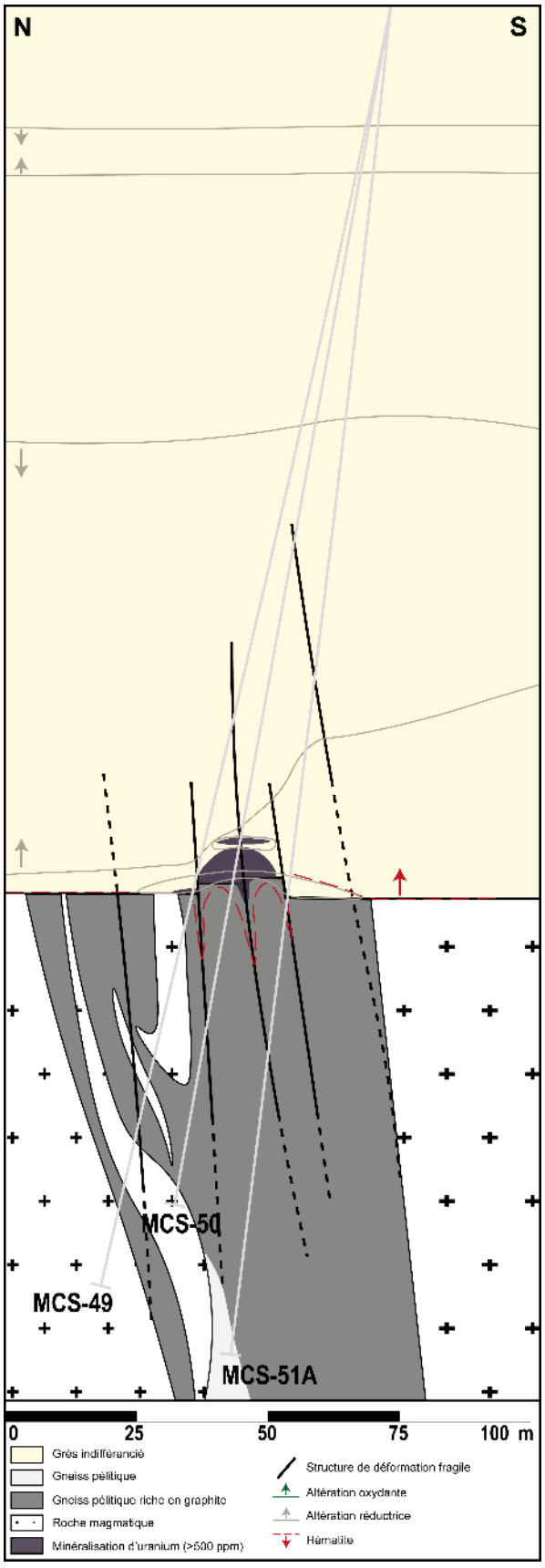


Figure 6.1 : Coupe géologique des forages MCS-49, MCS-50 et MCS-51A modifiée d'après Orano Canada ©. Le forage MCS-50 recoupe la minéralisation à uranium (violet) décrite en Figure 6.3. La surface colorée correspond à la zone où la concentration en U est supérieure à 500 ppm. Le bassin est représenté en jaune clair. Le socle est composé de gneiss pélitiques riches en graphite (gris foncé), de gneiss pélitique (gris clair) et de roches magmatiques indifférenciées (motif blanc à croix). Les failles recoupant à la fois le socle et le bassin ont été représentées par des traits noirs (pointillés lorsque l'interprétation est incertaine). Les intervalles d'altération réductrice « blanchissante » sont délimités par des horizons marron clair, l'intervalle riche en hématite autour du pod minéralisé est marqué par un horizon rouge, l'altération oxydante de socle sous la discordance est mise en évidence par un horizon vert foncé.

Les grès et conglomérats autour des minéralisations montrent des alternances entre intervalles oxydés de couleur rougeâtre et réduits de couleur beige (Figure 6.3A et C). Lorsqu'elles sont isolées, les fractures à uranium sont systématiquement associées à un intervalle sédimentaire réduit (Annexe). Dans le socle, sous les minéralisations, les gneiss et roches magmatiques dérivées de la fusion partielle sont systématiquement oxydés, mais parfois recoupés par des intervalles plutôt réduits (par ex, Figure 6.3A – 487,5 m à 488,5 m).

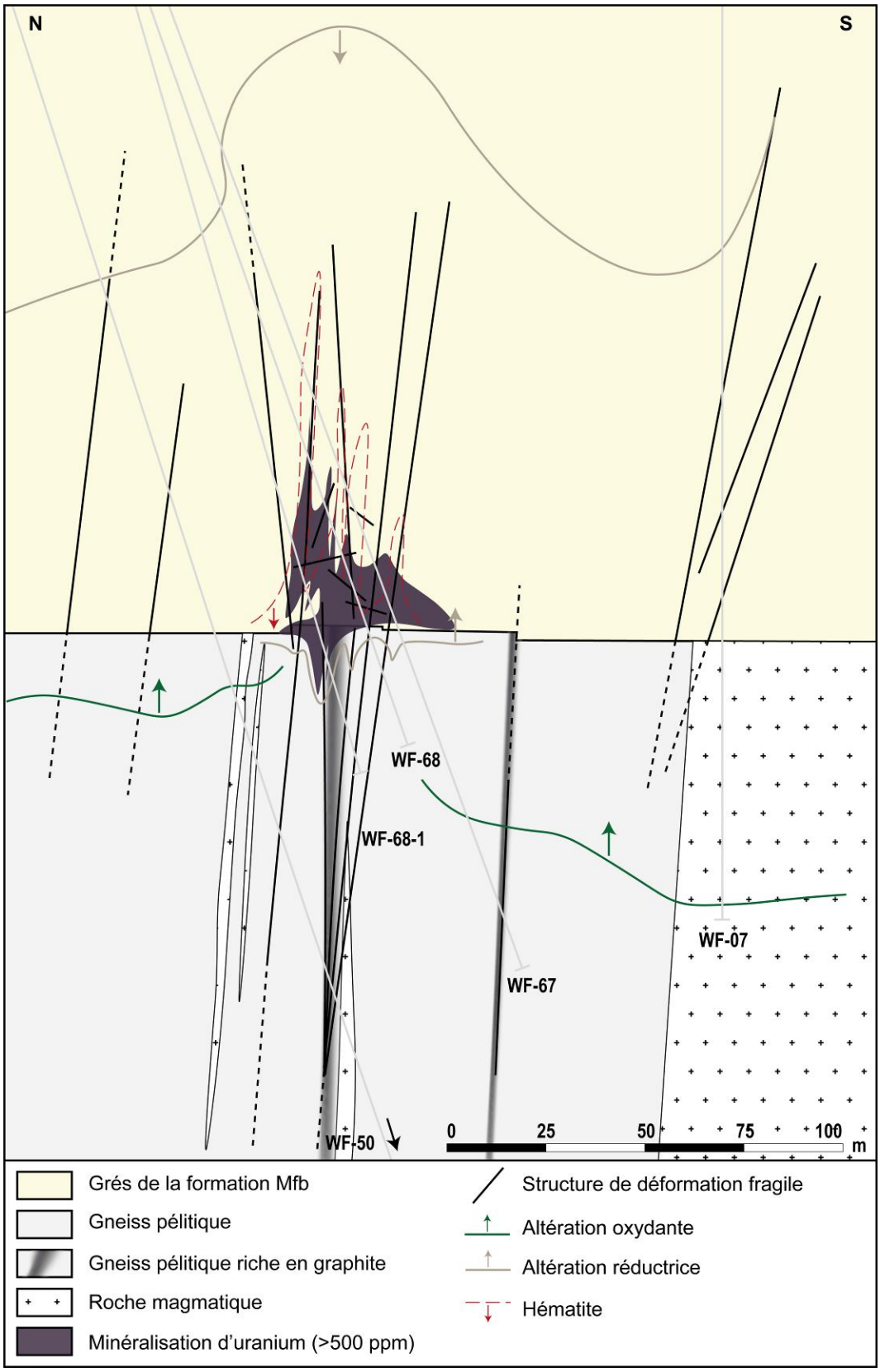

N
S
WF-68
WF-68-1
WF-07
WF-67
WF-50
0
25
50
75
100
m
Grés de la formation Mfb
Gneiss pélitique
Gneiss pélitique riche en graphite
Roche magmatique
Minéralisation d'uranium (>500 ppm)
Structure de déformation fragile
Altération oxydante
Altération réductrice
Hématite

Figure 6.2 : Coupe géologique des forages WF-67, WF-68 et WF-68-1 modifiée d'après Orano Canada ©. Le forage WF-68 recoupe la minéralisation à uranium (violet) décrite en Figure 6.4. La surface colorée correspond à la zone où la concentration en U est supérieure à 500 ppm. Le bassin est représenté en jaune clair. Le socle est composé de gneiss pélitiques riches en graphite (gris foncé), de gneiss pélitique (gris clair) et de roches magmatiques indifférenciées (motif blanc à croix). Les failles recoupant à la fois le socle et le bassin ont été représentées par des traits noirs (pointillés lorsque l'interprétation est incertaine). Les intervalles d'altération réductrice « blanchissante » sont délimités par des horizons marron clair, l'intervalle riche en hématite autour du pod minéralisé est marqué par un horizon rouge, l'altération oxydante de socle sous la discordance est mise en évidence par un horizon vert foncé.

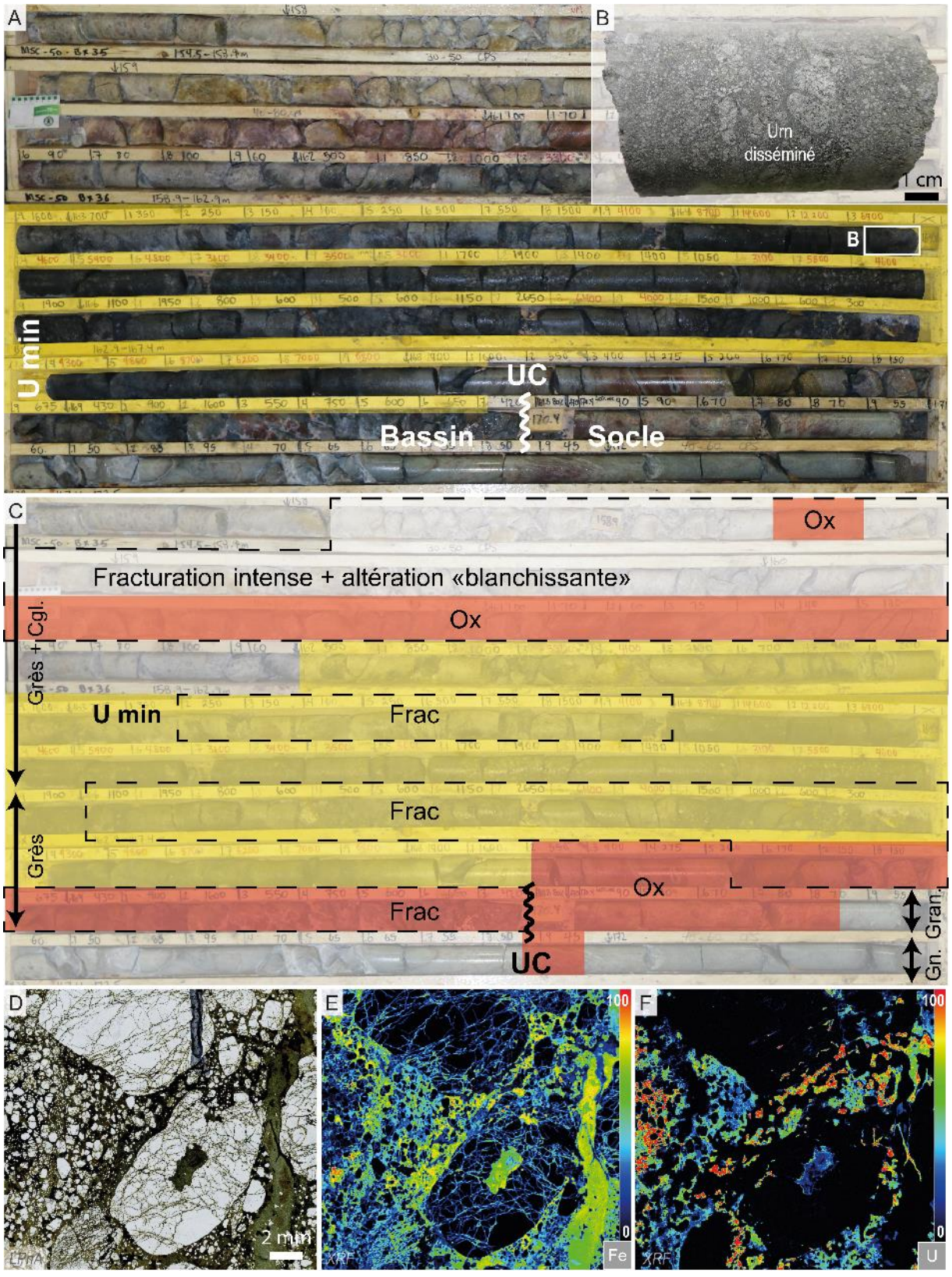

A
B
Urn
disséminé
1 cm
B
U min
UC
Bassin
Socle
C
Ox
Fracturation intense + altération «blanchissante»
Ox
Grès + Cgl.
U min
Frac
Frac
Grès
Ox
Frac
Gn. Gran.
UC
D
2 mm
E
100
0
Fe
F
100
0
U

Figure 6.3 : A-F: Forage MCS-50. A) Photographie des boîtes de carottes du forage MCS-50 allant de 157,6 m à 172,5 m. Le forage recoupe la minéralisation massive d'uranium (U-min, en surbrillance jaune) de couleur gris foncé à noir entre 162,9 m et 168,1 m localisée dans les séries sédimentaires conglomératiques en base de bassin moins de deux mètres au-dessus de la discordance (UC) à 170 m. B) Photographie de l'échantillon de conglomérat MCS-50_164,3 entièrement micro-fracturé et pénétré par une minéralisation d'uraninite disséminée. C) Aide à la lecture de A : Encadrés noirs en pointillés = couloirs de fractures (Frac) ± altération « blanchissante » ; Couleur rouge = zones oxydées (Ox) ; Couleur jaune = minéralisation d'uranium (U min). Les premiers mètres de socle sous la discordance sous constitués de granitoïdes (Gran.) et de gneiss (Gn.). Le bassin au-dessus de la discordance est d'abord constitué de grès puis d'une alternance entre grès et conglomérats (Cgl.). D) Photographie microscopique en lumière polarisée non analysée (LPnA) de l'échantillon en image B. Les clastes de quartz arrondis contiennent de très nombreuses fractures et la matrice est majoritairement constituée de chlorite (vert kaki) et de minéraux opaques. E) Cartographie XRF de l'intensité en fer (Fe) dans l'échantillon. Les zones de haute intensité correspondent aux zones vert kaki de l'image E, ainsi qu'aux micro-fractures dans les clastes de quartz. F) Cartographie XRF de l'intensité en uranium (U) dans l'échantillon. Les zones de haute intensité correspondent aux minéraux opaques (principalement UO_2) de l'image E et sont disséminées parmi la matrice à chlorite.

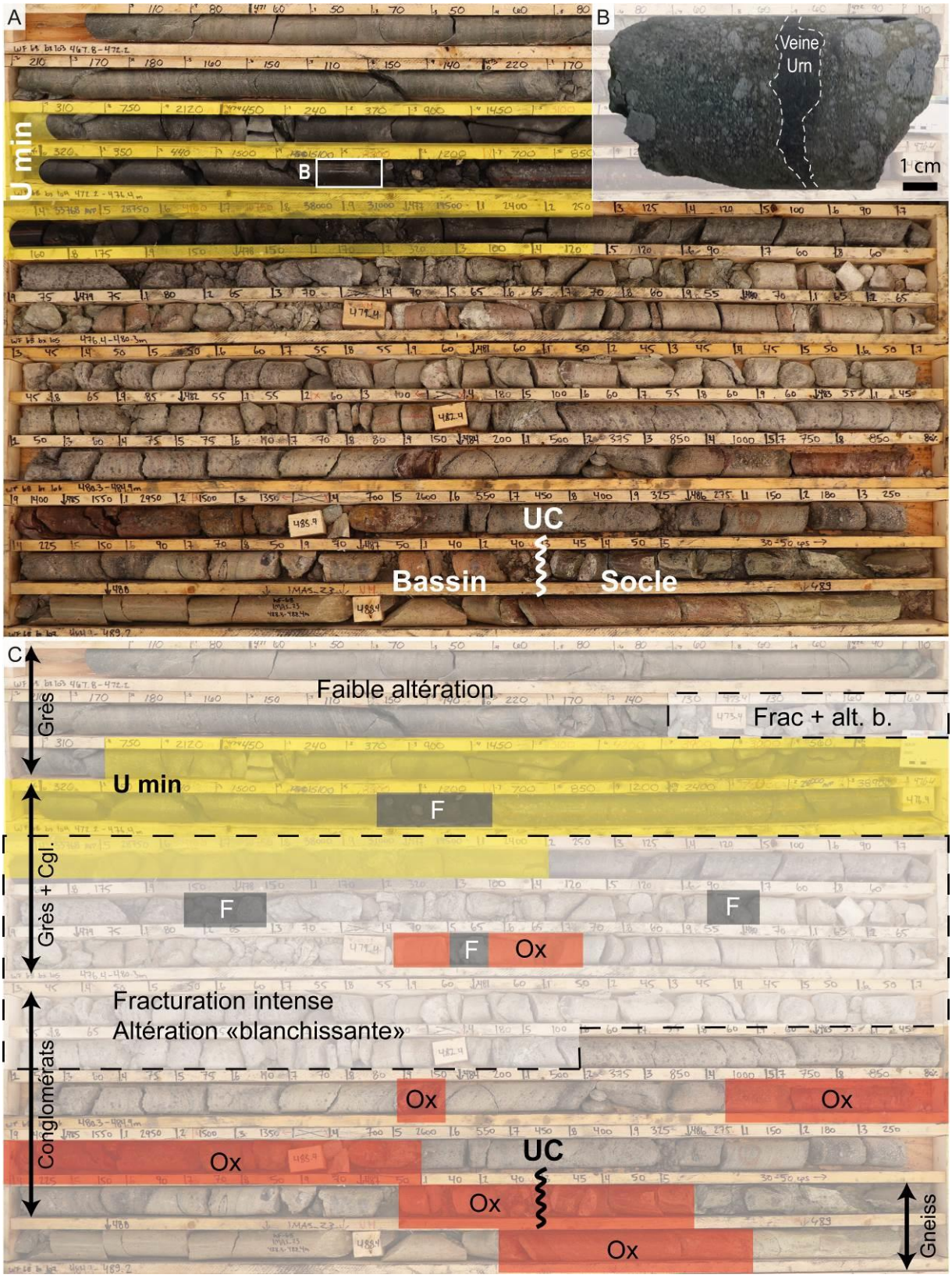

A
B
U min
B
Veine
Urn
1 cm
UC
Bassin
Socle
C
Grès
Faible altération
Frac + alt. b.
U min
F
Grès + Cgl.
F
F
F
Ox
Fracturation intense
Altération «blanchissante»
Conglomérats
Ox
Ox
Ox
UC
Ox
Ox
Gneiss

Figure 6.4 : A-B : Forage WF-68. A) Photographie des boîtes de carottes du forage WF-68 allant de 470,8 m à 489,2 m. Le forage recoupe la minéralisation massive d'uranium (U-min, en surbrillance jaune) de couleur gris foncé à noir entre 473,7 m à 478,5 m, localisée au sein de grès au-dessus d'un intervalle intensément fracturé. Les grès fracturés sous la minéralisation sont de couleur blanchâtre. Les grès couleur rouge oxyde plus proches de la discordance (UC), entre 484 m et 486,5 m, contiennent de l'uranium. La discordance à 487,3 m est marquée par le passage de conglomérats oxydés dans le bassin à des gneiss oxydés dans le socle. B) Photographie de l'échantillon WF-68_475,5 montrant une veine d'uraninite (Veine Urn) parallèle au plan de stratigraphie horizontal dans un conglomérat plus ou moins grossier. C) Aide à la lecture de A : Encadrés noirs en pointillés = couloirs de fractures (Frac) ± altération « blanchissante » (alt. b.) ; Rectangles gris « F » = faille ; Couleur rouge = zones oxydées (Ox) ; Couleur jaune = minéralisation d'uranium (U min). Les premiers mètres de socle sous la discordance sous constitués de gneiss mylonitiques. Le bassin au-dessus de la discordance est d'abord constitué de conglomérats puis d'une alternance entre grès et conglomérats (Cgl.) et enfin d'un intervalle uniquement composé de grès peu altérés.

6.2.1.2 Altérations dans le bassin à MCS et WF

Les altérations hydrothermales du bassin affectent les minéraux détritiques ainsi que ceux formés au cours de la diagenèse (Figure 6.12). Les halos d'altération sont majoritairement composés d'illite à MCS et WF. Ils peuvent s'étendre sur plusieurs centaines de mètres autour des minéralisations d'uranium. La circulation des fluides responsables de ces altérations est contrôlée par des failles (gouges argileuses, Figure 6.6A-D), des fractures (Figure 6.5) et la porosité intergranulaire (Figure 6.5B, Figure 6.6E-G). L'illite se retrouve fréquemment en remplissage des pores dans les grès et conglomérats. Deux paragénèses minérales contenant de l'illite sont récurrentes dans le bassin à MCS et WF (Table 6.1) : i) une association à illite, alumino-phosphates-sulfates (APS) avec une concentration variable de pyrite (Py_5) dans les gouges et leur zones de dommages (Figure 6.6A-B et E-G) ; ii) une association illite et sidérite, avec la présence occasionnelle de nodules de matière carbonée (MC) proche des minéralisations U à WF (Figure 6.5C-F).

Dans le premier cas, l'illite constitue la phase minérale majeure au sein des gouges (Figure 6.6A-B). Elle se présente sous différentes tailles de cristallites, allant de quelques micromètres à plusieurs dizaines de micromètres (Figure 6.6B). L'illite est associée à des APS micrométriques (1-2 µm de diamètre) et à du rutile. De la pyrite, à texture automorphe, est également présente dans l'échantillon mais elle est recoupée par du rutile au niveau de ses fractures. Ce rutile représente le dernier stade de cristallisation, associé à une génération d'illite et aux APS.

Dans les fractures à remplissage d'illite et de sidérite, la sidérite se localise au cœur des veines, tandis que l'illite se concentre aux épontes ainsi que dans les pores entre les grains de quartz (Figure 6.5B). A WF, les fractures contenant également de la matière carbonée, contiennent également des cristaux de quartz drusique ou sub-automorphe (Figure 6.5C-F).

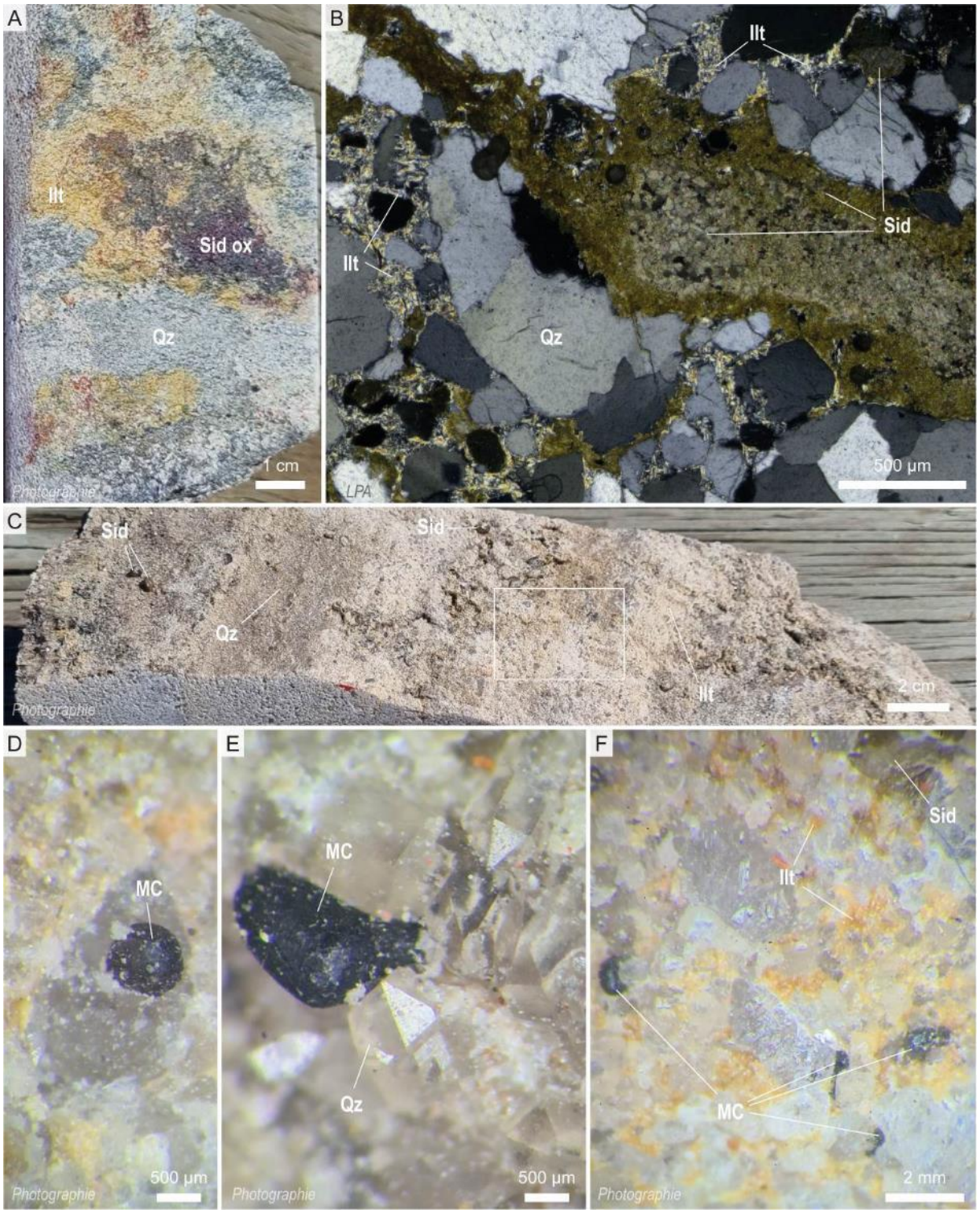


Figure 6.5 : A-B : Echantillon WF-68_470. A) Photographie du grès altéré situé 5m au-dessus de la minéralisation massive à oxydes d'uranium. Les grains ne sont composés que de quartz (Qz), fractures et la porosité sont remplies par de l'illite (Ilt) et de la sidérite partiellement oxydée (Sid ox). B) Image en lumière polarisée et analysée (LPA) du même échantillon de grès. La fracture principale est composée de sidérite (Sid) au cœur et d'illite (Ilt) aux épontes. La

porosité entre les grains de quartz (Qz) est remplie majoritairement par de l'illite avec quelques traces de sidérites. C-F : Echantillon WF-68-1_455,7. C) Photographie du grès situé 12m au-dessus des minéralisations d'oxydes d'uranium les plus hautes. La sidérite (Sid), les cristaux de quartz automorphe (Qz) et l'illite (Ilt) sont visibles à l'œil nu. D-F) Photographie macroscopiques du plan de fracture dans lequel sont visibles des nodules de matière carbonée (MC) noire associés à des cristaux de quartz automorphe, à de l'illite et à de la sidérite.

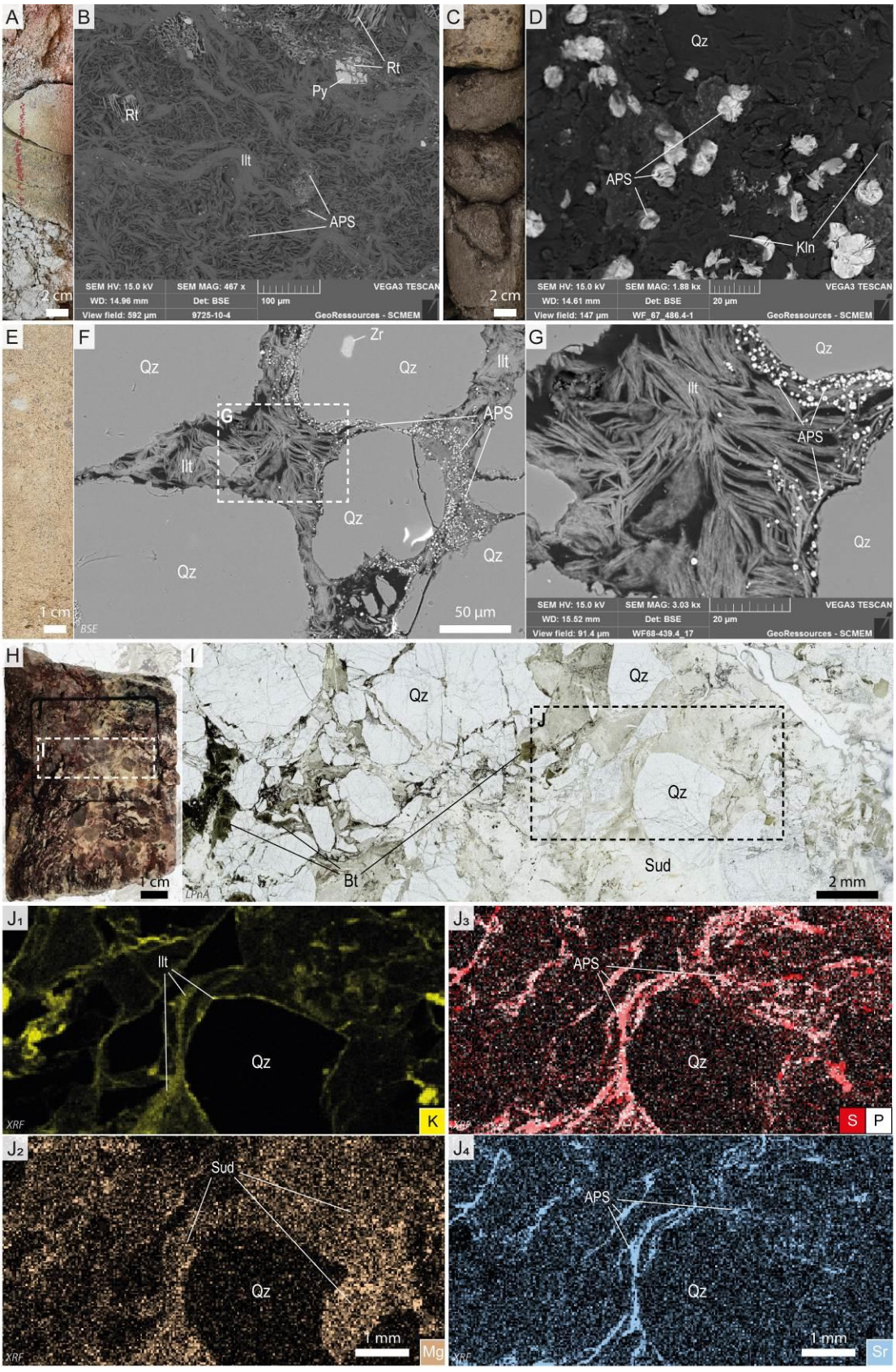

A
B
Rt
Py
Rt
Ilt
APS
2 cm
SEM HV: 15.0 kV
SEM MAG: 467 x
VEGA3 TESCAN
WD: 14.96 mm
Det: BSE
100 µm
View field: 592 µm
9725-10-4
GeoRessources - SCMEM
C
2 cm
D
Qz
APS
Kln
SEM HV: 15.0 kV
SEM MAG: 1.88 kx
VEGA3 TESCAN
WD: 14.61 mm
Det: BSE
20 µm
View field: 147 µm
WF_67_486.4-1
GeoRessources - SCMEM
E
1 cm
BSE
F
Zr
Qz
Qz
Ilt
G
APS
Ilt
Qz
Qz
Qz
50 µm
G
Qz
Ilt
APS
Qz
SEM HV: 15.0 kV
SEM MAG: 3.03 kx
VEGA3 TESCAN
WD: 15.52 mm
Det: BSE
20 µm
View field: 91.4 µm
WF68-439.4_17
GeoRessources - SCMEM
H
I
1 cm
LPnA
Qz
Qz
J
Qz
Bt
Sud
2 mm
J1
Ilt
Qz
XRF
K
J3
APS
Qz
XRF
S
P
J2
Sud
Qz
1 mm
XRF
Mg
J4
APS
Qz
1 mm
XRF
Sr

Figure 6.6 : A-B : Echantillon de bassin MCS-34_170,1. A) Photographie de l'échantillon de gouge (i.e., roche de faille de déformation fragile composée essentiellement de matrice argileuse). B) Photographie au microscope électronique à balayage (MEB) en électrons rétrodiffusés (BSE) de la matrice argileuse composée essentiellement d'illite (Ilt) sur laquelle se fixent des alumino-phosphates-sulfates (APS). De nombreux minéraux de rutile (Rt) sont également présents ainsi que des grains de pyrite (Py) automorphes fracturés (probablement pré-APS) et recoupés par le rutile. C-D : Echantillon de bassin WF-67_486,4. C) Photographie d'une gouge argileuse dans un intervalle de grés. D) Photographie au MEB en BSE de la matrice de la gouge, composée essentiellement de quartz (Qz) et de kaolinite (Kln) associée à des APS. E-G : Echantillon de bassin WF-68_439,4. E) Photographie d'un grès grossier très argilisé. F) Photographie au MEB en BSE de l'échantillon. Les clastes de quartz (Qz) arrondis ont subi une altération sur leurs bordures (dissolution). Certains contiennent des inclusions de zircon (Zr). La matrice argileuse qui altère le quartz est composée d'illite (Ilt) et d'APS nanométriques à micrométriques. G) Zoom sur F : les APS tendent à se localiser en bordure de porosité. H-J : Echantillon de socle WF-68_498,5. H) Photographie de l'échantillon de granitoïde oxydé et très largement altéré par une matrice silicatée beige. I) Photographie microscopique en lumière polarisée non analysée (LPnA) de l'encadré en pointillés blancs sur H. Les clastes de quartz apparaissent fracturés et altérés par la matrice silicatée, la biotite (Bt) est altérée et associée à des oxydes opaques. La fracturation intense et les nombreux clastes anguleux révèlent une fracturation type « hydraulique » en surpression fluide. J_{1-4} : Cartographies XRF de l'encadré en pointillés noirs sur I. J_1) Cartographie du potassium (K) en jaune, localisé en bordure de clastes et dans certaines fractures recoupant la matrice silicatée, correspondant aux zones riches en illite (Ilt). J_2) Cartographie du magnésium (Mg) en beige porté par la matrice silicatée constituée de chlorite magnésienne (sudoïte – Sud). J_3) Cartographie du soufre (S) en rouge et phosphore (P) en blanc mettant en évidence la présence d'APS associés à l'illite. J_4) Cartographie du strontium (Sr) en bleu, également porté par les APS.

6.2.1.3 Altérations dans le socle à MCS et WF

Altération oxydante régionale sous la discordance

L'altération oxydante pré-Athabasca dans le socle sous le Bassin de l'Athabasca est caractérisée par deux zonations distinctes décrites comme une zone rouge (« Red Zone ») dans les premiers mètres marquée par une hématitisation intense (Figure 6.6H), et une zone verte (« Green Zone ») plus profonde affectée par une chloritisation intense (Figure 6.14). La zone rouge témoigne d'un environnement fortement oxydant, souvent associé à une altération à kaolinite. Son épaisseur varie généralement entre 5 et 30 mètres, bien qu'elle puisse être plus développée dans des zones fortement fracturées. La zone verte est une zone de transition vers des milieux plus réducteurs, elle présente une forte altération à chlorite ferromagnésienne avec une épaisseur typique de plusieurs dizaines de mètres selon l'intensité de fracturation et la lithologie du socle.

L'altération oxydante tend à pénétrer plus profondément dans les granites et pegmatites, où les fractures favorisent la circulation des fluides, atteignant parfois plus de 50 mètres de profondeur. En revanche, dans les gneiss pélitiques et les zones de cisaillement à graphite et pyrite, l'altération est généralement moins profonde.

Paragénèses minérales post-Athabasca dans le socle

Plusieurs altérations post-Athabasca dans le socle sont liées à des circulations hydrothermales. Comme pour le bassin, elles se localisent sous forme de halo autour des zones de failles et sont contrôlées à petite échelle par des réseaux fracturés. Trois principales paragénèses post-Athabasca coexistent dans le socle à MCS ainsi qu'à WF.

La première association minérale, en matrice des microbrèches hydrothermales (Figure 6.7A) et remplissage de fractures (Figure 6.7B-D), est constituée de chlorite (magnésienne et/ou ferromagnésienne), de phyllosilicates potassiques, de pyrite (Py_4) et occasionnellement de chalcopyrite (Table 6.1, Figure 6.7). Les fractures sont particulièrement marquées dans les environnements magmatiques et dans les leucosomes (Figure 6.7A-E) et provoquent une altération diffuse dans les gneiss : les fluides ayant circulé dans ces fractures remplacent le quartz et les feldspaths dans les restites (Figure 6.7J), et altèrent le grenat, la biotite et les feuillets du graphite (Gr_1) paraissent écartés par le passage du fluide silicaté (Figure 6.7J-K). Cette paragénèse est également présente au sein des brèches non-cohésives de socle localisées au contact de structures pré-Athabasca. La sudoite (i.e., chlorite magnésienne) en association avec l'illite est omniprésente dans la matrice de ce type de brèche non cohésive et altère les minéraux issus du métamorphisme tels que les biotites et les feldspaths (Figure 6.9A-D). L'illite pénètre également dans les fractures des pyrites (Figure 6.9C-D - Py_{2-3}) préalablement cristallisées dans la roche de faille plus ancienne (i.e., cataclasite pré-Athabasca).

La deuxième association minérale, dans les brèches de faille non cohésives et en microfractures dans les intervalles fortement altérés, se compose principalement d'illite et de pyrite (Py_5) sous la zone d'altération oxydante liée à la discordance (Figure 6.9E-H), et d'illite et d'APS à strontium (i.e., goyasite) dans la zone oxydée sous la discordance (Figure 6.6H-J).

La troisième paragénèse, rencontrée dans des fractures peu profondes sous la discordance, est composée de sidérite en association avec de l'illite, et parfois d'un mélange à

chlorite magnésienne et illite. Le cœur de ces veines est à sidérite, l'illite seule à grandes cristallites (plusieurs dizaines de µm) est au contact de la sidérite et le mélange chlorite-illite se situe aux épontes (Figure 6.8). La sidérite est partiellement oxydée par de l'hématite (Figure 6.8B-C) et contient des zones à plus forte concentration de manganèse (Figure 6.8D, Mn). L'illite, plus riche en silicium (Si), se distingue nettement en imagerie EPMA par contraste avec la chlorite magnésienne qui est moins riche en Si mais a une teneur plus élevée en Mg (Figure 6.8D, Si, Mg).

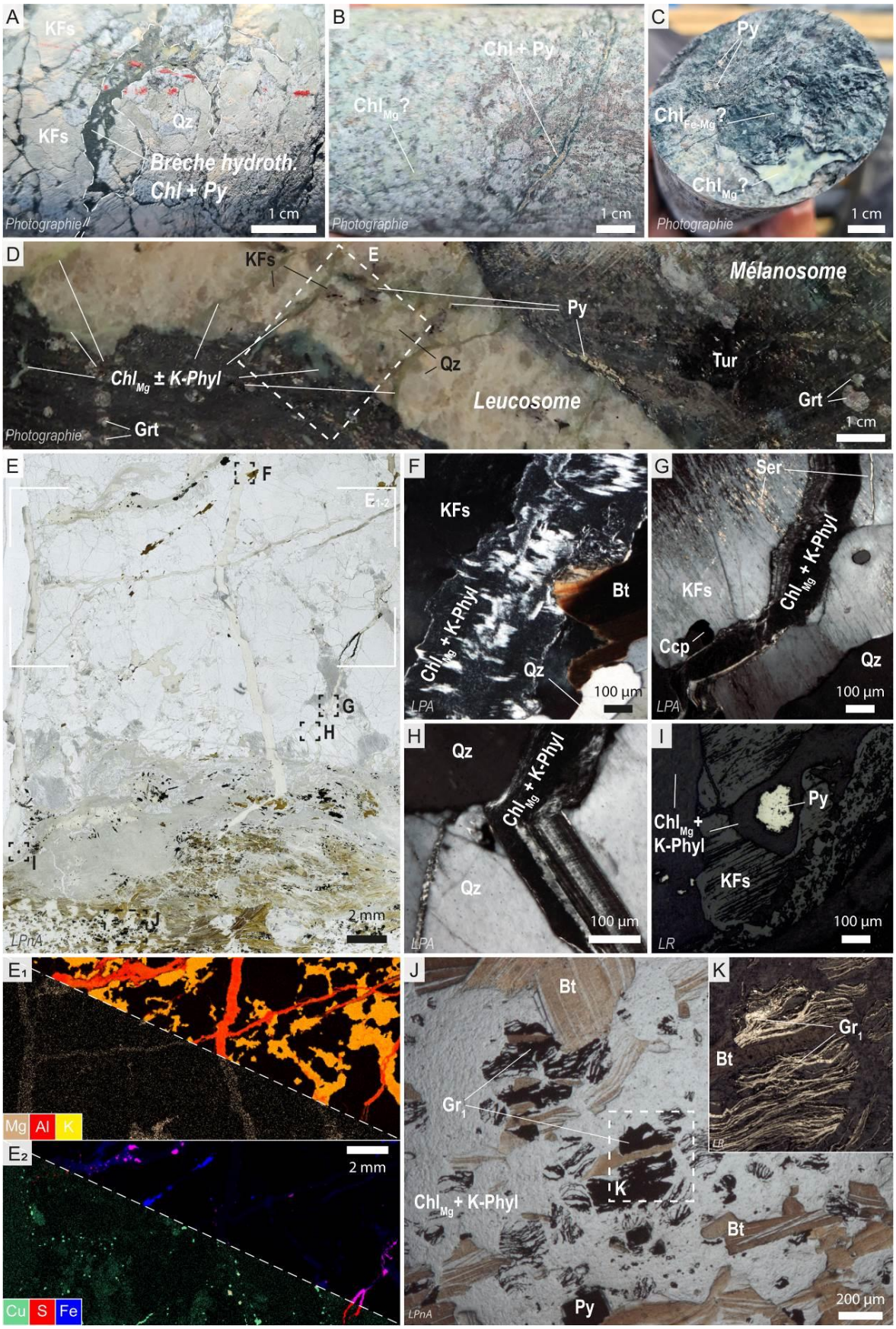

A
KFs
Qz
KFs
Brèche hydroth.
Chl + Py
Photographie
1 cm
B
Chl + Py
Chl$_{Mg}$?
Photographie
1 cm
C
Py
Chl$_{Fe-Mg}$?
Chl$_{Mg}$?
Photographie
1 cm
D
KFs
E
Mélanosome
Py
Qz
Chl$_{Mg}$ ± K-Phyl
Tur
Leucosome
Grt
Grt
Photographie
1 cm
E
F
G
H
I
2 mm
LPnA
F
KFs
Bt
Chl$_{Mg}$ + K-Phyl
Qz
100 µm
LPA
G
Ser
KFs
Chl$_{Mg}$ + K-Phyl
Ccp
Qz
100 µm
LPA
H
Qz
Chl$_{Mg}$ + K-Phyl
Qz
100 µm
LPA
I
Py
Chl$_{Mg}$ + K-Phyl
KFs
100 µm
LR
E1
Mg Al K
E2
2 mm
Cu S Fe
J
Bt
Gr1
K
Chl$_{Mg}$ + K-Phyl
Bt
Py
200 µm
LPnA
K
Gr1
Bt
LR

Figure 6.7 : A) Brèche hydrothermale à matrice de chlorite et pyrite (Py_4), et clastes anguleux de quartz et K-Feldspars dans une pegmatite. Les contours de la brèche sont délimités par des pointillés blancs. B) Veine de chlorite (aux épontes) et pyrite (Py_4, au cœur) dans un granite anatectique altéré en chlorite vert pomme (chlorite magnésienne – Chl Mg). C) Veine de chlorite et pyrite (Py_4) photographiée dans le plan de fracture. Deux types de chlorites sont présentes : vert sapin (chlorite ferromagnésienne probablement – Chl Fe-Mg) aux épontes et vert pomme au cœur (chlorite magnésienne probablement – Chl_{Mg}). D-K : Echantillon de migmatite WF-67_571,4. D) Photographie de la demi-carotte de forage. Le mélanosome est constitué de biotite, graphite (Gr_1), grenat, tourmaline dans une matrice à silicates. Le leucosome est principalement constitué de quartz et K-feldspars séricitisés, avec la présence de quelques biotites. Les veines à K-phyllosilicates ± chlorite ± pyrite (Py_4) sont plus marquées dans le leucosome mais les minéralisations associées sont également présentes dans le mélanosome. Photographies microscopiques en lumière polarisée non analysée (LPnA) correspondant à l'encadré en pointillés blancs de l'image D. E1) Cartographie XRF des éléments Mg (beige), Al (rouge) et K (jaune) correspondant à l'encadré blanc de l'image E. Les veines riches en K-phyllosilicates ± chlorite magnésienne ± pyrite (Py_4) apparaissent en orange foncé dans la partie supérieure de l'image, en raison de l'association Al + K, et en beige dans la partie inférieure, reflétant la présence de Mg. E2) Cartographie XRF des éléments Cu (turquoise), S (rouge) et Fe (bleu) correspondant à l'encadré blanc de l'image E. La pyrite (Py_4) se manifeste dans certaines sections des veines par une couleur fuchsia, due à l'association Fe + S. La chalcopyrite, mise en évidence par le Cu, est parfois associée à ces veines mais se trouve également disséminée dans les K-feldspaths. F) Photographie en lumière polarisée analysée (LPA) d'une veine à chlorite magnésienne (Chl_{Mg}) ± phyllosilicate potassique (K-Phyl) aux teintes de biréfringence du premier ordre, recoupant un leucosome constitué de quartz (Qz), K-Feldspar (KFs), et biotite (Bt). G-H) Photographies en LPA d'une veine à Chl_{Mg} + K-Phyl + chalcopyrite (Ccp) recoupant le leucosome constitué de KFs séricitisés (Ser) et de quartz. I) Photographie en lumière réfléchie (LR) d'un golfe de corrosion dans un KFs créé par une matrice à Chl_{Mg} + K-Phyl dans lequel croît un grain de pyrite (Py_4) sub-automorphe. J) Photographie en LPnA du mélanosome à matrice silicatée blanche (Chl_{Mg} + K-Phyl), biotite et graphite (Gr_1). K) Zoom en LR sur le graphite, dont les feuillets paraissent écartés par le passage du fluide silicaté et intercalés avec le mélange minéral Chl_{Mg} + K-Phyl.

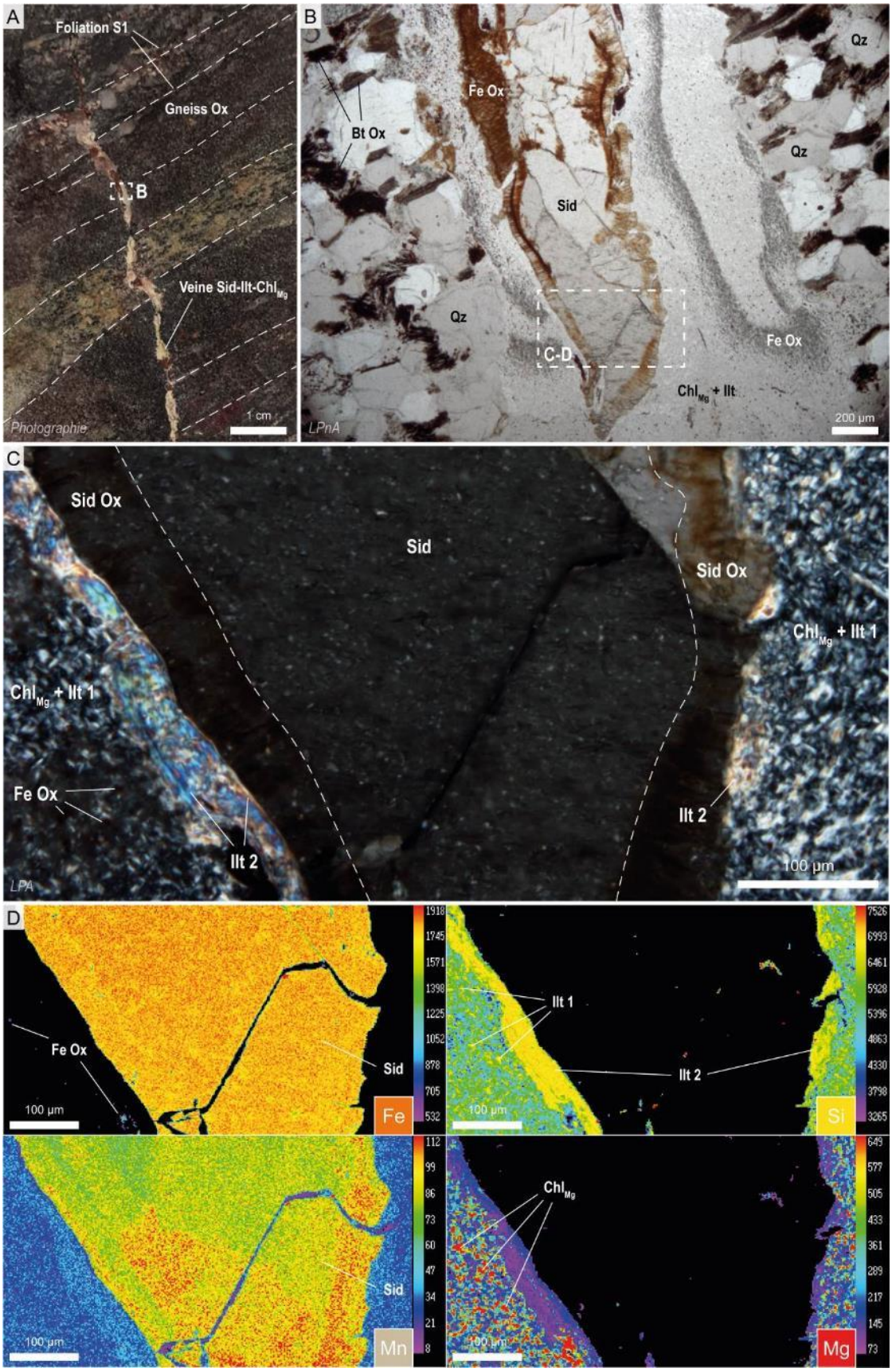

A
Foliation S1
Gneiss Ox
B
Veine Sid-Ilt-Chl$_{Mg}$
Photographie
1 cm
B
Fe Ox
Bt Ox
Qz
Qz
Sid
Qz
C-D
Fe Ox
Chl$_{Mg}$ + Ilt
LPnA
200 µm
C
Sid Ox
Sid
Sid Ox
Chl$_{Mg}$ + Ilt 1
Chl$_{Mg}$ + Ilt 1
Fe Ox
Ilt 2
Ilt 2
LPA
100 µm
D
Fe Ox
Sid
100 µm
Fe
Ilt 1
Ilt 2
100 µm
Si
Sid
100 µm
Mn
Chl$_{Mg}$
100 µm
Mg

Figure 6.8 : A-D : Echantillon WF-67_503,9. A) Photographie du gneiss pélitique partiellement oxydé (Gneiss Ox) donnant un couleur rougeâtre à la roche. Une veine beige recoupe la foliation métamorphique S1. B) Image microscopique en lumière polarisée non analysée (LPnA) de la veine identifiée dans A. La foliation S1 est marquée par l'alignement des grains de quartz (Qz) et des biotites oxydées (Bt Ox). La veine est principalement constituée de sidérite (Sid) au cœur oxydé sur ses bordures (Fe Ox) et d'un mélange à chlorite magnésienne (ChlMg) et illite (Ilt) aux épontes. C) Zoom en lumière polarisée analysée (LPA) sur l'image B. De l'illite en grosses plages fortement biréfringente (Ilt 2) apparait en bordure directe de la veine de sidérite. La masse argileuse aux épontes de la veine est constituée d'illite, de chlorite magnésienne et d'oxydes de fer (Fe Ox). D) Images en cartographie par microsonde électronique des éléments Fe, Mn, Si et Mg. L'échelle de couleur est une échelle d'intensité qui rend compte des valeurs en cps.

6.2.2 Caractérisation des structures post-Athabasca à MCS et WF

6.2.2.1 Description pétrographique

Deux types principaux de failles post-Athabasca dans le socle se distinguent par leur minéralogie : (i) les failles à sudoïte et illite (Figure 6.9A-D) et (ii) les failles à illite (Figure 6.9E-H). Ces deux types de failles sont présents à MCS et WF, bien que l'expression du second type soit plus marquée à MCS.

Pour le premier type, la texture « friable » des roches est due aux nombreuses fractures remplies de sudoïte, d'illite ou d'un mélange des deux phases minérales. Les biotites y sont altérées en chlorite ferromagnésienne, séricite et/ou muscovite (Figure 6.9A-D). Graphite et pyrite sont généralement présents dans ces failles, mais ils peuvent provenir des roches de faille formées avant le dépôt du bassin lors de l'orogénèse transhudsonienne (cf., *Chapitre 1* et *Chapitre 2*). Le graphite (Gr_2) est en général observable à la fois dans les cataclasites cohésives et dans les brèches non cohésives (Figure 6.9B). Dans l'échantillon *WF-82_514,7* (Figure 6.9A-D), une brèche hydrothermale à quartz recoupe la cataclasite cohésive (Figure 6.9A-B) et présente un contact « rectiligne » sans traces d'arrachage (Figure 6.9B), indiquant qu'elle est postérieure à la roche de faille pré-Athabasca. Cette brèche recoupe également le graphite (Gr_2) dans la roche de faille post-Athabasca (Figure 6.9C). L'événement de déformation fragile ayant conduit à la précipitation d'illite et de sudoïte est responsable des textures d'arrachage visibles sur la brèche hydrothermale (Figure 6.9B), démontrant qu'il est survenu ultérieurement. De manière similaire au graphite Gr_2, les pyrites fracturées (Figure 6.9C-D) semblent avoir été formées avant cet épisode de déformation fragile.

Pour le second type, présent à la fois dans le socle (Figure 6.9E-H) et dans le bassin (Figure 6.6 A-B), le quartz est partiellement (Figure 6.9H) voire complètement remplacé par de l'illite (Figure 6.6B) et autres minéraux associés. Lorsqu'il est encore présent, la déformation n'engendre pas ou peu de recristallisation des grains (Figure 6.9F-G), ne permettant pas la cohésivité de ce type de roche de faille.

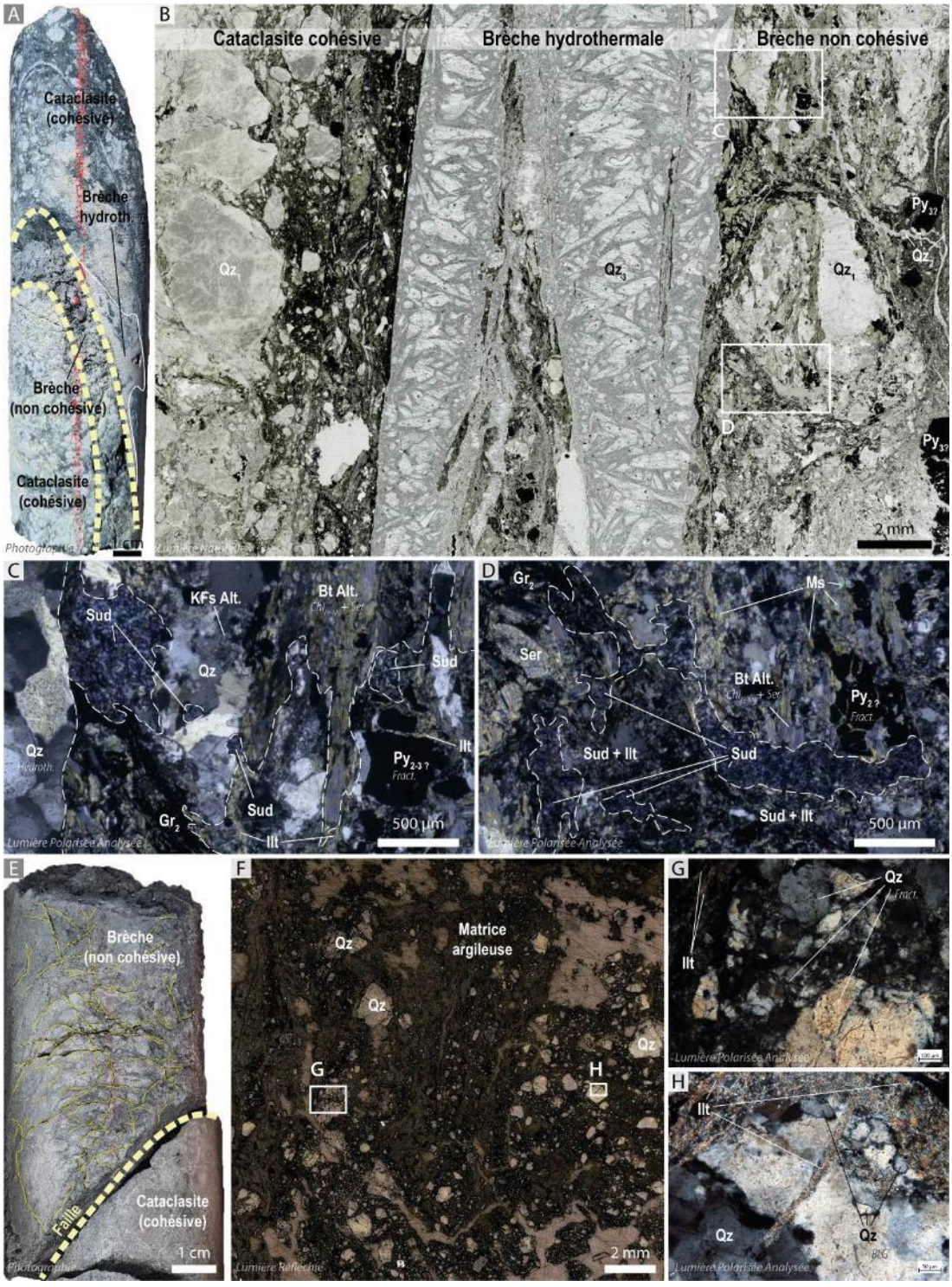


Figure 6.9 : A-D : Echantillon WF-82_514,7. A) Photographie d'une roche de faille ayant subie de multiples évènements de déformation. A minima, i) un évènement de déformation ductile-fragile formant la cataclasite cohésive, ii) un évènement de brèche hydrothermale et iii) un évènement de déformation fragile associé à la brèche de faille non cohésive. B) Image microscopique en lumière polarisée non analysée (LPnA) des trois intervalles de déformation de

l'échantillon. C-D) Image microscopique en lumière polarisée analysée (LPA) de la brèche non cohésive. La texture « friable » de la roche est causée par les nombreuses fractures remplies par de la sudoïte (Sud), de l'illite (Ilt) ou un mélange des deux phases minérales (Sud + Ilt). Les biotites sont altérées (Bt Alt.) par de la chlorite ferromagnésienne, de la séricite (Chl_{Fe-Mg} + Ser) et de la muscovite (Ms). Les pyrites (Py_{2-3}) sont fracturées et probablement formées avant la déformation fragile. E-H : Echantillon MCS-35C_265,4. E) Brèche non cohésive riche en argile au contact d'une cataclasite cohésive. F) Image microscopique en lumière réfléchie (LR) dans la brèche non cohésive. Les clastes de quartz (Qz) sont fortement fracturés et la matrice est principalement constituée d'argile. Le quartz est fracturé et présente des degrés variables de dissolution. G) Claste de quartz très fracturé sans recristallisation. L'illite (Ilt) est le minéral argileux le plus abondant entre les grains. H) Zoom sur un claste de quartz montrant des fractures remplies d'illite (Ilt). Le quartz présente des motifs de recristallisation ("bulging recrystallization", BLG) typiques d'une cristallisation à moyenne-basse température (T < 400 °C). Le quartz est dissous de manière variable et peut être traversé par des veinules d'illite. Toutes les autres phases minérales ont été remplacées par de l'illite.

6.2.3 Paramètres structuraux des failles et fractures à MCS et WF

La catégorisation « faille post-Athabasca » (Figure 6.10A et E) inclut les brèches non cohésives et gouges de socle mais ne distingue pas l'altération à sudoite-illite (Figure 6.10A-D) de l'altération à illite dominante et Py_5 (Figure 6.10E-H). A WF, les failles post-Athabasca montrent une orientation unique ouest-est (Fig. 1A) équivalente au principal groupe de données mesurées pour les cataclasites pré-Athabasca (Figure 6.11A). A MCS, le peu de données structurales acquises sur les failles post-Athabasca (Figure 6.10E) ne permet pas de montrer une tendance principale et ne semble pas corréler aux données mesurées sur les failles pré-Athabasca (i.e., cataclasites) de la même zone, orientée est-ouest (Figure 6.11B). Le plan de faille dans l'échantillon *MCS-34_265,4* au contact entre une brèche non cohésive et une cataclasite (Figure 6.9E), orienté sud-ouest nord-est (Figure 6.10E), apparait alors comme séquent.

Deux familles de fractures à uranium dans le bassin sont identifiées à WF (Figure 6.10C) à l'aide d'imagerie acoustique en televiewer (Milési et al., en revue) : i) une famille de fractures sub-horizontales avec une densité de pôles au centre du stéréo et ii) une famille orientée dans le plan sud-ouest nord-est à fort pendage. Cette deuxième famille de fracture présente approximativement la même orientation et le même pendage qu'une famille de cataclasite pré-Athabasca dans le socle à WF (Figure 6.11A). A MCS, l'uranium dans les structures de bassin est très majoritairement porté par des fractures sub-horizontales (Figure 6.10F).

Dans le socle à WF, les fractures à chlorite (magnésienne et ferromagnésienne), phyllosilicates et Py_4 (Table 6.1, Figure 6.7) sont pour la plupart sub-horizontales (Figure 6.10B). En revanche, les plans de faille qui portent cette paragénèse (Figure 6.10B, plans rouges) montrent une orientation principale est-ouest similaire à l'orientation des gouges et brèches non cohésive de la même zone d'étude (Figure 6.10A).

Les fractures à illite et sidérites mesurées dans le socle à WF montrent une composante majeure avec un plan moyen orienté nord-ouest sud-est et un pendage d'environ 40°, ainsi qu'une seconde composante orientée est-ouest (Figure 6.10D) semblable aux plans mesurés pour les brèches de faille non cohésives du même prospect (Figure 6.10A).

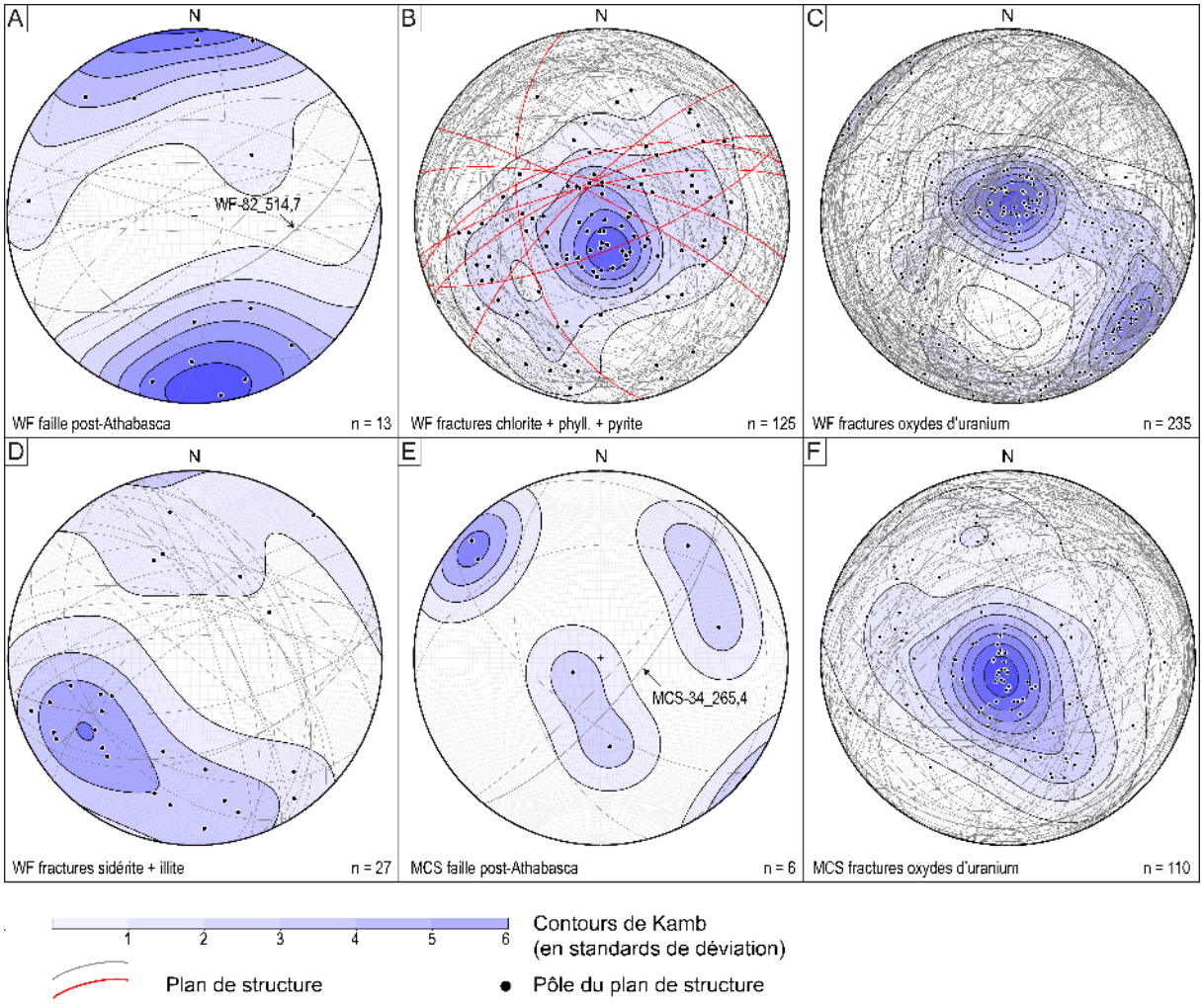


Figure 6.10 : Projections stéréographiques de Wulff de la densité des pôles des plans d'orientation pour les différents types de structures post-Athabasca. A) Gouges et brèches non-cohésives de socle à Waterfound (WF), avec mise en

évidence de l'orientation du plan de faille de l'échantillon WF-82_514,7 en Figure 6.9A-D (type d'altération indifférencié). B) Fractures et veines de socle à chlorite magnésienne, phyllosilicates et pyrite (Py_4) à WF. C) Fractures et veines à uraninite dans le bassin pour le forage WF-68, d'après Milési et al., en revue. D) Fractures et veines de socle à illite et sidérite à WF. E) Gouges et brèches non-cohésives de socle à McClean South (MCS), avec mise en évidence de l'orientation du plan de faille de l'échantillon MCS-34_265,4 en Figure 6.9E-H. F) Fractures et veines à uraninite dans le bassin pour le forage MCS-50, d'après Milési et al., en revue.

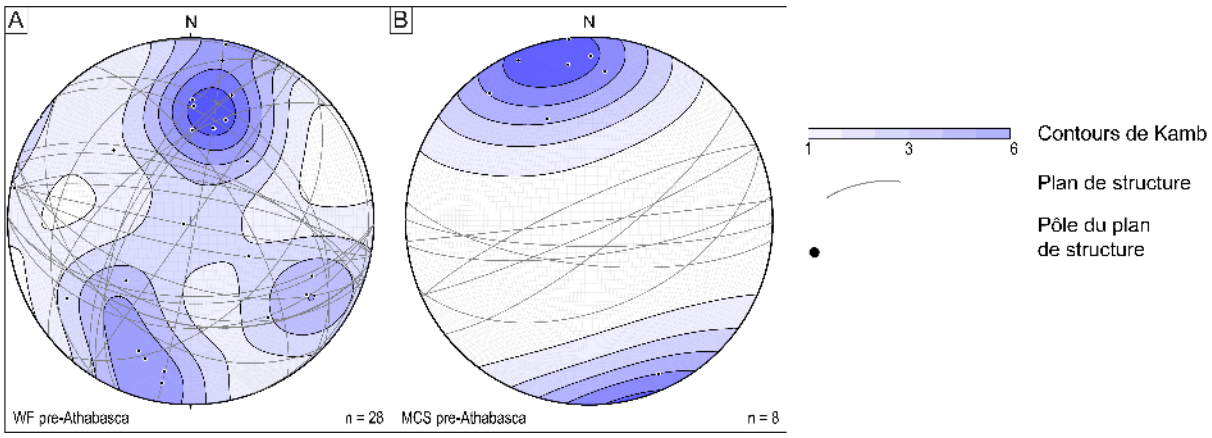


Figure 6.11 : Projections stéréographiques de Wulff de la densité des pôles des plans d'orientation pour les failles pré-Athabasca. A) Cataclasites dans le socle de Waterfound (WF). B) Cataclasites dans le socle de McClean South (MCS).

6.3 Discussion

6.3.1 Synthèse des descriptions pétrographiques et structurales post-Athabasca

6.3.1.1 Séquences paragénétiques

L'état actuel du système, tel qu'il apparaît dans les forages, reflète une longue histoire marquée par de multiples épisodes de circulation de fluides métamorphiques, hydrothermaux et météoriques. Ces circulations fluides, intimement liées aux événements de métamorphisme et aux déformations dans les zones de cisaillement ou le long des failles, ont façonné le socle et le bassin jusqu'à aujourd'hui. La séquence paragénétique pour le socle à WF et MCS avant le dépôt du bassin a été présentée dans le *Chapitre 1* puis reprise dans le *Chapitre 2*. Cette sous-partie reprend les bases définies précédemment pour y intégrer les évènements post-Athabasca (Figure 6.12 et Figure 6.13).

Le principal minéral constitutif des grès et conglomérats du bassin sédimentaire de l'Athabasca est le quartz. Il est associé dans des fractions mineures à d'autres minéraux

détritiques tels que le feldspath, les micas (biotite et muscovite), la tourmaline, le zircon et le rutile (Figure 6.12). Des phases minérales sont précipitées ultérieurement lors de la diagénèse du bassin (Figure 6.12). L'hématite se forme dès les premières étapes de la diagenèse, précipitant à partir de fluides oxydants. Elle est souvent associée à des grains de quartz et à des phases de kaolinite (Kotzer et al., 1992). Cette dernière est formée lors de la diagenèse précoce, souvent par altération des feldspaths (Kotzer and Kyser, 1995). L'illite et la smectite indiquent une évolution des conditions de température, augmentant avec la profondeur. L'illite est plus stable sous des conditions diagénétiques avancées (Kister et al., 2005). La dickite est une phase stable sous des conditions de diagenèse avancée (>200 °C), elle remplace la kaolinite et est associée à des environnements de recristallisation profonds (Cloutier et al., 2010).

Les altérations hydrothermales (Figure 6.13) dans le bassin, liées aux déformations, ne sont pas clairement positionnées par rapport aux phases minérales issues de la diagénèse.

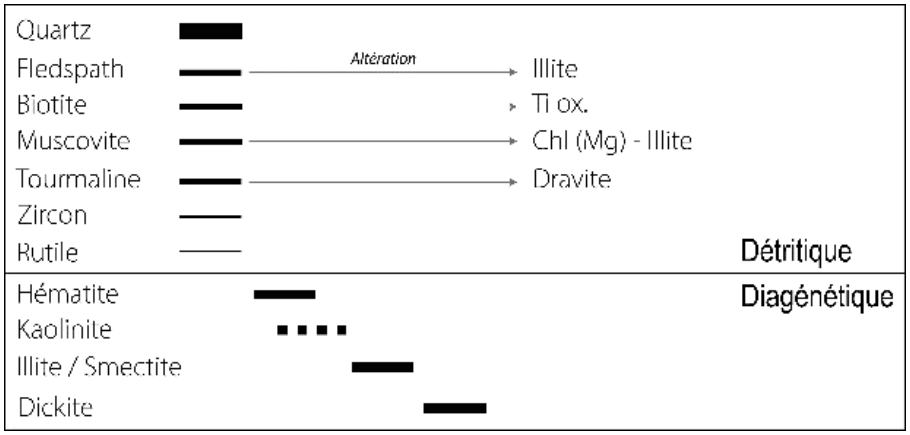


Figure 6.12 : Séquence paragénétique du Groupe Athabasca présentant les minéraux détritiques contenus dans les formations sédimentaires (en haut), et leur altération classique observée (Ti Ox = oxyde de titane indifférencié ; Chl (Mg) = chlorite magnésienne). L'épaisseur du trait noir varie en fonction de la concentration du minéral dans les grès et conglomérats. Les phases minérales issues de processus diagénétiques apparaissent dans la partie inférieure de la figure.

Deux polytypes d'illite, 1Mc (cis-vacant) sous forme de grandes plages et 1Mt (trans-vacant) filamenteux, coexistent dans les halos d'altération des gisements d'uranium (Kister et al., 2005 ; Laverret et al., 2006). Le 1Mc est associé à des fluides diagénétiques, tandis que le 1Mt reflète un hydrothermalisme postérieur (Laverret et al., 2006). Un troisième polytype, 2M1, associé aux processus diagénétiques est identifié dans le bassin, sans lien direct avec altérations

hydrothermales des gisements d'uranium (Halter, 1988 ; Drits et al., 1993). Plusieurs générations d'illite ont été identifiées à MCS et WF dans le socle et dans le bassin, associées à des paragénèses minérales singulières. La chronologie d'apparition de ces phases est synthétisée dans la Figure 6.13. La caractérisation des polytypes n'a pas été effectuée dans le cadre de ces travaux.

L'hématite est le principal oxyde de fer rencontré à MCS et WF, dans les environnements diagénétiques et hydrothermaux. Certaines fractures à oxyhydroxydes de fer (par ex, goéthite et/ou limonite) ont été observées et considérées comme tardives dans le système, ne figurant donc pas dans la séquence paragénétique centrée autour de la minéralisation d'uranium primaire (Figure 6.13).

Les phases minérales telles que la sudoite, la pyrite, la sidérite et la matière carbonée autour des minéralisations uranifères (Figure 6.13) sont associées à des conditions chimiques réductrices, et les phases minérales postérieures à l'uranium (Figure 6.13) témoignent de conditions plus oxydantes avec la présence d'oxydes de fer et titane et d'APS par exemple.

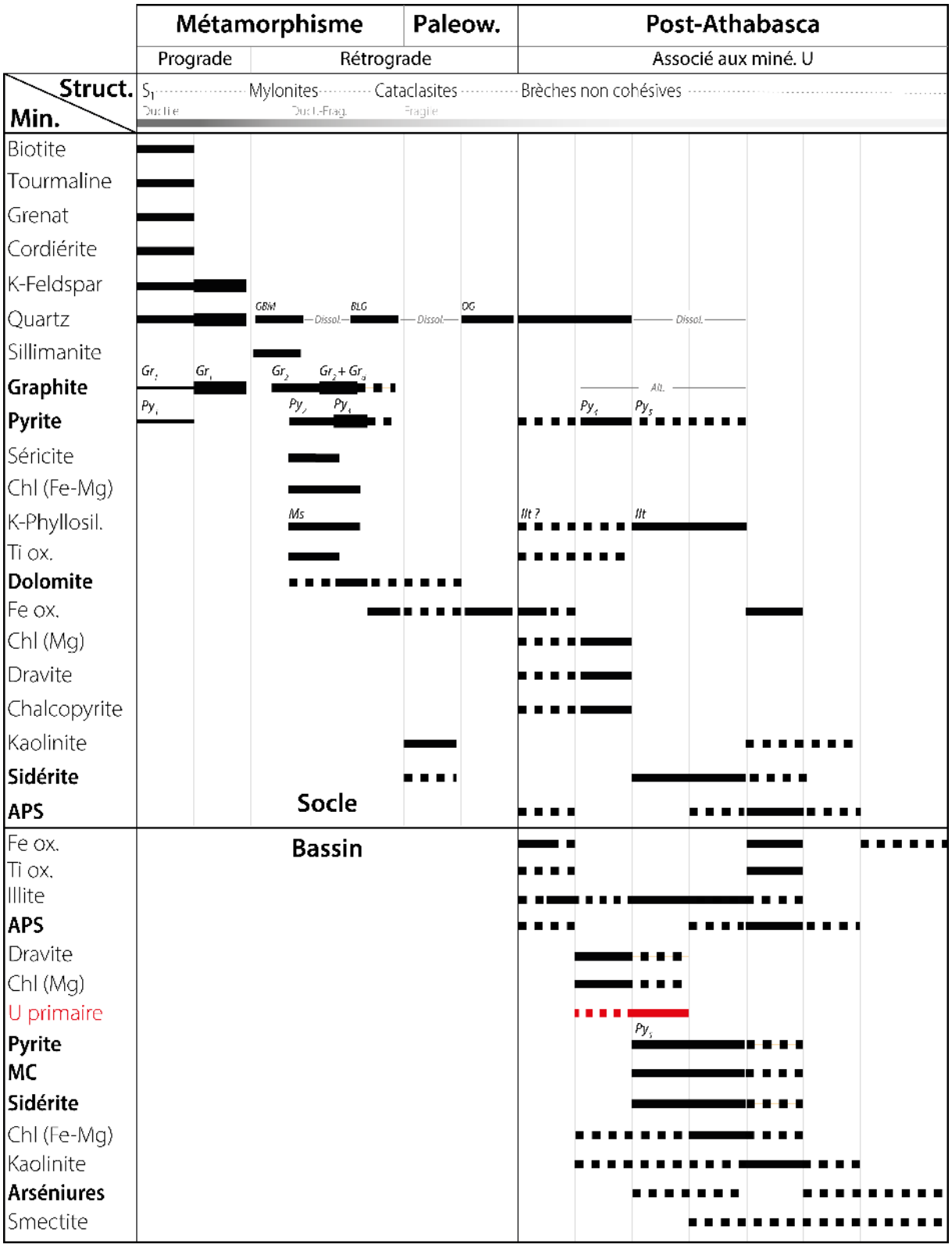


Figure 6.13 : Séquence paragénétique globale de l'ensemble des phases minérales observées dans ces travaux dans le socle et le bassin de McClean South (MCS) et/ou Waterfound (WF). Les grands évènements géologiques considérés

sont le métamorphisme (prograde et rétrograde), l'altération oxydante type « Paleoweathering » (Paleow.) dans le socle exhumé avant le dépôt du bassin et les phases minérales Post-Athabasca autour des minéralisations d'uranium. Les paragénèses du socle et du bassin sont séparées en deux groupes. Les lignes en pointillés marquent les incertitudes. L'uranium primaire n'a été observé que dans le bassin pour ces deux zones d'étude, et apparait en rouge dans la séquence. Les minéraux porteurs de carbone et de soufre sont surlignés en gras. Min. = Minéral ; Struct. = Structure ; S_1 = foliation métamorphique principale ; Gr_1 = graphite métamorphique ; Gr_2 = graphite hydrothermal ; Gr_d = graphite désorganisé ; Py_{1-3} = cf. Chapitre 2 ; Py_{4-5} = cf. sous-parties précédentes de ce chapitre ; K-Pyllosil. = phyllosilicate potassique indifférencié ; Ilt = Illite ; APS = alumino-phosphate-sulfate ; Chl (Fe-Mg) = chlorite ferromagnésienne ; Chl (Mg) = chlorite magnéisenne ; Ti ox. = oxyde de titane (TiO_2) indifférencié ; Fe ox. = oxyde de fer indifférencié ; MC = matière carbonée ; U primaire = minéralisation d'oxyde d'uranium primaire (UO_2).

La chlorite directement associée à l'uranium dans le gisement (Figure 6.3D-E), liée à l'épisode de fracturation hydraulique du quartz, peut être formée lors de l'épisode de minéralisation uranifère ou postdater celle-ci en fracturant à la fois le quartz et les oxydes d'uranium. Par comparaison, Martz, (2018) a montré que pour le gisement de Cigar Lake, la chamosite (i.e., chlorite ferreuse trioctaédrique) était associée à des minéralisations d'uranium secondaires et issues de la remobilisation des minéralisations primaires.

La précipitation de pyrite ne peut avoir lieu que dans des environnements réducteurs avec une disponibilité de Fe (II) et de soufre réduit (par ex, sulfure d'hydrogène H_2S). Les APS et le rutile correspondent à des minéraux formés par des phases oxydées. Leur présence avec la pyrite (Py_5, associée à l'illite) au sein d'une même gouge (Figure 6.6A-B) ne peut pas être liée à un même évènement de déformation. La pyrite (Py_5) de ce même échantillon paraît fortement altérée et est recoupée par du rutile. Les sulfates générés (par ex, SO_4^{2-}) lors de l'oxydation de la pyrite seraient alors disponibles pour précipiter les APS.

6.3.2 Localisation des porteurs de C et S dans le système de type discordance

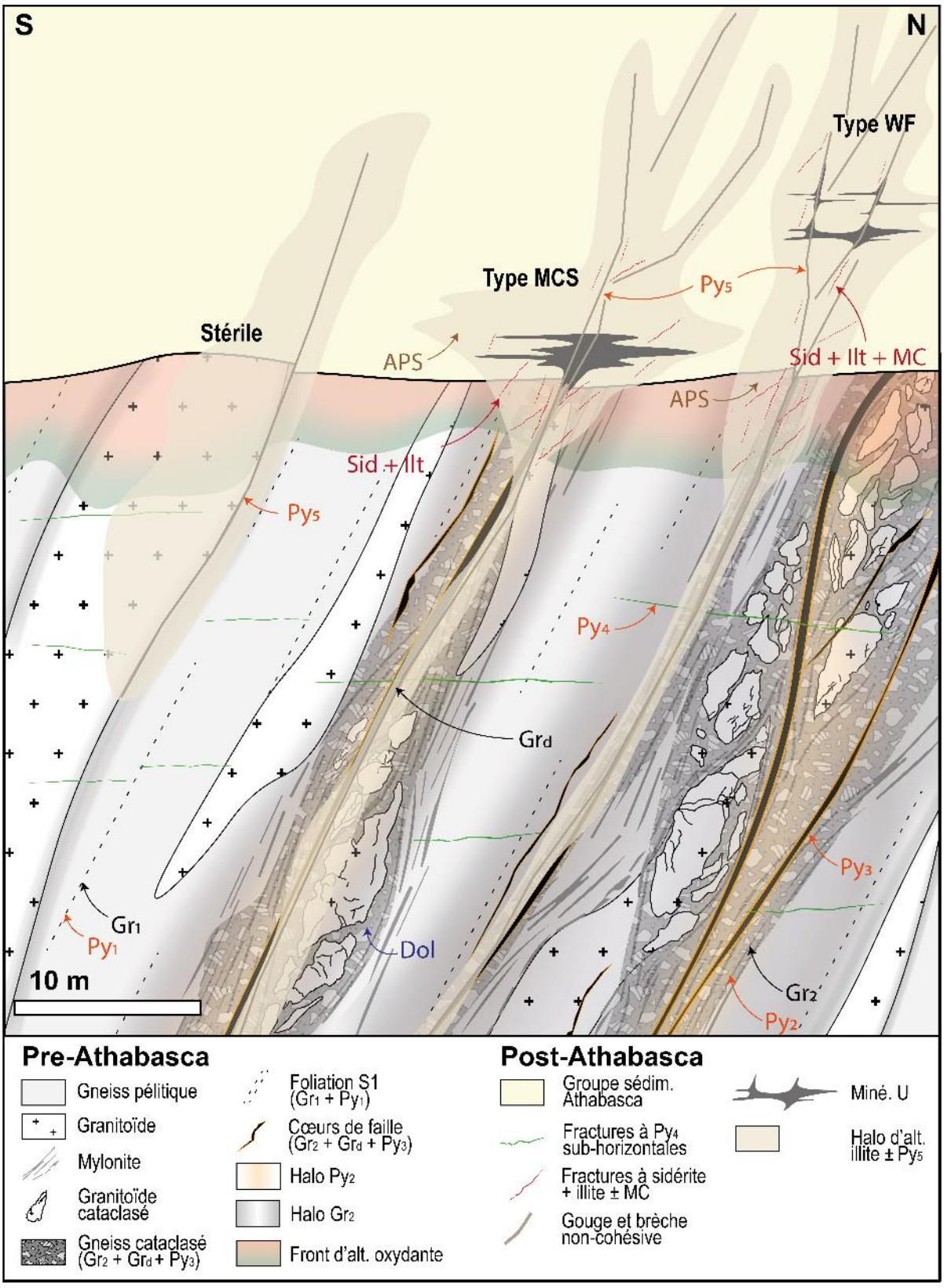


Figure 6.14 : Coupe schématique de la localisation des différents porteurs de carbone et de soufre dans les gisements d'uranium de type discordance du Bassin de l'Athabasca pour des systèmes non minéralisés (« Stérile ») et des minéralisations dans le bassin, semblables à celles de McClean South (Type MCS) et Waterfound (Type WF). Le socle est principalement constitué de gneiss pélitiques, contenant des teneurs variables en graphite (cf. Chapitre 1), et d'intervalles magmatiques (type « granitoïde »). Des zones de cisaillement de déformation ductiles (mylonites) et ductile-fragiles (cataclasites foliées) et ainsi que des zones de faille fragiles (cataclasites) affectent le socle avant le dépôt du bassin et sont responsables d'enrichissements variables en graphite (Gr ; cf. Chapitre 1) et pyrite (Py ; cf. Chapitre 2). De la dolomite est également présente dans ces failles (Dol ; cf. Chapitre 3). Le socle exhumé subit des circulations de fluide oxydantes dans ses premiers mètres qui sont responsables de fronts d'altération d'abord rougeâtres puis verdâtres. Les failles activées et réactivées après le dépôt des séries sédimentaires de l'Athabasca (« gouges et brèches non cohésives » en beige) traversent le socle et le bassin et sont responsables des générations de nouveaux types de pyrite dans des fractures sub-horizontales (Py_4 – fractures vertes) et dans les halos d'altération (Py_5 – halo beige). La géométrie de ces halos est guidée par les failles post-Athabasca et par la géométrie des minéralisations d'uranium (Miné. U). Ils contiennent également des fractures à sidérite-illite (Sid + Ilt), à sidérite-illite-matière carbonée (Sid + Ilt + MC) et des APS (alumino-phosphate-sulfates) dans les gouges ou disséminés dans les roches sédimentaires altérées.

6.3.3 Effet(s) des altérations oxydantes de surface pré-Athabasca sur les porteurs de C et S

Deux hypothèses principales peuvent être envisagées pour expliquer l'origine de l'altération oxydante observée dans les premiers mètres à dizaines de mètres sous la discordance (Figure 6.14). Une altération d'origine paléorégolithique a été proposée historiquement (par ex, Hoeve and Sibbald, 1978 ; Macdonald, 1980 ; Wilson and Kyser, 1987) ou à moindre mesure, sans atteindre un paléorégolithe, une altération de surface régionale type « paleoweathering » (Pascal et al., 2016a). Ce type d'altération est caractérisé par la présence d'hématite et de kaolinite, souvent interprétées comme des marqueurs d'altérations météoriques dans les environnements précambriens (Kotzer and Kyser, 1995). Une deuxième explication est de considérer un ou plusieurs épisode(s) de circulation hydrothermale oxydante post-Athabasca avec une localisation préférentielle des fluides sous la discordance et, dans certains cas, dans les premiers mètres en base du bassin. Ces circulations, fréquemment observées dans d'autres systèmes de type discordance comme dans le Fossé Rhénan en France (par ex, Dezayes and Lerouge, 2019 ; Guillou-Frottier et al., 2013), résultent de la chenalisation des fluides par des failles et fractures créées ou réactivées autour de la discordance. La combinaison de ces deux processus est également envisageable. Une altération météorique ou paléorégolithique initiale aurait pu créer

des zones favorables à une circulation hydrothermale oxydante postérieure en augmentant la perméabilité des roches par la génération de fractures et d'altérations minérales.

Les altérations oxydantes ont significativement impacté la stabilité de certaines phases minérales et la distribution de certains éléments. Une perte significative de la pyrite dans les gneiss pélitiques et les roches de faille est observable dans de nombreux forages dans les premiers mètres sous la discordance (Figure 4.2 ; Figure 4.3 ; Figure 6.14). La perte simultanée de carbone et de soufre dans ces zones suggère que l'altération oxydante altère également le graphite et peut être associée à la génération de fluides réducteurs (Pascal et al., 2016a). De plus, les gneiss pélitiques affectés par ce type d'altération présentent une porosité et une perméabilité accrues par rapport au gneiss frais : les valeurs de perméabilité sont en moyenne plus grandes de deux ordres de grandeur (Scibek and Annesley, 2021). Les fluides postérieurs ont une plus grande propension à circuler dans cette zone.

6.3.4 Rôle des déformations post-Athabasca sur les mobilités de C et S

6.3.4.1 Premier évènement de déformation post-Athabasca

Un premier évènement de déformation est responsable des fractures plates et sub-horizontales (Figure 6.10B) à chlorite magnésienne type sudoïte, phyllosilicates et Py_4 (Figure 6.7) localisées dans le socle sous la zone oxydée associée à la discordance (Figure 6.14) et jusqu'en base des forages. Cet évènement hydrothermal est post-Athabasca de par la présence de chlorite magnésienne de type sudoïte qui est considérée comme un minéral formé à partir de saumures de bassin dans la région de l'Athabasca (Adlakha et Hattori, 2015 ; Kister et al., 2005 ; Ng et al., 2013 ; Percival et Kodoma, 1989) mais aussi en Australie dans le Bassin de McArthur River (Gigon et al., 2019 ; Skirrow et al., 2016). Cet évènement apparaît comme régional en étant associé à la fois aux zones de déformation à graphite-pyrite fertiles (i.e., associées à une minéralisation uranifère de type discordance) et stériles (i.e., le conducteur n'est pas associé à une minéralisation uranifère à la discordance). L'absence de ces veines sub-horizontales dans les premiers mètres sous la discordance suggère i) que des fluides postérieurs ont circulé dans cette zone et effacé leur présence, ou ii) que les conditions physico-chimiques nécessaires à la coprécipitation de ces minéraux n'étaient pas réunies dans cette zone.

La paragénèse minérale de ces fractures est également rencontrée dans certaines brèches non cohésives de socle correspondant à des cœurs de faille post-Athabasca. Ces failles à chlorite

magnésienne, phyllosilicates et Py_4 ont globalement la même orientation et le même pendage (Figure 6.10B – plans de structure en rouge) que l'ensemble des brèches de faille non cohésives (Figure 6.10A), que les mylonites (cf., *Chapitre 1*) et que les cataclasites à graphite pré-Athabasca (Figure 6.11). Elles s'inscrivent dans le même corridor structural constituant le « conducteur graphiteux ». Par ailleurs, hors des cœurs de failles, certaines fractures à chlorite magnésienne de type sudoite se localisent aux contacts ou au sein même des cataclasites pré-Athabasca (Figure 4.8A-B). Ainsi, cette déformation en régime fragile i) tend à réactiver les roches de faille préexistantes sous forme de nouvelles failles ou de fractures, et ii) provoque une fracturation plate à grande échelle dans le socle autour des zones de cisaillement à graphite et pyrite, et ce de manière régionale puisque ces fractures sont également observées dans les zones de Cigar Lake et de McArthur River dans l'est du Bassin (Figure 2.3). Ce mode de fracturation (i.e., fractures plates) associé à la présence de brèches hydrauliques (Figure 6.7A) suggère une précipitation en condition de surpression fluide (par ex, Phillips, 1972). Dans le bassin, les seuls marqueurs potentiels de cet événement largement observé dans le socle sont les fractures sub-horizontales contenant de l'uranium (Figure 6.10C et Figure 6.10F). Toutefois, les traces de cette déformation y sont rares, la chlorite magnésienne étant minoritaire dans la porosité intergranulaire et majoritairement remplacée par l'illite, compliquant ainsi les corrélations avec les processus décrits dans le socle. L'hypothèse selon laquelle les premières minéralisations d'oxydes d'uranium auraient précipité lors de cet épisode de déformation reste à explorer. Une autre possibilité serait une réutilisation ultérieure de ces fractures plates par des fluides riches en uranium lors d'un deuxième évènement de déformation.

6.3.4.2 Deuxième évènement de déformation post-Athabasca

Le deuxième évènement hydrothermal majeur post-Athabasca est associé aux larges enveloppes d'altération autour des minéralisations d'uranium dans le bassin. Le développement de ces halos d'altération survient pendant et après la précipitation de l'uranium (Figure 6.13). Ils sont généralement dominés par l'illite loin des failles ayant drainée les fluides. A proximité de ces failles et des minéralisations d'uranium, le nombre de fractures augmente et elles contiennent des remplissages à illite, sidérite, matière carbonée (à WF uniquement) et/ou à pyrite (Py_5) selon l'environnement où les fluides ont circulé. Les échantillons de brèches non-cohésives et gouges argileuses de socle les plus profonds révèlent une minéralogie peu variée, à illite dominante associée à des pyrites (Py_5) minoritaires (Figure 6.9E-H). Les échantillons de gouge argileuse les plus en surface (i.e., les plus éloignés des minéralisations à U) montrent la même paragénèse.

C’est autour des minéralisations que d’autres phases minérales apparaissent : Les alumino-phosphates-sulfates (APS) se localisent dans la porosité intergranulaire des halos d’altération du bassin, où ils sont associés à l’illite (Figure 6.6E-G). Ils sont également abondants dans les gouges de failles argileuses du bassin, où ils coexistent avec la Py_5 altérée (Figure 6.6A-B). Dans le socle, on les retrouve dans la zone oxydée sous la discordance, aussi en association spatiale avec l’illite (Figure 6.6H-J). Plusieurs études ont établi leur précipitation contemporaine à la formation des gisements d’uranium (Adlakha and Hattori, 2015 ; Gaboreau et al., 2005 ; Mercadier et al., 2011). La sidérite est présente en-dessous et au-dessus des gisements (Figure 6.14), elle n’a pas été observée dans les cœurs de faille mais seulement dans les fractures (Figure 6.8). A WF, une famille de ces fractures est subparallèle à la déformation post-Athabasca principale orientée est-ouest avec un pendage moyen de 70°. Une autre famille de fractures conjuguées à ce premier groupe, de même pendage, a une orientation nord-ouest sud-est et présente un angle moyen d’environ 60-70° avec le premier groupe (Figure 6.10D). Des billes de matières carbonées, en forme de nodules, sont associées à la sidérite et l’illite dans certaines fractures. Ces objets sont décrits comme contemporains à la précipitation de l’uranium dans le bassin de l’Athabasca (Sangély et al., 2007, 2005) ainsi que dans le bassin analogue du Thelon (Riegler et al., 2016).

Les failles et fractures mesurées dans le socle à WF, liées à ce deuxième évènement hydrothermal, n’ont pas les mêmes orientations que les fractures à uranium (Figure 6.10C). Cela n’est pas forcément lié à une discontinuité temporelle entre la précipitation de l’uranium et les déformations responsables des gouges à illite / Py_5 et fractures à illite / sidérite. La propagation d’une faille de socle dans le bassin n’est pas rectiligne et continue à cause des différences rhéologiques dans les deux milieux. Ainsi, les mêmes failles et fractures avec une certaine orientation dans le socle sont susceptibles d’exhiber des orientations différentes dans le bassin (Hardy and McClay, 1999). De plus, si l’uranium précipite sous des conditions de surpression fluide, alors les orientations des structures associées sont susceptibles de varier considérablement.

6.4 Conclusion

- À MCS et WF, les porteurs de carbone précipités dans un contexte post-Athabasca incluent la sidérite dans le socle et le bassin, et les nodules de matière carbonée observés exclusivement dans le bassin à WF. La sidérite précipite avec de l'illite ± mélange de chlorite magnésienne et d'illite ± pyrite ;

- À MCS et WF, les porteurs de soufre précipités dans un contexte post-Athabasca sont la pyrite (Py_4) dans les fractures sub-horizontales du socle, la pyrite (Py_5) dans les zones de faille à illite du socle et du bassin et les alumino-phosphates-sulfates (APS) associés aux altérations à illite ;

- La précipitation des oxydes d'uranium est associée aux enveloppes d'altération à illite, à Py_5 et aux fractures à sidérite (± matière carbonée).

Deux principaux types de structures sont associés aux deux événements majeurs de déformation post-Athabasca : i) des brèches non cohésives dans le socle, plus abondantes à WF qu'à MCS, et associées à une altération hydrothermale à chlorite magnésienne et phyllosilicates potassiques ; ii) des brèches non cohésives et gouges fortement altérées par de l'illite, présentes à la fois dans le bassin et le socle, et plus fréquentes à MCS qu'à WF. Les deux types de structures présentent une orientation principale parallèle à celle des zones de cisaillement à graphite détectées en électromagnétisme. Certaines structures associées au second évènement à MCS recoupent les structures à graphite et pyrite héritées.

Chapitre 5

Caractérisation isotopique de la sidérite et des pyrites en lien avec les gisements d'uranium

7 Introduction au chapitre 5

Après avoir décrit les différents minéraux porteurs de soufre et de carbone associés à des évènements post-bassin de l'Athabasca (cf. *Chapitre 4*), l'objectif de ce chapitre est d'apporter des contraintes sur les compositions isotopiques de la sidérite et des pyrites formées post-Athabasca, spatialement ou structuralement liées à l'uranium. En outre, ce chapitre explore les origines du carbone et du soufre lors de la précipitation des phases minérales post-Athabasca.

7.1 Matériel et méthode

Les rapports isotopiques de l'oxygène et du carbone ont été mesurés dans les sidérites formées après le dépôt du bassin de l'Athabasca à MCS et WF. Une description minéralogique des sidérites et de la paragénèse associée est présentée dans le *Chapitre 4*. Les conditions analytiques sont les mêmes que pour les dolomites présentées dans le *Chapitre 3*. Le standard développé en interne au CRPG « sidérite St-Pons » a les valeurs de référence suivantes : $\delta^{18}O_{V\text{-}SMOW}$ = 20,50 ‰ et $\delta^{13}C_{V\text{-}PDB}$ = -6,95 ‰. Ce standard a été analysé de façon systématique au cours des séances. La reproductibilité des mesures, exprimée par l'écart-type de la série de données, est de 1,13 ‰ pour la session analytique sur l'oxygène dans la sidérite et 1,20 ‰ pour les analyses sur le carbone dans la sidérite. La précision analytique interne sur les valeurs de $\delta^{18}O$ varie entre 0,60 ‰ et 0,62 ‰. De même, pour les valeurs de $\delta^{13}C$, la précision analytique interne pour la sidérite varie entre 1,05 ‰ et 1,42 ‰ avec en moyenne 1,23 ‰. Les échantillons analysés pour le carbone et l'oxygène sont présentés dans la Table 7.1 ci-dessous. Pour assurer la cohérence et permettre la comparaison avec les valeurs de $\delta^{13}C$ et $\delta^{18}O$, les valeurs d'oxygène ont été converties en V-PDB à l'aide de la formule suivante : $\delta^{18}O_{V-PDB} = 0{,}97002 * \delta^{18}O_{V-SMOW} - 29{,}98$ (Coplen et al., 1983).

Projet	Echantillon	Localisation	Description
Waterfound	WF-67_503.9	Socle	Veine de sidérite + illite + chlorite
Waterfound	WF-68_470	Bassin	Veine de sidérite + illite + pyrite
Waterfound	WF-67_499.1	Socle	Veine de sidérite
McClean South	MCS-51A_176,6	Socle	Veine de siderite + pyrite

Table 7.1: Tableau des échantillons de sidérite de MCS et WF utilisés pour les analyses isotopiques du carbone et de l'oxygène.

La méthodologie et le standard utilisés pour la pyrite sont identiques à ceux du *Chapitre 3*. Les échantillons de Py_4 et Py_5 analysés dans ce chapitre sont présentés dans la Table 7.2 ci-dessous.

Projet	Echantillon	Loc.	Type	Description
McClean South	MCS-34_238,8	Socle	Py5	Brèche non-cohésive dans un gneiss.
McClean South	MCS-34_265,4	Socle	Py5	Brèche non-cohésive dans une pegmatite.
McClean South	MCS-51A_176,6	Socle	Py5	Veine de sidérite + pyrite.
McClean South	MCS-58_157,5	Bassin	Py5	Pyrite dans une matrice de gouge contenant de l'uraninite.
Waterfound	WF-67_550,5	Socle	Py4	Veine de pyrite + chlorite + phyllosilicates.
Waterfound	WF-68_397,4	Bassin	Py5	Pyrite dans la fracture et autour, entre les grains de quartz.
Waterfound	WF-68-1_474	Bassin	Py5	Pyrite disséminée dans une brèche non-cohésive
Waterfound	WF-82_530,5	Socle	Py4	Veine de pyrite + chlorite + phyllosilicates. Textures de brèche hydraulique.

Table 7.2 : Tableau des échantillons de pyrites (Py_4 et Py_5) de MCS et WF utilisés pour les analyses isotopiques du soufre.

7.2 Résultats

7.2.1 Mesures du $\delta^{13}C$ et $\delta^{18}O$ dans la sidérite

Un total de 32 analyses isotopiques a été réalisé sur la sidérite, montrant des valeurs de $\delta^{13}C$ entre −23,48 ‰ et −8,61 ‰, avec une moyenne de −15,16 ‰. Le premier quartile (Q1) est à −17,27 ‰ et le troisième quartile (Q3) à −11,34 ‰ (Figure 7.1). Les valeurs de $\delta^{18}O_{V\text{-}PDB}$ s'étendent de −16,38 ‰ à −5,60 ‰, avec une moyenne de −11,77 ‰. Le Q1 est à −14,22 ‰ et le Q3 à −9,01 ‰ (Figure 7.1).

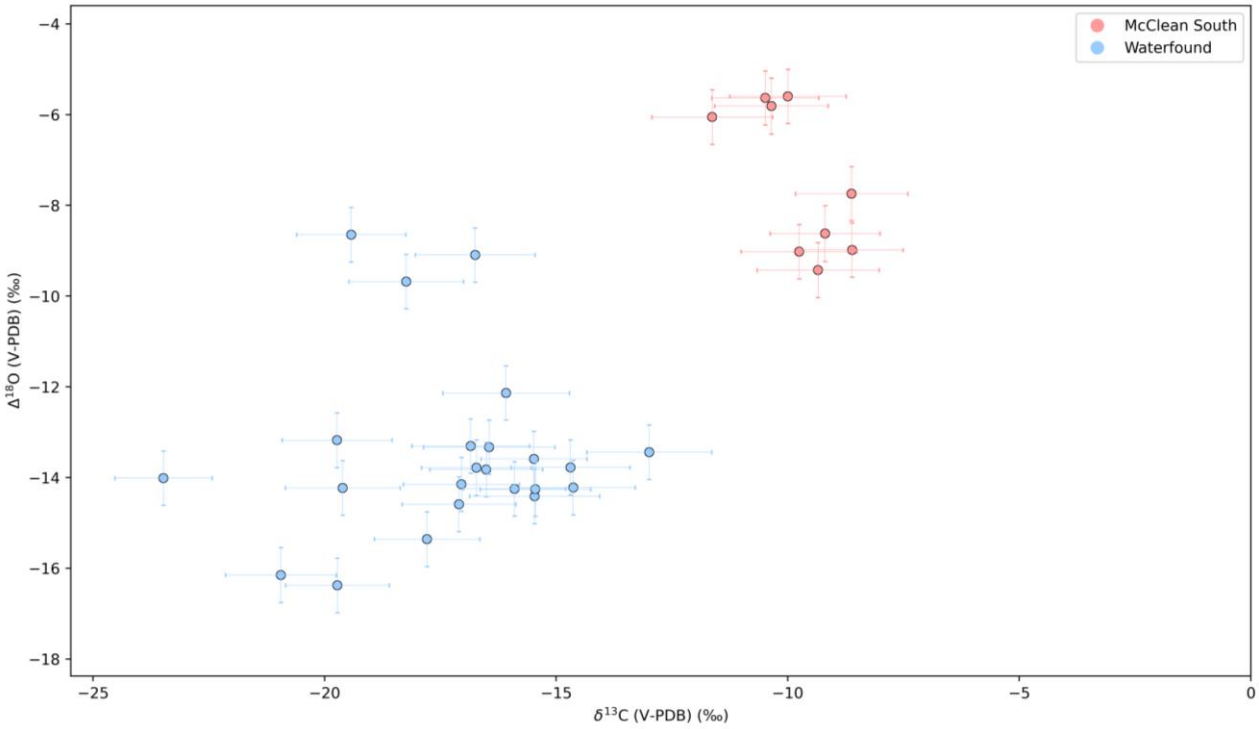


Figure 7.1 : Diagramme des valeurs de $\delta^{18}O_{V\text{-}PDB}$ (‰) en fonction des valeurs de $\delta^{13}C_{V\text{-}PDB}$ (‰) pour les sidérites de MCS (en rouge) et de WF (en bleu).

7.2.2 Mesures $\delta^{34}S$ et $\Delta^{33}S$ dans la pyrite (Py_4 et Py_5)

Un total de 180 analyses isotopiques a été réalisé sur la pyrite Py_4 montrant des valeurs de $\delta^{34}S$ entre −25,04 ‰ et +15,41 ‰, avec une moyenne de −5,17 ‰. Le premier quartile (Q1) est à −9,04 ‰ et le troisième quartile (Q3) à −3,85 ‰ (Figure 7.2, Figure 7.3). Les valeurs de $\Delta^{33}S$ s'étendent de −0,14 ‰ à +0,22 ‰, avec une moyenne de +0,03 ‰. Le Q1 est à −0,02 ‰ et le Q3 à +0,07 ‰, indiquant une distribution relativement homogène autour de zéro (Figure 7.3).

Pour la pyrite Py_5, 72 analyses isotopiques ont été réalisées. Les valeurs de $\delta^{34}S$ varient entre −26,96 ‰ et +18,20 ‰, avec une moyenne de −6,36 ‰. Le Q1 est à −20,35 ‰ et le Q3 à +6,05 ‰ (Figure 7.2, Figure 7.3). Les valeurs de $\Delta^{33}S$ vont de −0,14 ‰ à +0,45 ‰, avec une moyenne de +0,11 ‰. Le Q1 est à +0,04 ‰ et le Q3 à +0,19 ‰, montrant une légère asymétrie positive (Figure 7.3).

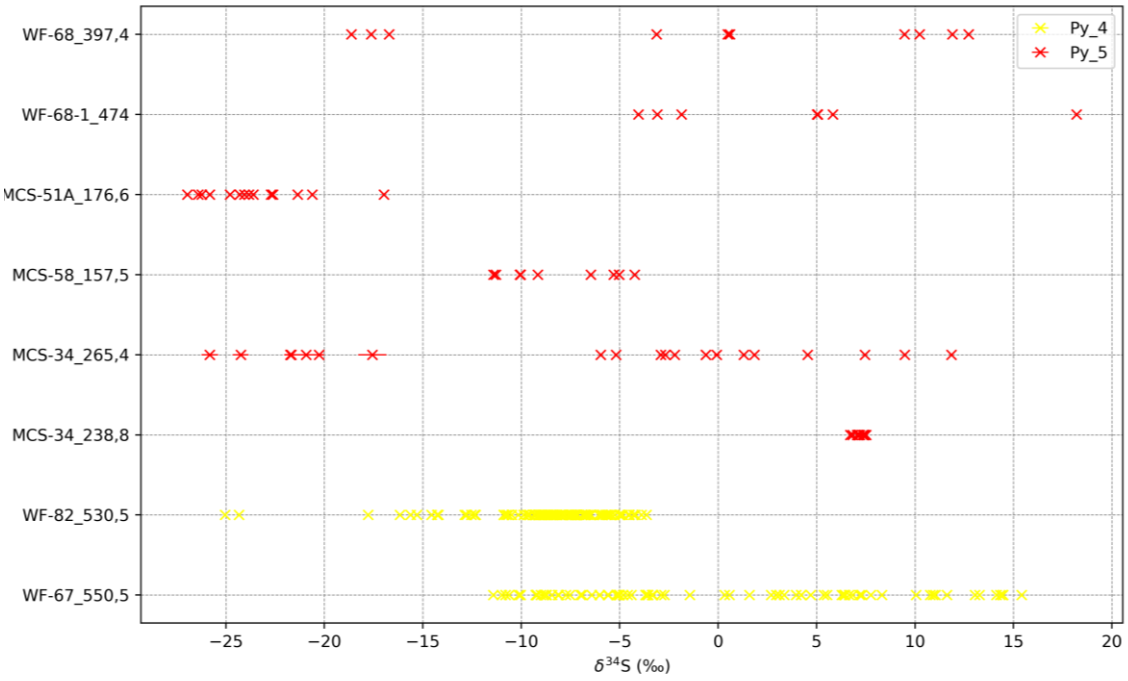


Figure 7.2 : Diagramme des valeurs de $\delta^{34}S$ (‰) par échantillon et par type de pyrite post-Athabasca (défini dans le Chapitre 4) à MCS et WF. La couleur jaune est attribuée à la Py_4 et la couleur rouge est attribuée à la Py_5.

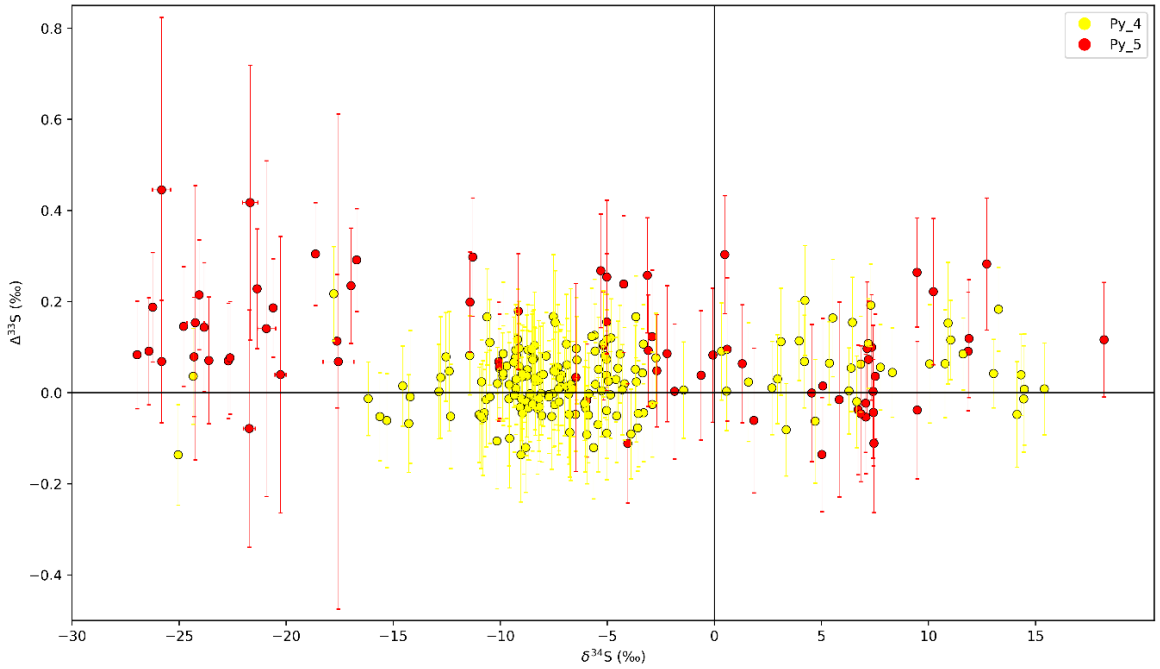


Figure 7.3 : Diagramme des valeurs de $\Delta^{33}S$ (‰) en fonction des valeurs de $\delta^{34}S$ (‰) par type de pyrite (définis dans le Chapitre 4) regroupant les deux projets d'explorations MCS et WF. La couleur jaune est attribuée à la Py_4 et la couleur rouge est attribuée à la Py_5.

7.3 Discussion

7.3.1 Origine du carbone et précipitation de la sidérite

De la même manière que ce qui a été montré dans le *Chapitre 3*, le graphite désorganisé dans les structures de déformation post-Athabasca (i.e., gouges et brèches non cohésives) montre des fractionnements isotopiques importants (cf. échantillons *MCS-34_265,4* et *SueD_225* dans Figure 5.3, Figure 7.4 et Table 5.3). Ces données importées dans le même modèle de fractionnement de Rayleigh que présenté dans le *Chapitre 3* montrent que le graphite altéré dégaze un mélange à $CH_4 \pm CO_2$ avec CH_4 à tendance majoritaire (Figure 7.4), contrairement aux évènements de déformation pré-Athabasca où le CO_2 était la phase dégazée prédominante (Figure 5.12). Les températures choisies pour la modélisation dans ce chapitre (240°C à 160°C) correspondent globalement à la gamme de température de déformation des gouges et brèches non cohésives (le quartz ne pouvant recristalliser qu'à partir de 250°C). A ce stade, du carbone est disponible dans les fluides sous forme de $CH_4 \pm CO_2$ et peut contribuer à la précipitation de nouvelles phases carbonées et/ou agir en tant que fluide réducteur pour des espèces en solution, notamment l'uranium.

La sidérite et les nodules de matière carbonée possèdent un lien génétique puisqu'ils sont retrouvés dans les mêmes fractures à WF (Figure 6.5) et à McArthur River (cf. *Partie C*). La sidérite précipite généralement à partir de Fe^{2+} et CO_3^{2-} selon (5.1), (5.2) et (5.3) (Carothers et al., 1988) :

(**5.1**) $CO_2 + H_2O \leftrightarrow HCO_3^- + H^+$

(**5.2**) $HCO_3^- + H^+ \leftrightarrow CO_3^{2-} + 2H^+$

(**5.3**) $Fe^{2+} + CO_3^{2-} \leftrightarrow FeCO_3$

En démarrant la réaction à partir de CH_4 ensuite oxydé en CO_2 par le Fe(III) présent dans l'hématite diagénétique en base de bassin et/ou l'hématite dans la zone oxydée en haut du socle (5.4) :

(**5.4**) $Fe_2O_3 + CH_4 \leftrightarrow 2FeO + CO_2 + 2H_2$

En démarrant la réaction à partir de CH_4 ensuite oxydé en CO_2 par des sulfates présents dans le bassin dans un environnement acide (5.5) :

(**5.5**) $SO_4^{2-} + CH_4 + 2H^+ \leftrightarrow CO_2 + H_2S + H_2O$

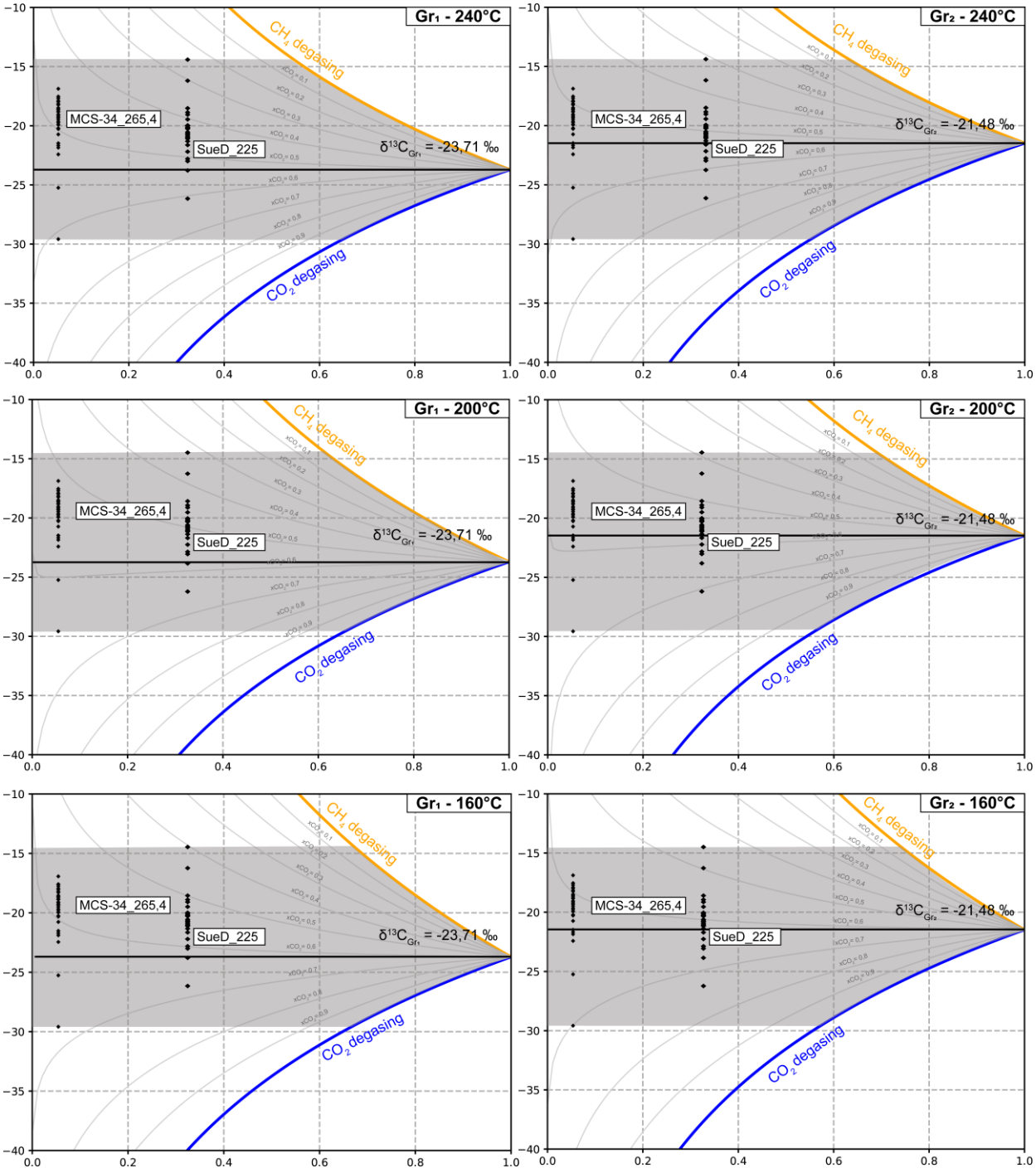


Figure 7.4 : Diagramme des valeurs de $\delta^{13}C$ en fonction de la fraction résiduelle de graphite (Gr_d) dans les failles à différentes températures (240°C, 200°C et 160°C), à MCS et WF selon un modèle de fractionnement de Rayleigh en système ouvert.

En utilisant le CO_2 et le CH_4 générés par la déstabilisation du graphite (Figure 7.4), il est possible de calculer les valeurs théoriques de $\delta^{13}C$ des sidérites formées à partir de ces gaz.
En prenant pour valeurs de $\delta^{13}C$ initiales la moyenne des valeurs moyennes du Gr_1 et Gr_2 de chaque prospect, on obtient :

- Pour WF, $\delta^{13}C$ = (-28,22 -26,93) / 2 = - **27,58 ‰**
- Pour MCS, $\delta^{13}C$ = (-23,71 -21,48) / 2 = - **22,60 ‰**

Ainsi, les valeurs de $\delta^{13}C$ pour le CH_4 et le CO_2 dépendent des coefficients de fractionnement propres aux deux gaz pour les températures considérées. Les résultats sont renseignés en Table 7.3 et la Figure 7.5.

T (°C)	**alpha Gr-CH_4**	**alpha Gr-CO_2**	**$\delta^{13}C$ CH_4**		**$\delta^{13}C$ CO_2**	
			WF	MCS	WF	MCS
240	-15.8	13.9	-43.4	-38.4	-11.1	-6.1
200	-19.5	14.4	-47.1	-42.1	-10.6	-5.6
160	-24.1	14.8	-51.7	-46.7	-10.2	-5.2

Table 7.3 : Table des valeurs de $\delta^{13}C$ des gaz générés à partir de la déstabilisation du graphite à plusieurs températures, en considérant une source de graphite différente entre MCS et WF avec des valeurs $\delta^{13}C$ respectives. Les coefficients de fractionnement alpha Gr-CH_4 et alpha Gr-CO_2 proviennent de Bottinga (1969) en Annexe 10.

Pour précipiter la sidérite à partir de CH_4 ou de CO_2, il faut considérer les fractionnements entre CH_4-sidérite et CO_2-sidérite aux températures de 260°C, 200°C et 140°C. Or, ces tables de fractionnement n'existent pas pour la sidérite à de telles températures. Des approximations seront réalisées à partir des fractionnements entre CH_4-calcite et CO_2-calcite définis par Bottinga (1969) dont les valeurs figurent en Annexe 10. *$\delta^{13}C$ (sidérite) = $\delta^{13}C$ (gaz) + alpha (gaz-calcite)*.
Les résultats sont présentés dans la Table 7.4 et la Figure 7.5.

Les modélisations, bien que sous estimant les valeurs de $\delta^{13}C$ (potentielles erreurs liées aux coefficients de fractionnement initialement établis pour la calcite), indiquent que les sidérites précipitent tout de même à partir d'un carbone d'origine organique, certaines valeurs étant même confondues avec les valeurs de $\delta^{13}C$ du graphite. La seule source de carbone biogénique disponible dans ce contexte est ce graphite présent dans le socle.

T (°C)	alpha CH_4-calcite	alpha CO_2-calcite	$\delta^{13}C$ sidérite (CH_4)		$\delta^{13}C$ sidérite (CO_2)	
			WF	MCS	WF	MCS
240	28.6	-1.2	-14.8	-9.8	-12.3	-7.3
200	33.6	-0.2	-13.5	-8.5	-10.8	-5.8
160	40	1.1	-11.7	-6.7	-9.1	-4.1

Table 7.4 : Table des valeurs de $\delta^{13}C$ de la sidérite précipitée à partir des gaz issus de la déstabilisation du graphite à plusieurs températures, en considérant une source de graphite différente entre MCS et WF avec des valeurs $\delta^{13}C$ respectives. Les coefficients de fractionnement alpha CH_4-calcite et alpha CO_2-calcite proviennent de Bottinga (1969) en Annexe 10.

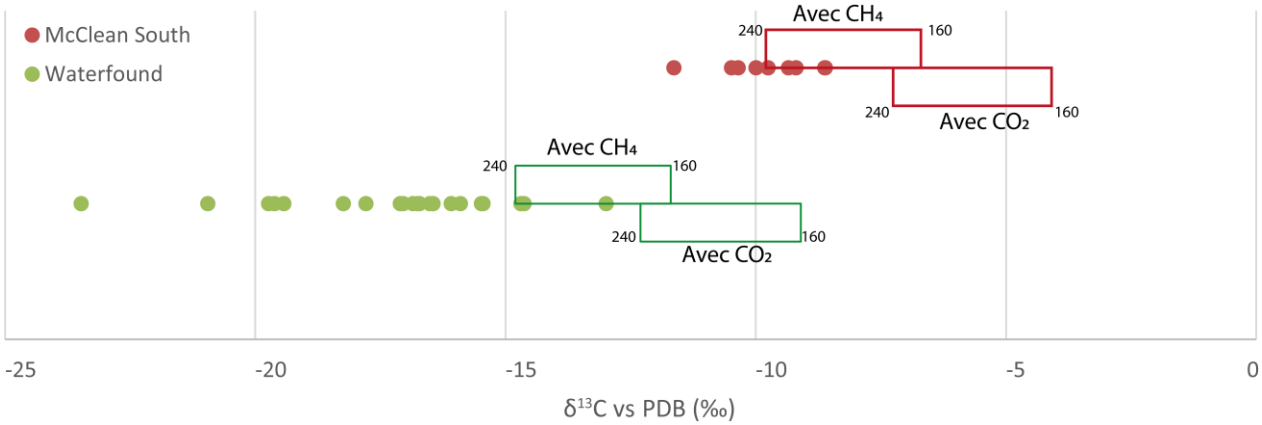


Figure 7.5 : Valeurs de $\delta^{13}C$ par prospect (WF en vert, MCS en rouge). Les rectangles représentent la gamme de valeurs de $\delta^{13}C$ théorique entre les deux températures limites (240°C et 160°C), pour une précipitation de sidérite à partir du CO_2 et du CH_4 issus de la déstabilisation du graphite.

Un autre argument en faveur d'une source de carbone provenant du graphite pour la formation des sidérites, repose sur les valeurs de $\delta^{13}C$ des sidérites seulement (sans même considérer la modélisation à partir du fractionnement). En comparant l'écart moyen entre les valeurs de $\delta^{13}C$ des sidérites à MCS et WF avec l'écart moyen des valeurs de $\delta^{13}C$ du graphite dans ces mêmes zones, on observe une correspondance significative qui renforce l'hypothèse selon laquelle le carbone du graphite et des sidérites est d'une origine commune.

7.3.2 Signification(s) d'un fractionnement isotopique important dans les pyrites post-Athabasca

Les pyrites (Py_4) associées à de la chlorite et à des phyllosilicates (Figure 6.7), en fractures sub-horizontales (Figure 6.10B), montrent des fractionnements isotopiques très importants (Figure 7.2, Figure 7.3) au sein de mêmes grains contrairement à la Py_3 dans les cataclasites (cf. *Chapitre 3*). Les cœurs des grains ont quasi-systématiquement les valeurs les plus hautes et les bordures les valeurs les plus faibles. Cela témoigne d'un fractionnement isotopique syn-précipitation induit par un changement de conditions physico-chimiques. Parmi elles, un changement de potentiel redox pendant la précipitation pourrait expliquer de telles valeurs. Si la pyrite précipite à partir de sulfates, qui génèrent du H_2S, lequel conduit ensuite à la formation de pyrite, les conditions redox du système évoluent progressivement vers un état de plus en plus réducteur. Dans ce contexte, le H_2S présent dans le fluide s'appauvrit progressivement en isotopes lourds et s'enrichit en isotopes légers au fur et à mesure de sa production (Seal, 2006). La pyrite qui précipite à partir de ce H_2S présente des valeurs de $\delta^{34}S$ de plus en plus faibles au fur et à mesure de la consommation du fluide. Ce fractionnement isotopique est d'autant plus important dans des environnements où les températures varient de manière significative. En effet, des études montrent que le fractionnement isotopique peut atteindre près de 50 ‰ à des températures autour de 100°C (Farquhar et al., 2003) et jusqu'à environ 25 ‰ à 250°C (Shanks et al., 1981). Une hypothèse plausible est que les valeurs $\delta^{34}S$ les plus négatives se forment à des températures élevées, par réduction du sulfate issu de l'oxydation de la Py_1. Ensuite, une re-précipitation plus tardive de la pyrite en Py_3 pourrait avoir eu lieu à des températures décroissantes. Dans ce scénario, il n'est pas nécessaire d'invoquer une autre source de soufre pour expliquer les observations.

De la même manière que pour les pyrites des cataclasites (Py_3), les pyrites associées aux brèches non cohésives post-Athabasca à illite (Figure 6.9 E-H) ainsi qu'aux fractures à illite et sidérite, montrent un fractionnement isotopique entre le ^{34}S et le ^{32}S très important (Figure 7.2, Figure 7.3). L'hypothèse d'un mélange de fluides est à considérer. Les valeurs isotopiques les plus positives pourraient également résulter de l'évolution progressive du fluide au cours du temps, par un phénomène de distillation de Rayleigh. Ce processus conduit à des enrichissements isotopiques qui peuvent dépasser les valeurs de $\delta^{34}S$ initiales de la source, comme celles enregistrées pour la Py_1.

7.4 Conclusion

Il est montré dans ce chapitre de manière indirecte, à travers les sidérites, que le graphite subit une déstabilisation, les co-produits de cette réaction étant utilisés pour précipiter le carbonate de fer. Par ailleurs, les analyses isotopiques montrent que le graphite des failles libère des quantités variables de gaz, avec une prédominance de CH_4 dans les failles post-bassin.

Les valeurs isotopiques des Py_4 révèlent un fractionnement isotopique syn-précipitation témoin de modifications des conditions rédox et/ou de la température au cours de la circulation des fluides. Les valeurs des Py_5 peuvent être expliquées par un mélange de fluides avec deux sources de S, ou par des processus de distillation de Rayleigh pour obtenir les valeurs de $\delta^{34}S$ les plus hautes.

Partie C

Discussion générale

8 Apports de l’étude des projets d’exploration de MCS et WF sur le(s) rôle(s) du carbone et du soufre dans la formation des gisements d’uranium

Cette partie examine l'origine et les modalités de transport des fluides avant et après le dépôt du Bassin de l'Athabasca. Certaines structures et circulations de fluides pré-Athabasca ont créé des conditions propices à la formation des gisements d'uranium, tandis que d'autres ont transporté l'uranium en solution et d’autres ont été des fluides réducteurs riches en carbone et/ou en soufre ayant potentiellement favorisé la précipitation des oxydes d'uranium.

Les cas d’étude de MCS et WF permettent de caractériser des critères pétrographiques et structuraux à différentes profondeurs : sous les gisements, au sein des gisements et au-dessus. Contrairement aux très grands gisements tels que Cigar Lake et McArthur River, où les altérations hydrothermales (par exemple, le développement de halos d’illite et sudoïte) sont fortement exprimées, les « petites » minéralisations offrent l’occasion d’étudier des environnements où les signatures primaires des différentes structures sont préservées (par ex, type de faille et remplissages de fractures). Sur les grands gisements, l’altération des carottes masque souvent les objets formés initialement avant l’argilisation massive. Par exemple, à Cigar Lake, les « conducteurs graphiteux » sous la discordance sont intensément remplacés par de la sudoïte, rendant les carottes friables, sensibles aux déformations induites par le forage et aux altérations superficielles dues au stockage prolongé en extérieur. Ces contraintes limitent les descriptions pétrographiques, les mesures structurales et le choix des échantillons sur le terrain. En revanche, l’étude de petites minéralisations permet d’identifier des phénomènes métallogéniques primaires, ou faiblement remobilisés, facilitant ainsi l’analyse des événements associés à un ou à très peu d’épisodes minéralisateurs à uranium. Ces systèmes relativement « préservés » offrent une opportunité unique d’isoler et de décrire des processus métallogéniques spécifiques.

Pour renforcer la pertinence de cette étude centrée sur deux petits prospects, leurs caractéristiques seront systématiquement comparées à celles des gisements de classe mondiale, Cigar Lake et McArthur River. Ces comparaisons s’appuieront sur les observations de terrain et les données acquises durant ce travail de thèse.

8.1 La terminologie « conducteurs graphiteux »

Cette section aborde la dénomination « conducteur graphiteux » en réponse à la question : Quelle est la réalité géologique derrière cette appellation ?

Nous analyserons cette problématique en plusieurs étapes :
i) en examinant les cas de Cigar Lake et McArthur River,
ii) en les comparant à McClean South et à Waterfound,
iii) en envisageant une origine commune avec les conducteurs situés dans la Province de Rae, à l'ouest de la région.

Ces comparaisons s'appuieront sur une matrice évolutive, intégrant un gradient d'expression de plusieurs paramètres pour chaque zone étudiée. Cette matrice, introduite dans cette section pour les socles des différents prospects, sera enrichie par la suite sur la base d'autres critères, afin de proposer une vision intégrée et comparative des contextes étudiés.

8.1.1 Nature des lithologies et structures dans les conducteurs graphiteux

À Cigar Lake, le socle est essentiellement constitué de métatexites intercalées avec des intrusions magmatiques (granite et/ou pegmatite) et portant de nombreuses fractures à graphite. Sous le gisement, les gneiss « œillés » riches en graphite et à porphyroblastes de cordiérite et feldspaths sont abondants (Bruneton et al., 1993 ; Martz et al., 2017). Les roches de faille se composent principalement de roches ductiles (mylonites) ou ductile-fragiles (cataclasites foliées) formées lors du métamorphisme régional, associées à des cataclasites peu lithifiées (Figure 8.1) plus tardives.



Figure 8.1 : Echantillon du forage U-488 (Cigar Lake), présentant trois types de déformation : Déformation ductile (gneiss œillé), déformation ductile-fragile (cataclasite foliée) et déformation fragile (cataclasite).

À McArthur River, l'encaissant est dominé par des gneiss pélitiques avec des intervalles contenant du graphite métamorphique, accompagnés de quelques métatexites. Peu de mylonites composent les roches de faille. La déformation associée à de larges précipitations de graphite et pyrite est marquée par la présence de cataclasites et de cataclasites foliées (Figure 8.2).

8.1.2 Taille et distribution des zones de faille à graphite ± pyrite

À Cigar Lake, les cœurs de faille des structures de déformation fragile et ductile-fragile sont généralement petits (souvent centimétriques, quelques dizaines de centimètres au maximum). Ces failles sont associées à de larges halos contenant le graphite hydrothermal en remplissage de fractures ou précipitant aux contacts inter-grains entre les minéraux primaires du métamorphisme (Figure 8.3). Les cœurs de faille fragiles et ductile-fragiles sont espacés à intervalles réguliers.

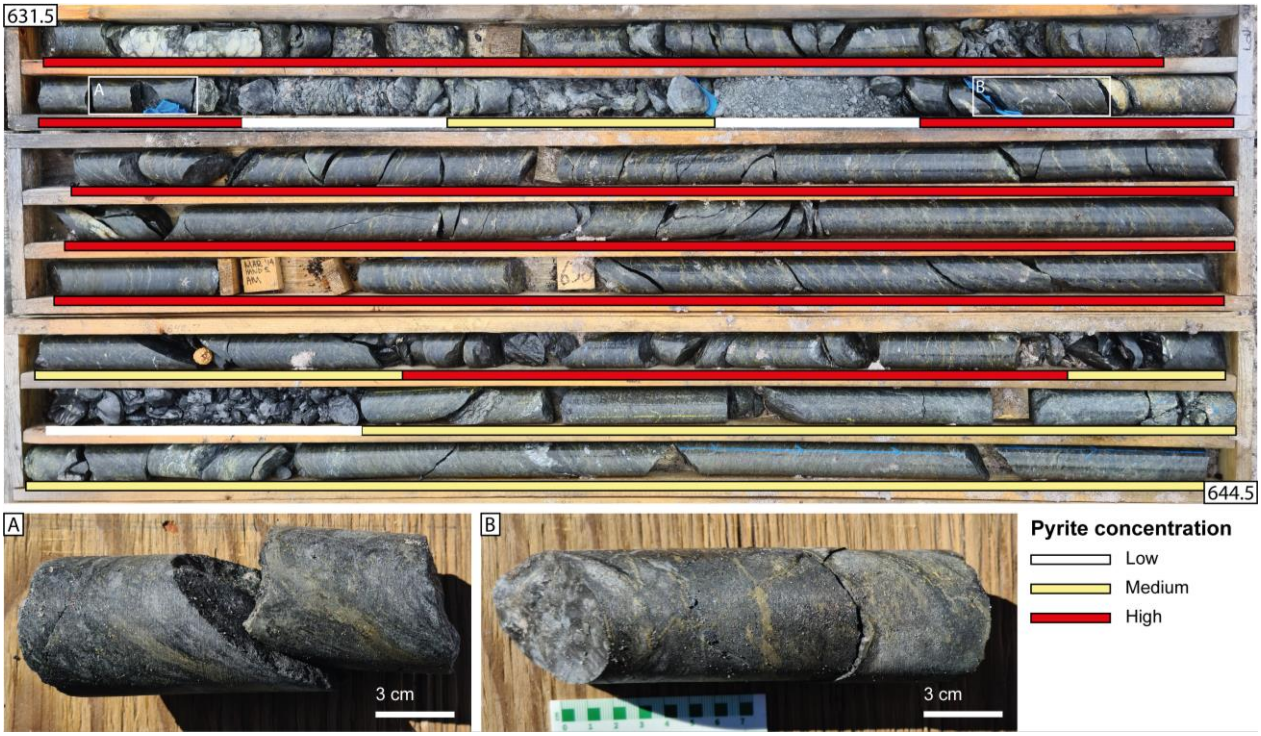


Figure 8.2 : Forage MC-418 (McArthur River) montrant de forts enrichissements en pyrite (rouge), quelques intervalles modérément enrichis (jaune) et des intervalles où la concentration de pyrite est faible (blanc). Les deux échantillons en photo sont des roches de faille de la transition ductile-fragile (i.e., cataclasites foliées) riches en graphite et en pyrite.

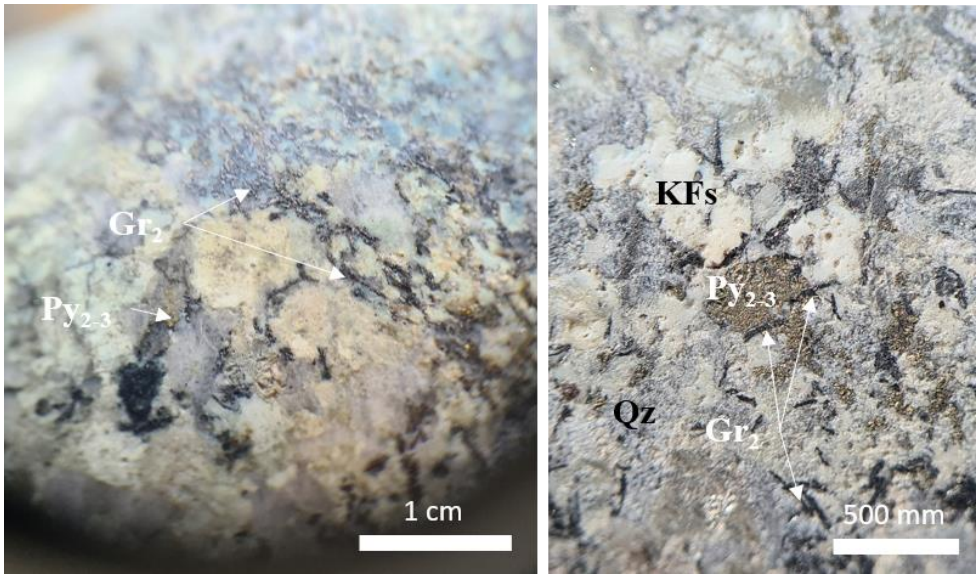


Figure 8.3 : Photos d'une métatexite du forage U-488 (Cigar Lake) enrichie en graphite (Gr_2) et pyrite (Py_{2-3}) aux contacts ou recoupant les grains de quartz (Qz) et feldspaths (KFs).

A McArthur River, les cœurs de faille des structures de déformation fragile et ductile-fragile, associent graphite et une grande quantité de pyrite. La zone de faille est marquée par une précipitation intense de pyrite présente en fractures et réutilisant la foliation métamorphique (Figure 8.2). Il y a, de manière générale, plus de pyrite dans les conducteurs graphiteux à McArthur River que dans les trois autres zones d'études comparées ici (MCS, WF et Cigar Lake). De la même manière qu'à Cigar Lake, le graphite hydrothermal est présent à la fois associé à la pyrite à l'intérieur et proche des cœurs de faille, mais aussi plus éloigné où il recoupe les minéraux du pic de métamorphisme par endroit comme le quartz ou la tourmaline (Figure 8.4).

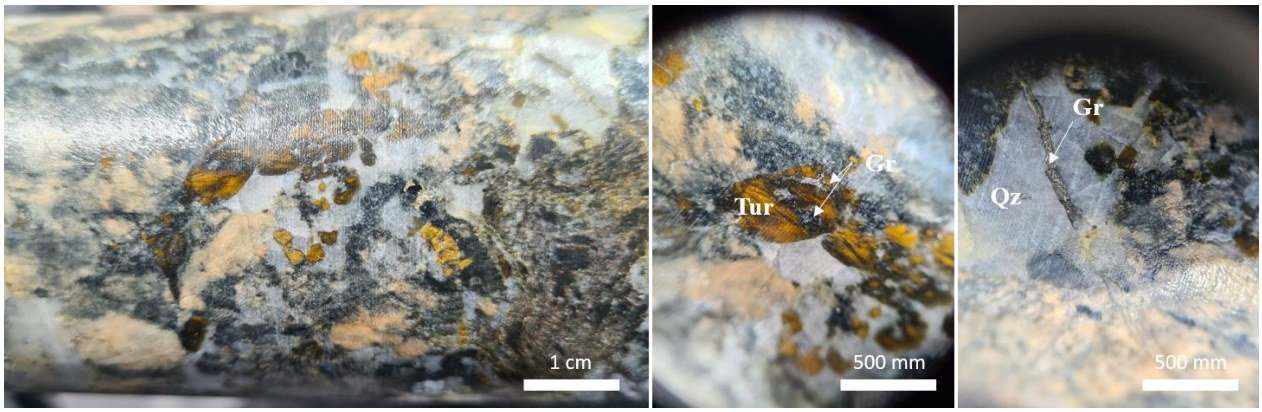


Figure 8.4 : Photos d'une métatexite du forage MC-418 (McArthur River) où le graphite en microfractures recoupe les tourmalines orange formées lors du métamorphisme prograde.

8.1.3 Comparaison des « conducteurs graphiteux » des grands gisements avec MCS et WF

À MCS, les cœurs de faille sont de taille petite à moyenne, accompagnés d'un socle présentant un fort taux de fusion partielle. Les halos de graphite hydrothermal entourant les cœurs de faille sont larges, et la distribution des cataclasites est régulière (cf. *Chapitre 1* et *Chapitre 2*), rappelant le modèle observé à Cigar Lake.

À WF, les cœurs de faille sont plus larges et les cataclasites sont souvent foliées (Figure 4.6C) comme dans certains minces intervalles à Cigar Lake (Figure 8.1), indiquant une déformation sous des conditions thermiques plus élevées permettant la déformation plastique du quartz (> 300° C, Passchier et Trouw, 2005 et références associées) voire du feldspath par endroit

(> 450 °C, Passchier et Trouw, 2005 et références associées). L'encaissant montre une fusion partielle modérée, et les halos de graphite hydrothermal, bien que présents, restent relativement minces. Les zones de faille à WF se distinguent par une répartition inégale, avec des tailles très variables et sans espacement régulier, contrairement à Cigar Lake et MCS.

En somme, les mêmes processus sont exprimés dans les « conducteurs graphiteux » des quatre zones étudiées, mais leur intensité est variable. Les analyses isotopiques du carbone dans le graphite, tous types confondus, révèlent une origine essentiellement organique pour le carbone (Figure 8.5) ; la gamme de valeurs de $\delta^{13}C$ comprises entre -40 ‰ et -15 ‰ correspondant à la matière organique du Paléoprotérozoïque (Luque et al., 2012 ; Schidlowski, 2001).

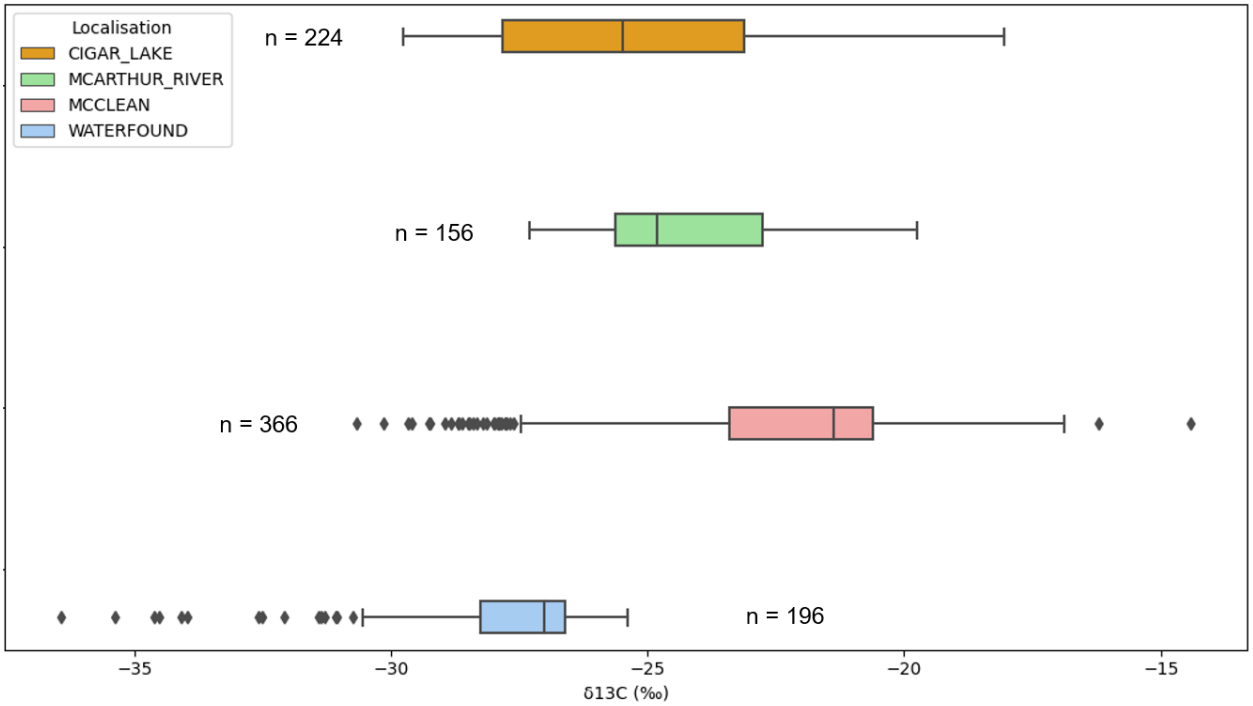


Figure 8.5 : Diagramme en boîtes à moustache des valeurs de $\delta^{13}C$, tous types de graphite confondus, par zone d'étude (MCS en rouge, WF en bleu, Cigar Lake en orange et McArthur River en vert). Une boîte à moustache représente 95% des valeurs, le reste étant représenté par des losanges gris sur la même ligne. De la gauche vers la droite : valeur minimale, premier quartile, médiane, troisième quartile, valeur maximale. n représente le nombre de mesures par zone d'étude.

Les socles de MCS et Cigar Lake présentent des similitudes, notamment dans la nature de l'encaissant marqué par une fusion partielle importante et dans la taille des halos de graphite

hydrothermal, ainsi que la répartition espacée régulièrement des cœurs de faille. Cependant, MCS se différencie par des cœurs de faille plus épais et un encaissant globalement moins homogène marqué par plus de contrastes rhéologiques entre des gneiss moins fondus et des granitoïdes ou pegmatoïdes (Figure 8.6).

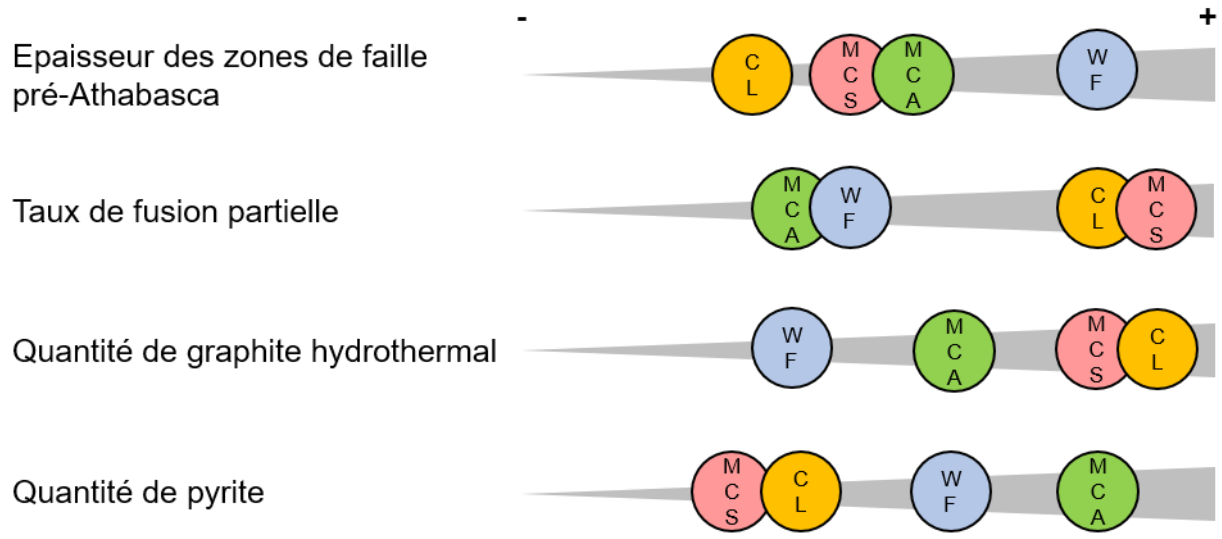


Figure 8.6 : Comparaison des intensités de 4 paramètres dans le socle avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca pour les projets d'exploration de McClean South (MCS, en rouge), Waterfound (WF, en bleu), Cigar Lake (CL, en orange) et McArthur River (MCA, en vert).

Dans la région de l'Athabasca, toute lithologie ou structure suffisamment concentrée en graphite pour apparaître comme une anomalie électromagnétique constitue un « conducteur graphiteux ». Les lithologies les plus abondantes sont les gneiss pélitiques et psammopélitiques à graphite, et les métatexites montrant des degrés de fusion partielle variables. Toute structure enrichie en graphite fait partie de cette catégorie, parmi elles : les roches de faille de déformation ductile (i.e., mylonites, blastomylonites et phyllonites), les roches de faille de la transition ductile-fragile (i.e., cataclasites foliées et cataclasites), les roches de faille issues de la déformation fragile (i.e., cataclasites et brèches non-cohésive). Les failles associées présentent souvent de nombreux segments anastomosés avec plusieurs cœurs de faille. Toutes ces structures peuvent contenir une grande quantité de pyrite, participant au signal conducteur caractérisé par les méthodes géophysiques. MCS et WF montrent une grande variété de lithologies et structures de socle directement comparables à celles associées aux grands gisements. Leurs « conducteurs graphiteux » ne sont pas tant différents par la nature des objets qui les constitue mais varient plutôt par le degré d'expression de certaines lithologies ou structures de déformation.

8.2 Le rôle fondamental des zones de cisaillement à graphite dans la formation des gisements de type discordance

Les zones de cisaillement riches en graphite de la WMTZ, situées à l'est du Bassin de l'Athabasca, contiennent un graphite dont le carbone présente une origine biogénique, y compris celui du graphite hydrothermal (cf. *Chapitre 3*).

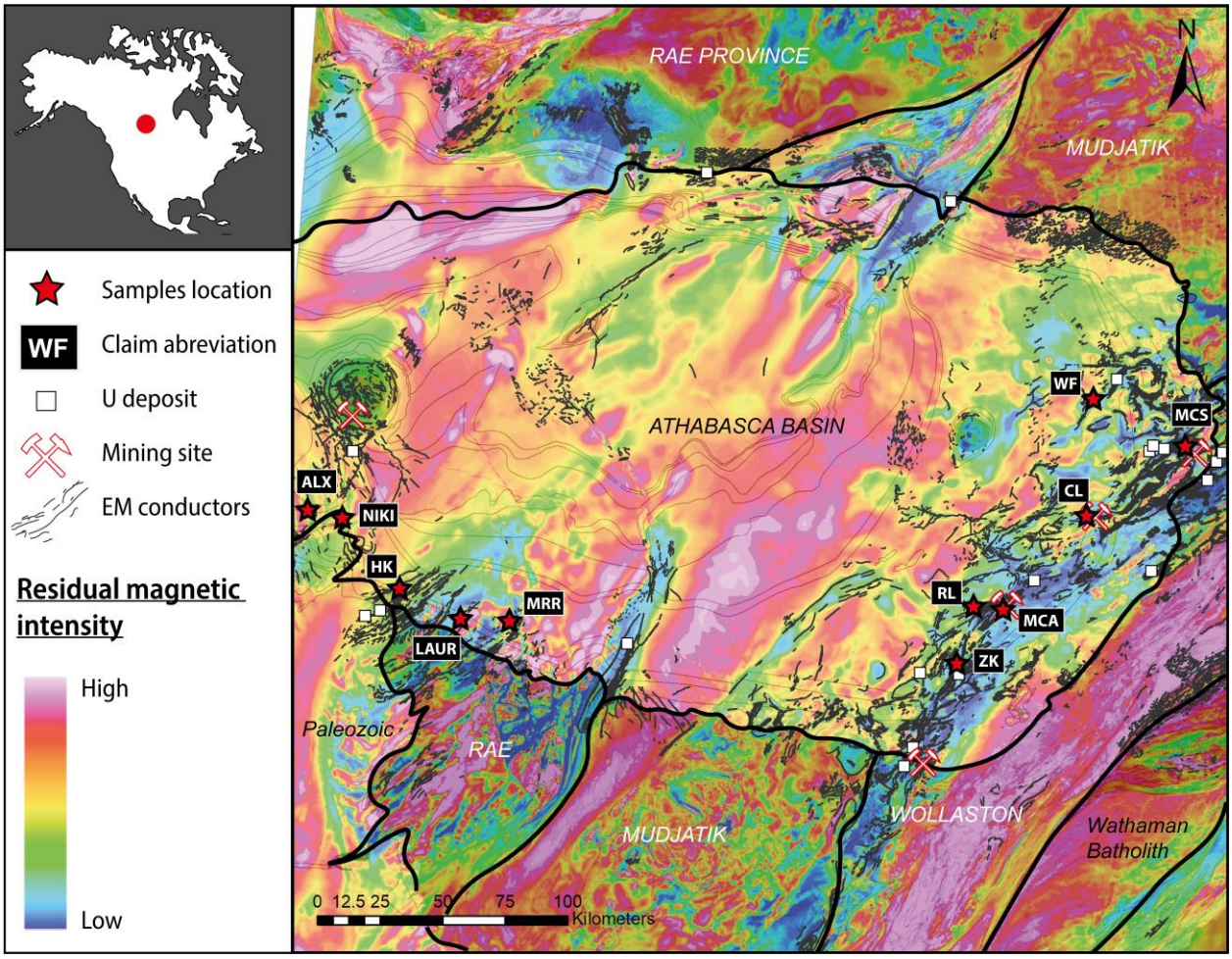


Figure 8.7 : Carte de l'intensité électromagnétique du socle sous le Bassin de l'Athabasca et localisation des échantillons à graphite pour lesquels des analyses isotopiques du carbone ont été réalisées (étoiles rouges) : ALX = Alexandra, NIKI = Nikita, HK = Hook Lake, LAUR = Laurie Lake, MRR = Mirror River, ZK = Wheeler River, MCA = McArthur River, RL = Read Lake, CL = Cigar Lake, MCS = McClean South, et WF = Waterfound.

La proximité des métasédiments du Wollaston, où le graphite primaire résulte de la graphitisation de matière organique, suggère cette dernière comme source probable du carbone utilisé lors des précipitations ultérieures de graphite hydrothermal, sans nécessiter l'hypothèse de fluides d'origines plus lointaines. Les analyses isotopiques réalisées sur des échantillons provenant des zones de cisaillement situées à l'ouest, dans la province de Rae, ainsi que dans d'autres zones de la province de Hearne en dehors des quatre zones présentées précédemment (Figure 8.7), révèlent une prédominance quasi-exclusive de signatures isotopiques organiques. Cette observation s'applique même dans des encaissants dominés par des orthogneiss (Figure 8.8), mettant en évidence que la précipitation du graphite est un processus géologique de grande envergure. Ce phénomène implique des mécanismes comparables actifs dans des provinces géologiques distinctes dont le témoin en commun est la présence de graphite au sein des zones de cisaillement. Ces dernières correspondent à une structuration héritée des orogènes pré-Athabasca ayant permis un épaississement crustal responsable de la juxtaposition et de l'imbrication de domaines métamorphiques de la croute intermédiaire. La présence de ces niveaux graphiteux d'origine organique témoigne d'un phénomène de recyclage à l'échelle crustale de sédiments paléoprotérozoïques enfouis lors des orogènes ainsi que proposé par Toma et al. (2024) et Parnell et Brolly (2021).

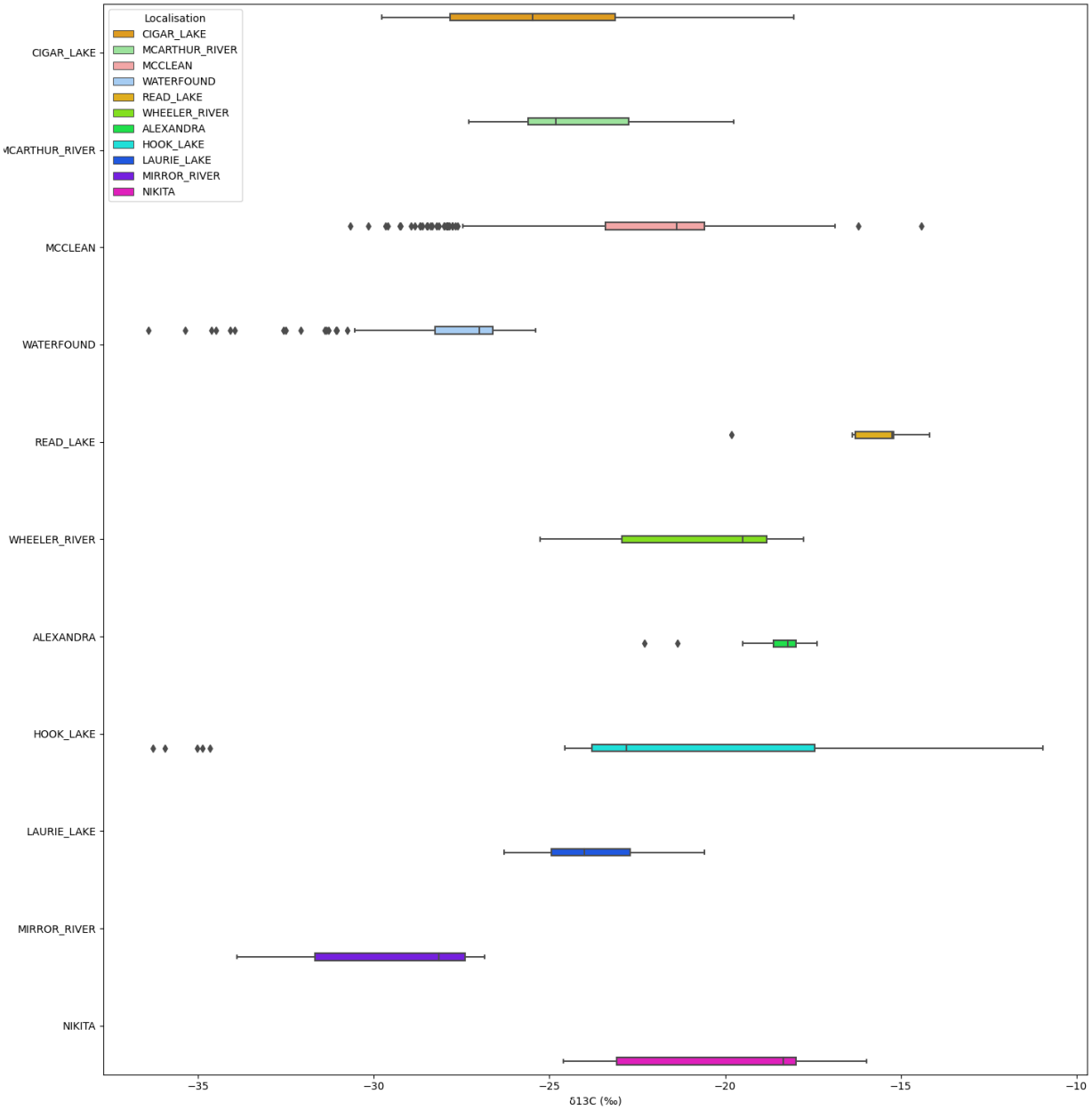


Figure 8.8 : Diagramme en boîtes à moustache des valeurs de $\delta^{13}C$ des différents projets d'exploration et gisements d'uranium du Bassin de l'Athabasca. A l'est du bassin : Cigar Lake, McArthur River, McClean, Read Lake, Waterfound, Wheeler River. A l'ouest du basin : Alexandre, Hook Lake, Laurie Lake, Mirror River, Nikita.

Ces horizons graphiteux, qui ont enregistré les conditions P-T du faciès amphibolite à granulite inférieur, jalonnent le système de failles anastomosées particulièrement bien développé dans la WMTZ. Leur présence joue un rôle majeur dans la pré-structuration du socle, qui verra par la suite le dépôt des séries sédimentaires du Groupe Athabasca et les évènements hydrothermaux ayant mené à la formation des gisements d'uranium.

8.2.1 Le rôle mécanique de la pré-structuration du socle

Le graphite est l'un des minéraux possédant le plus faible coefficient de friction, réduisant ainsi drastiquement le coefficient de friction des failles dans lequel il se trouve accumulé (Oohashi et al., 2013). Ses propriétés mécaniques ont permis des réactivations tectoniques post-Athabasca au niveau des zones de failles préalablement enrichies en graphite (par ex, les cataclasites) ou au sein des restites enrichies en graphite et biotite (autre minéral du groupe des silicates avec une structure « en feuillets » possédant un faible coefficient de friction). Ainsi, à MCS et WF, plus de 80% des gouges de faille post-Athabasca représentent ces deux cas de figure (Table 2.1). De la même manière, la présence de talc dans les serpentinites de la zone de faille de San Andreas réduit le coefficient de friction à des valeurs très faibles, favorisant la réactivation et le glissement de cette faille (Moore et Rymer, 2007).

En plus de concentrer le graphite dans les restites, la fusion partielle génère une « compartimentation » du socle qui influe la localisation des failles en créant de forts contrastes rhéologiques au niveau des contacts lithologiques entre gneiss pélitique et granitoïdes, sur lesquels les failles post-Athabasca s'enracinent. Des études analogues dans des environnements géologiques aux rhéologies contrastées montrent le rôle majeur de ces contrastes dans l'activation et la réactivation de faille (par ex, Wibberley et al., 2008 ; Wilson et al., 2020).

Par ailleurs, les structures pré-Athabasca enrichies en graphite présentent généralement des pendages élevés, parfois même verticaux. Cette configuration favorise la réactivation des failles, notamment par des mouvements décrochants ou normaux, et contribue à la mise en place de drains efficaces pour les fluides profonds, ainsi qu'à l'établissement de cellules de convection de plus grande envergure (Guillou-Frottier et al., 2024).

En somme, dans un environnement géologique soumis à des contraintes, la probabilité d'activer une faille augmente significativement i) avec la présence croissante de contrastes rhéologiques dans les environnements à fort taux de fusion partielle et ii) avec la présence de structures enrichies en graphite (notamment avec l'abondance de plans de cisaillement et fractures à graphite).

8.2.2 Le rôle thermique des zones de cisaillement à graphite

En plus de ses propriétés exceptionnelles de conduction électromagnétique, le graphite est également un excellent conducteur thermique (Inagaki et Kaburagi, 2014) dans les zones de cisaillement du Bassin de l'Athabasca. Il favorise la dissipation de la chaleur et peut altérer les gradients géothermiques locaux, les augmentant jusqu'à des niveaux anormalement élevés. Ces anomalies thermiques peuvent servir de moteurs à la convection des fluides, y compris après le dépôt du bassin ou durant l'événement hydrothermal minéralisateur en uranium (Chu et Chi, 2016). Un tel transfert de chaleur jusqu'à la discordance pourrait expliquer certains gradients thermiques inhabituels observés au niveau des zones minéralisées.

8.2.3 Un rôle de source en carbone et en soufre pour les fluides

L'altération hydrothermale des lithologies et structures enrichies en graphite et / ou en pyrite au sein des zones de faille pourrait représenter un processus clé dans la mobilisation des fluides et la génération de gaz. Pour une altération par des fluides post-Athabasca sur une épaisseur de 1m et sur un segment d'une longueur de 50m sous la minéralisation d'uranium, avec une profondeur de pénétration des fluides de 20m et une roche de faille contenant en moyenne 5 % de graphite :

- Le volume (V_{RT}) de roche totale est de 1000 m^3 = 10^9 cm^3
- Pour une densité (d_{Gr}) de graphite de 2,1, alors la masse totale (m_{Gr}) de graphite sur ce volume est $m_{Gr} = V_{RT} * d_{Gr} * 0,05$ = **105 tonnes**.
- Le nombre de moles de carbone (n_C) est $n_C = \frac{m_{Gr}}{M_C} = \frac{1,05\times10^8}{12,01} = 8,74 \times 10^6$ mol avec M_C la masse molaire du carbone.
- En considérant l'équation de réaction $2C + 2H_2O \rightarrow CO_2 + CH_4$, alors $n_{CH_4} = n_{CO_2} = n_C/2$.
- Donc les volumes de CO_2 et CH_4 produits par une consommation complète du graphite dans les zones de failles réactivées et altérées : $V_{CH_4} = V_{CO_2} = n_{CO_2} \times V_{Réel}$
- Le facteur de compressibilité du CO_2 et du CH_4 à environ 1 kbar et 150°C sont approximés à 0,25. Cela signifie que, à ces conditions, le méthane et le dioxyde de carbone occupent 25 % du volume qu'ils occuperaient comme gaz parfaits en surface.
- Le volume réel du gaz ($V_{Réel}$) à environ 1kbar et 150°C peut être approximé par un facteur de compressibilité $Z = \frac{PV_{Réel}}{nRT}$ avec P la pression, $V_{Réel}$ le volume réel occupé par une mole de

gaz, n le nombre de mol (ici n = 1), R la constante des gaz parfaits et T la température. Ainsi, les volumes réels approximés pour une mole de CO_2 et de CH_4 sont de 8,8*10^{-4} m^3/mol.

Donc les volumes totaux V_{CH_4} et V_{CO_2} générés si le graphite est totalement consommé dans la zone altérée sont d'environ 3850 m^3 chacun, soit un volume total inférieur à **8000 m^3** environ. Une projection réaliste voudrait que le graphite ne soit pas entièrement consommé ce qui réduirait les volumes de gaz générés. Cependant, les volumes altérés considérés ne représentent que les cœurs de faille post-Athabasca et leurs zones de dommages proximales (50 cm de part et d'autre du cœur de faille). Les enveloppes d'altération dans le socle sous les grands gisements, responsables de l'altération du graphite, pourraient s'étendre sur une épaisseur bien plus importante autour des zones de faille que celle évoquée dans l'exemple précédent, pouvant ainsi décupler les volumes de gaz générés. De plus, une valeur basse de 5% de graphite en moyenne dans la roche totale a été considérée, mais certains intervalles sont bien plus enrichis (cf. *Chapitre 1* et *Chapitre 3*). Des principes similaires peuvent s'appliquer à la pyrite pour générer des gaz riches en H_2S.

8.3 Développement d'un environnement fracturé et rôle sur la circulation des fluides

Cette sous-partie est consacrée à l'étude des comportements des environnements magmatiques (granitoïdes et pegmatoïdes), métamorphiques (principalement composés de gneiss pélitiques) et des structures de déformation primaires (telles que les zones de cisaillement associées au THO) vis-à-vis des déformations pré- et post-Athabasca.

8.3.1 Expressions de la fracturation pré-Athabasca dans le socle

Dans les cœurs de failles traversant les granitoïdes et pegmatoïdes, ainsi que dans les zones de dommage à proximité des surfaces de glissement, les roches de faille apparaissent très majoritairement comme « pulvérisées ». Elles incluent parfois des intervalles déformés qui ne sont pas des gouges de par leur faible altération argileuse, et qui sont communément classés comme des « cataclasites ». Cette catégorie inclue des roches complètement pulvérisées, entièrement lithifiées ou recristallisées, avec une gamme de porosité variant entre 30 % et 0,5 % (comm. pers.

Scibeck). La cataclasite est définie comme une roche formée par fracturation et broyage sous cisaillement. Cette dénomination est devenue obsolète lorsqu'il s'agit de granitoïdes car les premières déformations de roches granitiques (non déformées) génèrent des microbrèches ou brèches pulvérisées sans cisaillement local significatif (comme décrit dans Mitchell et al., 2011).

Les zones de dommages sont, sauf cas exceptionnels, très hétérogènes et de nombreux stades transitoires entre le cœur de la faille et les zones de dommage distales sont généralement observés résultant en une multitude de types de roches de faille. Ainsi, un seul évènement tectonique peut être responsable de plusieurs faciès de déformations selon la proximité au cœur de faille et selon la nature lithologique de l'encaissant (par ex, granitoïde, gneiss, conglomérat, grès, altération préalable ou roche « fraîche », etc.).

Dans les gneiss pélitiques, plus ou moins riches en graphite, la déformation est « facilement » accommodée selon la foliation métamorphique S1, par les minéraux tels que le graphite, la biotite et les phyllosilicates. Des auteurs décrivent un mécanisme de « softening » de la faille (par ex, Wibberley, 1999). Les gneiss pélitiques sont alors déformés par fluage ductile jusqu'à des faibles températures, là où les granitoïdes et pegmatoïdes ont tendance à fracturer. Lors de la déformation ductile, les fluides circulent principalement au sein des zones de fluage, soit le long des bandes de cisaillement, soit directement le long de la foliation. Dans des environnements métamorphiques composés exclusivement de gneiss pélitiques, où la foliation S1 présente un pendage subvertical, la circulation des fluides est contrainte à des corridors dont l'épaisseur est définie par la taille de la zone de cisaillement ductile avec une extension latérale limitée, et ce jusqu'à de faibles températures puisque le mécanisme de « softening » permet d'abaisser la température de déformation ductile (Wibberley, 1999).

Au contraire, dans les granitoïdes et pegmatoïdes de forte compétence, la composition minéralogique à quartz et feldspaths dominants ne permet pas le fluage ductile sous les seuils de plasticité de ces deux minéraux et la déformation tend à être cassante jusqu'à de plus fortes températures (par ex, Viegas et al., 2016) favorisant ainsi la création de réseau fracturés dans les intrusions magmatiques et/ou anatectiques proches de cœurs de faille de déformations ductile à fragile.

8.3.2 Formation des gouges de faille post-Athabasca

La formation de gouges au sein des granitoïdes résulte souvent d'une déformation secondaire de granites pulvérisés ou de cataclasites au sein de gneiss pélitiques, combiné à une interaction fluide-roche intense conduisant à la formation de roches de faille riches en argiles (i.e., les gouges argileuses). L'altération argileuse s'introduit dans les microbrèches et fractures existantes dans ces roches déjà « pulvérisées ». Contrairement aux mécanismes proposés par les modèles historiques, la texture friable et la faible granulométrie des gouges argileuses (présentes à la fois dans le bassin et dans le socle dans la région de l'Athabasca) sont directement liées aux circulations hydrothermales et aux altérations associées (par ex, dissolution du quartz) plutôt qu'à des processus mécaniques comme ceux impliqués pour la formation des cataclasites (Williams et al., 2021 ; Ostermeijer et al., 2022). Il est toutefois important de considérer que certaines altérations argileuses dans les gouges, interprétées comme des processus syn-déformation, puissent être liés à des évènements de circulation de fluides postérieurs. C'est notamment le cas de certaines gouges argileuses peu profondes, associées à la faille de Nojima (Japon) dans des granites situés sous une discordance avec un bassin sédimentaire, où l'altération des gouges de socle résulte de processus diagénétiques (Nishiwaki et Lin, 2019).

Dans le socle, pour les deux projets d'exploration MCS et WF étudiés, les gouges et brèches de failles argileuses (illite et/ou chlorite magnésienne) se localisent quasi systématiquement à des interfaces à forts contrastes rhéologiques (Table 3.1) : contacts entre roche magmatique et gneiss pélitique, dans des restites de fusion partielle entre deux intervalles de pegmatoïdes, ou encore au sein de structures plus larges et préexistantes (i.e., mylonites et cataclasites, formées avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca. Ces structures s'ancrent dans le socle et se propagent dans le bassin, sans toutefois se développer le long d'une interface présentant un fort contraste rhéologique au sein de ce dernier. Les forages ne pénétrant généralement que de quelques dizaines de mètres à 200 m maximum dans le socle, il n'est pas possible d'étudier la continuité de ces structures en profondeur.

8.3.3 Circulation des fluides dans les environnements déformés

Afin d'évaluer le potentiel d'un système de type discordance à contenir un gisement d'uranium, il faut définir les environnements les plus susceptibles d'avoir fait circuler des fluides lors des évènements hydrothermaux après le dépôt du Bassin de l'Athabasca.

La somme des multiples déformations résulte en des structures complexes et hétérogènes, les cataclasites et les gouges ne représentant qu'une fraction des structures liées aux déformations. Les fractures remplies montrant des recristallisations, les fractures ouvertes sans altération souvent associées à une porosité élevée, la microfracturation dans les roches magmatiques, les zones à forte dissolution, etc. coexistent dans ces environnements. Cette somme de déformations forme un réservoir potentiel à l'échelle même de la zone de cisaillement anastomosée aux multiples cœurs de faille et aux larges zones de dommage. Les circulations des fluides dans ces zones sont par nature complexes et font face à de multiple barrières imperméables (par ex, cœurs de faille silicifiés). Il est difficile d'évaluer la connexion de ces potentiels réservoirs de fluide en n'ayant accès qu'aux données de forages. Cependant, certains environnements, tels que les roches magmatiques (granitoïdes et pegmatoïdes) ou les cataclasites pré-Athabasca semblent avoir favorisé une propagation significative de la fracturation, conduisant à la création de réservoirs propices à la circulation des fluides. Il n'y a aucune base de données concernant les perméabilités et des porosités dans les pegmatites des zones de dommages (fracturées + altérées) mais les observations de terrain montrent que les altérations y sont diffuses et étendues, contrôlées par la présence d'une multitude de fractures et de microfractures qui sont peu développées dans les gneiss. Ces potentiels réservoirs auraient pu être utilisés aussi bien pendant les déformations pré-Athabasca que lors d'activation et réactivations de failles post-Athabasca à travers ces mêmes environnements favorables.

La perméabilité des cœurs de faille très hétérogène de par la présence de différents types de roches de faille, comme par exemple les roches pulvérisées, les cataclasites et les gouges (Annesley et Scibeck, 2021). Cependant, il y a continuité des propriétés d'une même structure de déformation avec la profondeur : une roche de faille intersectée en « surface » présente les mêmes propriétés pétrophysiques que la même roche de faille en profondeur à plusieurs centaines de mètres voire kilomètres. Si l'altération argileuse ne se situe qu'à faible profondeur (par ex, < 1 km) alors le reste de la faille, faiblement altéré en profondeur, ne subit que peu de compaction et voit ses propriétés pétrophysiques (porosité et perméabilité) rester globalement constantes. Donc si la perméabilité est, de base, élevée dans les roches pulvérisées et non argilisées, alors elle le sera aussi plus en profondeur pour des mêmes régimes de déformation (par ex, fragile). Cela implique que les fluides peuvent potentiellement circuler sur de grands volumes.

8.3.1 Comparaison des structures et altérations post-Athabasca des grands gisements avec MCS et WF

De la même manière que pour les évènements pré-Athabasca dans la Figure 8.6, la Figure 8.9 examine l'intensité de plusieurs paramètres post-Athabasca.

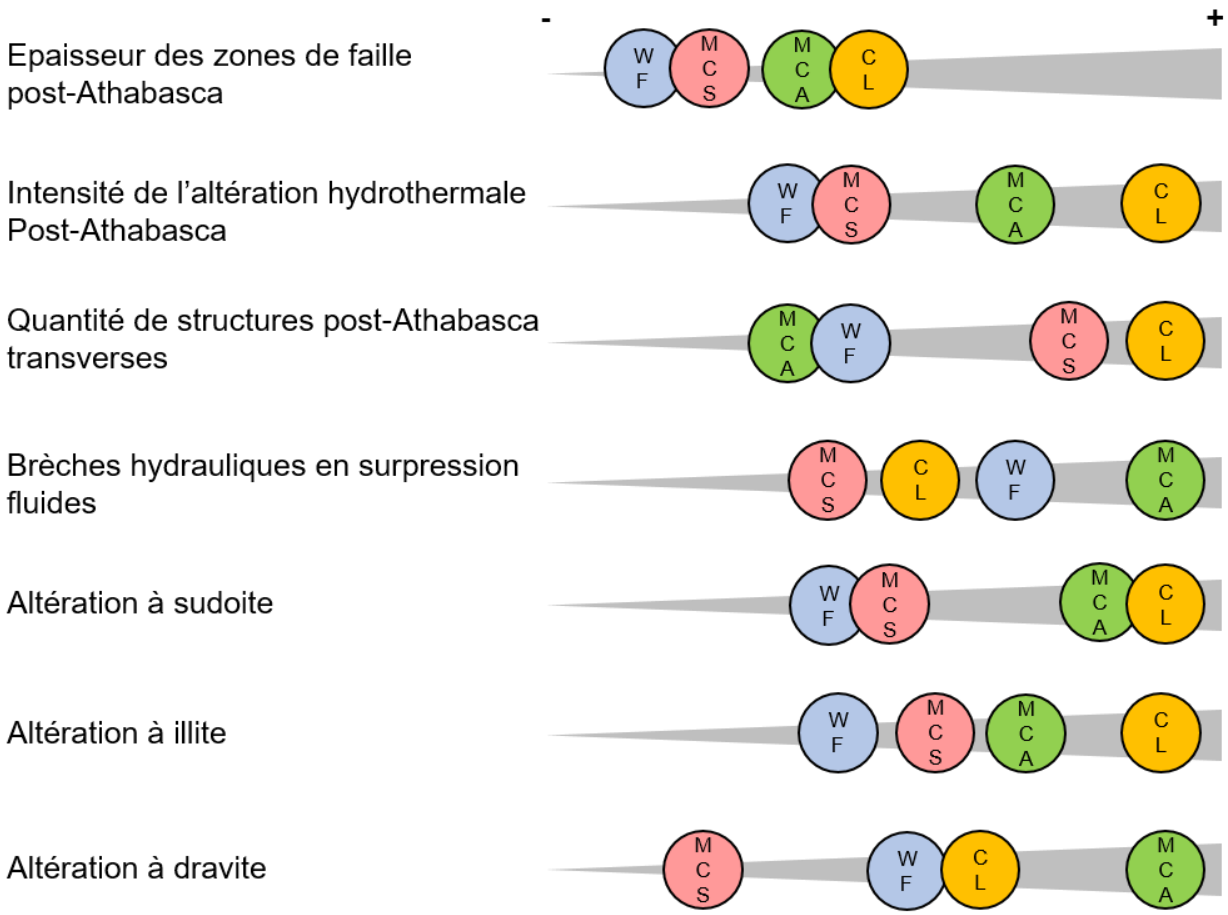


Figure 8.9 : Comparaison des intensités de 7 paramètres dans le socle et dans le bassin après le dépôt du Bassin de l'Athabasca pour les projets d'exploration de McClean South (MCS, en rouge), Waterfound (WF, en bleu), Cigar Lake (CL, en orange) et McArthur River (MCA, en vert).

- Les failles post-Athabasca ne sont globalement pas très épaisses pour toutes les zones comparées, par rapport aux failles pré-Athabasca (Figure 8.6). Cependant, seul McArthur River montre un décalage important (plusieurs dizaines de mètres) à la discordance, engendré par une faille inverse. Cette faille, dénommée P2, est responsable des gouges de faille dans le socle et dans le bassin. Elle contrôle la minéralisation d'uranium, cette dernière étant localisée dans le « wedge » créé par le décalage à la discordance ainsi que dans les cœurs de failles de déformation fragile. Les décalages à la discordance des autres projets

d'exploration et gisements sont moindres indiquant des failles décrochantes ou bien une pulvérisation in-situ des roches sans déplacement associé, comme décrit précédemment.

- Les altérations hydrothermales sont plus exprimées dans les gros gisements que dans les projets d'exploration de MCS et WF aux minéralisations d'uranium plus petites, témoignant d'une différence majeure dans la quantité de fluides hydrothermaux ayant circulés après le dépôt du Bassin de l'Athabasca. Certaines de ces circulations ont pu avoir lieu avant les évènements à uranium et être responsable d'une pré-altération des roches dans le socle et dans le bassin, augmentant la perméabilité et la porosité des roches et facilitant les circulations ultérieures.

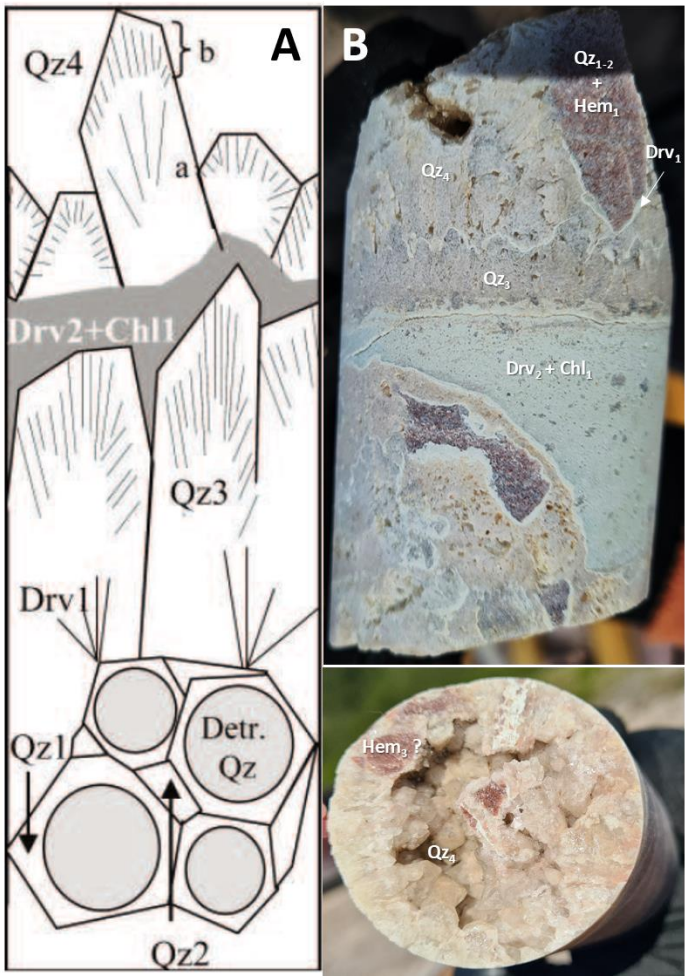


Figure 8.10 : A) Schéma des différentes phases minérales hydrothermales post-Athabasca à McArthur River (d'après Derome et al., 2005). B) Echantillon de brèche hydrothermale à chlorite magnésienne (Chl) et dravite (Drv). Des surcroissances de quartz (Qz) automorphes semblent croître sur la matrice à chlorite et dravite. Des clastes riches en hématite (Hem) sont présents.

- Cigar Lake et McClean South possèdent un grand nombre de structures transverses, recoupant l'orientation générale des structures pré-Athabasca constituant les « conducteurs graphiteux ». Les intersections de structures sont des zones importantes pour la circulation des fluides (Eldursi et al., 2021 ; Sibson, 1996). Elles créent de plus larges zones de dommage permettant le développement de plus grandes enveloppes d'altération, abaissant à leur tour la perméabilité du milieu et facilitant de futures circulations.

- D'importantes quantités de brèches hydrauliques, témoignant de condition de surpression fluides, sont retrouvées dans certains gisements et/ou projets d'exploration. C'est le cas de McArthur River où ces épisodes de bréchification sont particulièrement bien préservés (Figure 8.10). Les fluides en surpressions sont responsables des précipitations de sudoite et dravite. De nombreuses brèches hydrauliques existent également à Waterfound. Ces deux environnements sont semblables dans les hétérogénéités qu'ils contiennent. À McArthur River, les importantes épaisseurs silicifiées dans le socle (intervalles de quartzite massive) et dans le bassin autour du décalage à la discordance (grès et conglomérats silicifiés par altération hydrothermale), forment des barrières imperméables à la circulation des fluides. À WF, les larges zones de cisaillement pré-Athabasca lithifiées, avec leurs multiples cœurs, agissent également comme des barrières en raison de leur faible perméabilité (Scibeck et Annesley, 2021). De plus, la présence d'un socle fortement mylonitisé, caractérisé par une fabrique subverticale, limite les circulations latérales des fluides. Les fortes hétérogénéités présentes dans le socle et le bassin, combinées à ces écrans à la circulation, favorisent le développement de systèmes en surpression fluide.

8.4 Mobilités du carbone et du soufre lors de la mise en place des minéralisations d'uranium en Athabasca

8.4.1 Génération de fluides réducteurs à carbone en post-Athabasca

L'altération du graphite sous les gisements d'uranium est un sujet scientifique source de débats dans l'étude des gisements d'uranium en Athabasca. Plusieurs études ont observé une diminution systématique des concentrations de graphite dans les premiers mètres du socle sous les gisements (Hoeve and Sibbald, 1978 ; Jaguin, 2015 ; Pascal et al., 2016) suggérant une consommation du graphite par une altération hydrothermale oxydante. D'autres auteurs ont observé des traces d'altération directement sur les cristaux de graphite, nommées « hollow points » (Figure 8.11), suggérant une altération chimique plutôt que mécanique (Wang et al., 1989). Cependant, aucune étude expérimentale n'a à ce jour montré que l'altération du graphite était possible dans les conditions physico-chimiques de mise en place des gisements d'uranium. Le sujet restant ouvert, d'autres réducteurs sont envisagés pour réduire l'uranyle (U^{6+}) en solution, comme par exemple des fluides à H_2S (Dargent et al., 2015 ; Mount et al., 2022), la pyrite directement par remplacement (DeDecker, 2019) ou encore l'ion Fe^{2+} issu directement de l'altération des chlorites et biotites (Ng et al., 2013). Du méthane provenant de fluides profonds, sans lien génétique avec le graphite, est également proposé (Song et al., 2022).

Les travaux menés dans le cadre de cette thèse apportent des arguments pétrographiques et géochimiques en faveur de l'altération du graphite par des fluides hydrothermaux post-Athabasca dans les premiers mètres sous la discordance, dans les cœurs de faille ainsi que leur zone de dommage.

Premièrement, en appui aux données montrant des concentrations décroissantes en carbone sous le gisement de Dufferin Lake, situé au sud du Bassin de l'Athabasca (Pascal et al., 2016a), les observations réalisées à Cigar Lake (Phase 1) révèlent une transformation progressive des gneiss pélitiques et des gneiss œillés sub-verticaux à graphite depuis la profondeur vers la surface. Ces roches évoluent vers de fortes altérations à sudoïte et illite, deviennent dépourvues de graphite, mais présentent des « boutons » de carbone amorphe directement sous la discordance. Les présences de graphite et de carbone amorphe sont parfois visibles au sein d'un même échantillon lorsque l'altération est moins intense (par ex, Figure 8.12).

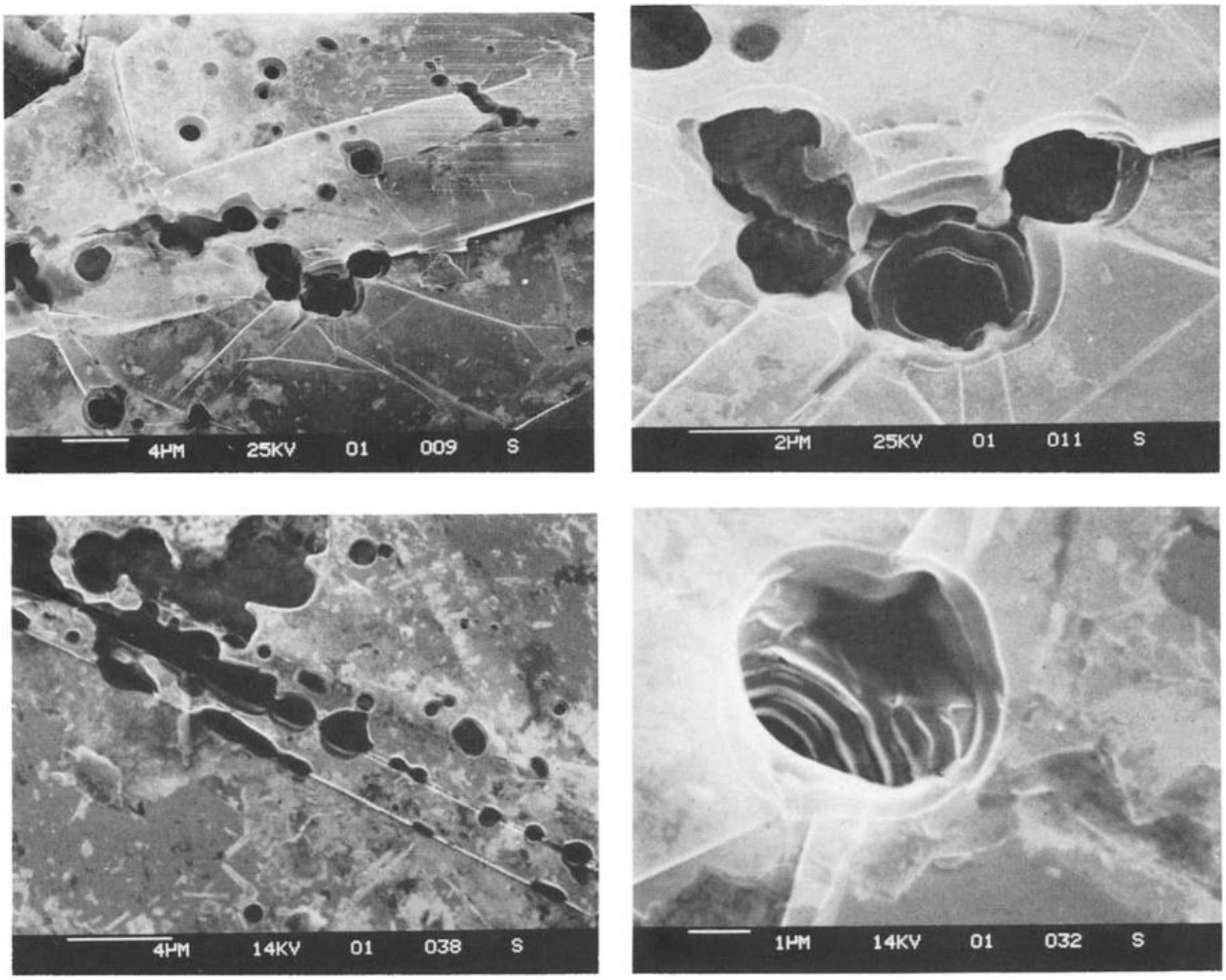


Figure 8.11 : Photographie au microscope électronique à balayage (MEB) des "hollow points" dans le graphite altéré (d'après Wang et al., 1989).

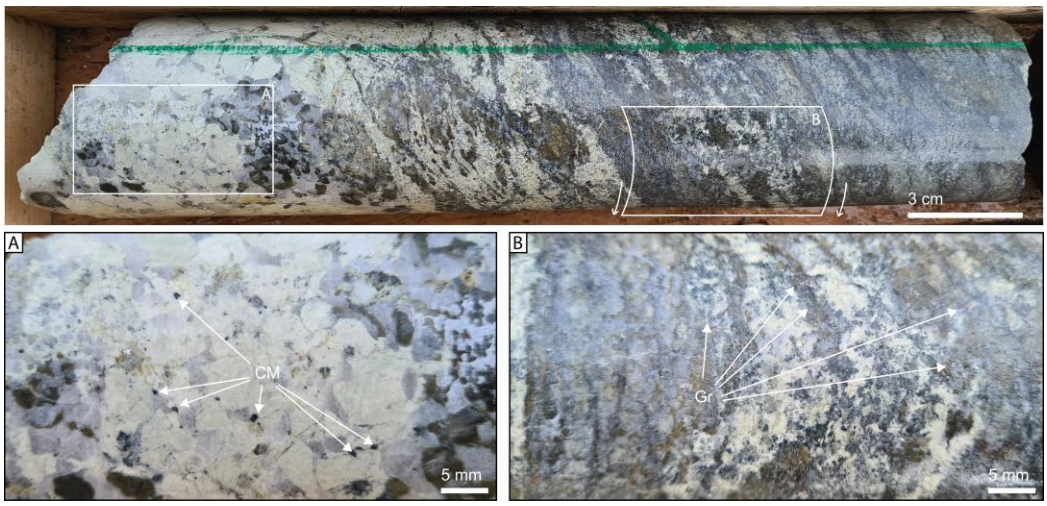


Figure 8.12 : Echantillon U-539_52,8 (Cigar Lake) de métatexite. A) Matière carbonée (CM) amorphe dans la pegmatite altérée. B) Graphite orienté dans la foliation dans l'intervalle de gneiss.

Les textures de graphite en feuillets séparés par des phyllosilicates montrent que l'altération responsable de la formation de ces phases argileuses à un effet, *à minima* mécanique, sur le graphite (Figure 8.13). Le graphite des deux échantillons présentés dans la Figure 8.13 montre des valeurs de $\delta^{13}C$ anormalement faibles en comparaison avec les échantillons de leur catégorie (Figure 5.3) soulignant un probable fractionnement isotopique lié à l'altération.

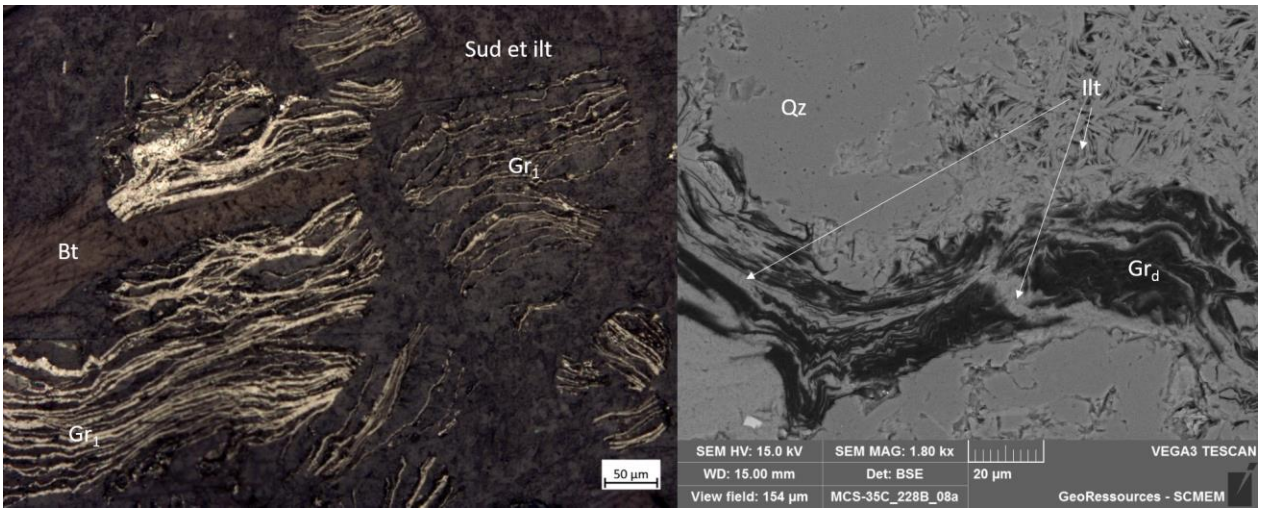


Figure 8.13 : Photographie d'échantillons de graphite altéré. A gauche – Photographie en lumière réfléchie du graphite dans l'échantillon WF-67_571,4 présenté en Figure 6.7. Les feuillets de graphite sont écartés par la précipitation d'un mélange illite et sudoite. Le graphite perd son pouvoir réflecteur lorsque l'altération est intense. A droite – Photographie MEB en électrons rétrodiffusés (SEM) de graphite désorganisé recoupé par de l'illite.

Les cartographies du carbone en imagerie LIBS révèlent la présence de liaisons C-N dans le graphite de certains échantillons (Figure 8.14). L'intensité de cette liaison semble être à son maximum lorsque le graphite est traversé par des fractures (Figure 8.14, marquées par la présence d'hydrogène en rose). Ainsi, les fractures liées à une déformation plus tardive que le graphite pourraient être liées à l'incorporation d'azote dans la structure cristalline du minéral. Dos Santos et Alvarez (1998) montrent que la substitution des atomes de carbone par des atomes d'azote dans le graphite est possible, tout en conservant la structure planaire du minéral, jusqu'à un rapport de concentration [C]/[N] ≈ 0,2. Les altérations, possiblement post-Athabasca (parce que présence de sudoite et d'illite dans l'échantillon), à l'origine de ce mécanisme libèrent du C dans les fluides.

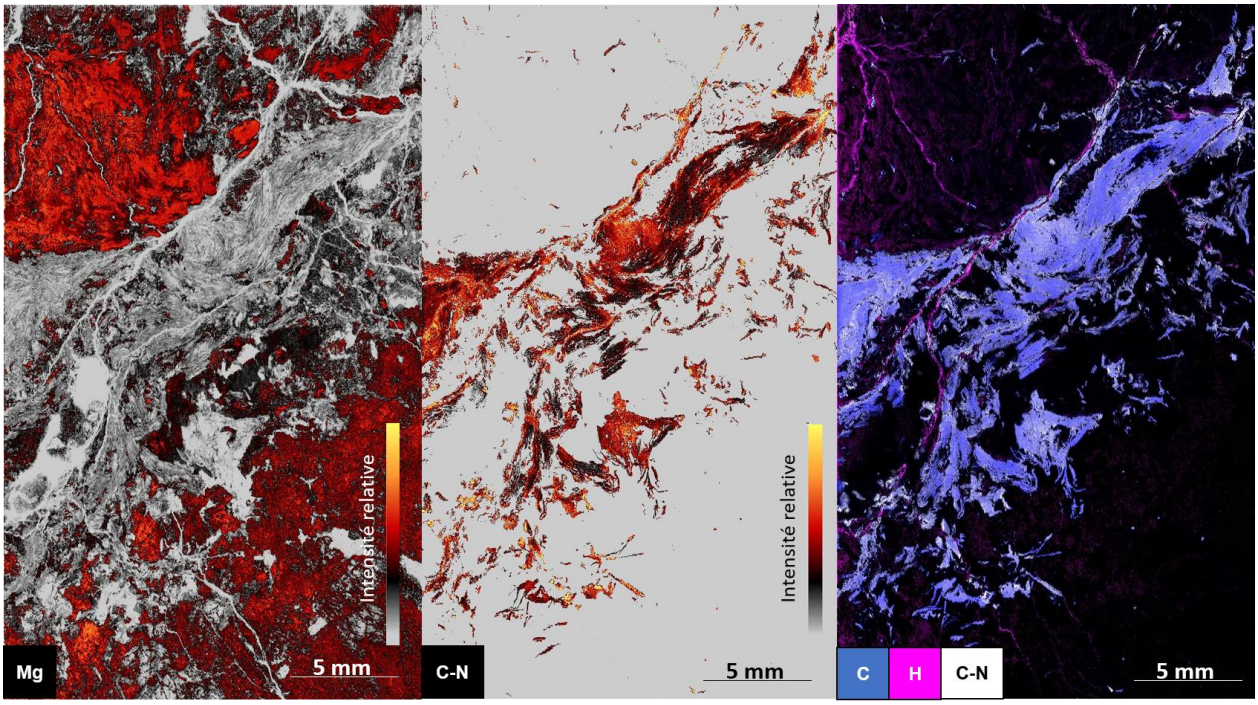


Figure 8.14 : Images de cartographie LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) d'une fracture à graphite hydrothermal (Gr_2) de l'échantillon MCS-34_273,7, aussi caractérisé en **Figure 3.6** *E-I. Les cartes montrent les éléments Mg (à gauche), la liaison C-N (au milieu) et les éléments C (en bleu), H (en rose) et C-N (en blanc) à droite.*

Des paragénèses minérales à bitumes, sidérite et uranium ont été retrouvées à proximité des minéralisations massives d'uranium à McArthur River (Figure 8.15), au niveau de la discordance. Plusieurs études ont décrit la présence de matière carbonée dans les gisements d'uranium de type discordance du Bassin de l'Athabasca (par ex, Harper, 1983 ; Hoeve et Sibbald, 1978 ; Kyser et al., 1989 ; Landais et al., 1993 ; Reyx et Ruhlmann, 1993 ; Sangély et al., 2007) sous forme de bitumes, pyrobitumes, « billes » ou « boutons » d'hydrocarbures selon les auteurs. Deux types de matière carbonée sont identifiés : i) un premier type est interprété comme pouvant être issu de la déstabilisation et de l'altération du graphite dans les séries métasédimentaires et sub-synchrone à la formation des gisements (Kyser et al., 1989 ; Landais et al., 1993), et ii) un second type pourrait être tardif par rapport à l'uranium et provenir d'hydrocarbures générés par les schistes noirs de la formation Douglas du Mésoprotérozoïque (Figure 2.4 ; Wilson et al., 2007).

Les billes de bitume décrites à McArthur River contiennent du soufre comme le révèle la cartographie µ-XRF (Figure 8.15), ce qui suggère qu'il s'agit du même type d'objet que celui décrit par Sangély et al., 2007 (premier type décrit ci-dessus) : des billes de bitume présentant une structure en « oignon » avec des couches enrichies en micro-sulfures, parfois associées à de l'uranium.

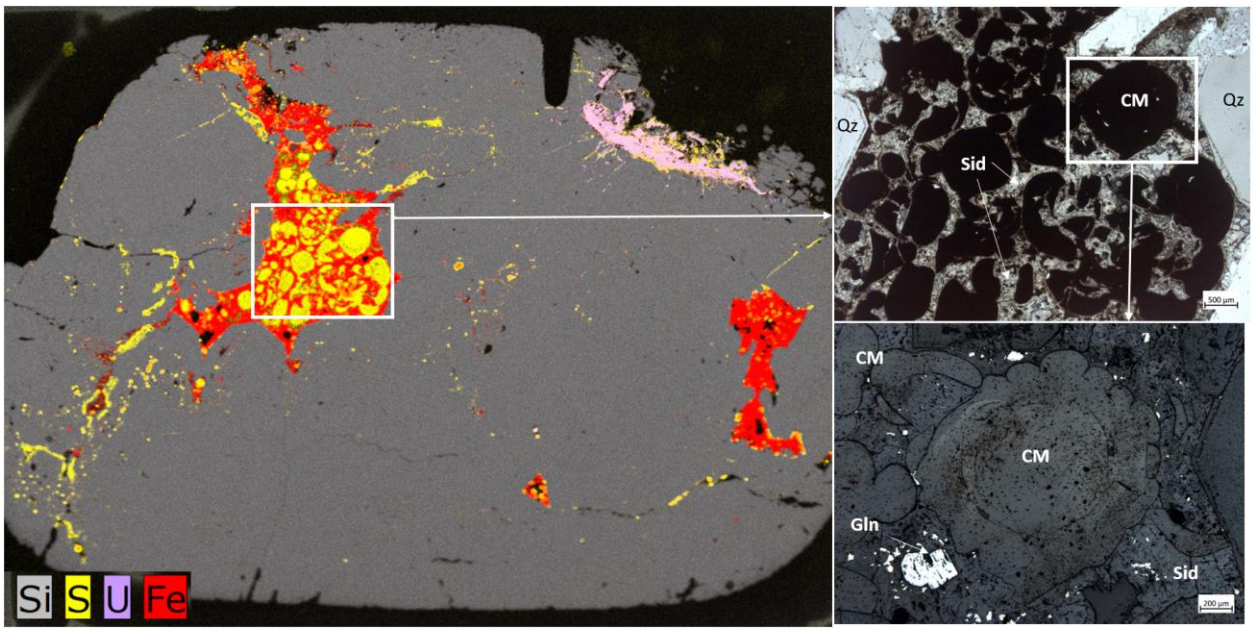


Figure 8.15 : Images de la paragénèse Bitume – Sidérite – Uranium à McArthur. A gauche – Cartographie µ-XRF de l'échantillon de quartzite MC-408-1_591,5 contenant une paragénèse minérale à bitume (mis en évidence par le soufre en jaune), sidérite (mise en évidence par le fer en rouge) et uranium (en violet). En haut à droite – Photographie microscopique en lumière polarisée non analysée des bitumes (CM) dans une matrice de sidérite (Sid). En bas à droite – Photographie microscopique en lumière réfléchie du nodule de matière carbonée. De la galène (Gln) est présente dans la matrice de sidérite.

Les analyses isotopiques du carbone dans les sidérites (Figure 7.5) indiquent que le carbone de ces carbonates provient nécessairement du graphite présent dans le socle (cf. *Chapitre 5*). Les résultats des modélisations de déstabilisation du graphite au sein des structures post-Athabasca renforcent cette hypothèse, en démontrant que les valeurs isotopiques du carbone dans le graphite désorganisé (Gr_d) en contexte post-Athabasca peuvent s'expliquer par un dégazage impliquant du $CH_4 \pm CO_2$ (Figure 7.4).

8.4.2 Génération de fluides réducteurs à soufre en post-Athabasca

Dans le socle de McArthur, deux principaux stades de déformation sont enregistrés : un premier stade pré-Athabasca hérité de l'exhumation de l'orogène transhudsonien responsable de la formation de mylonites et cataclasites, et un second stade post-Athabasca correspondant à un événement de déformation fragile responsable du décalage à la discordance notamment. Une grande quantité de pyrite et de graphite a précipité dans les roches des failles de la déformation ductile-fragile avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca, dont certaines sont composées à plus de 70 % de pyrite (Figure 8.2). La réactivation ultérieure de ces failles riches en pyrite par une

déformation fragile post-Athabasca semble déstabiliser la pyrite en place et diminuer significativement sa concentration (Figure 8.2). Il en est de même pour certaines failles de socle à Cigar Lake, bien que le phénomène soit moins globalement moins prononcé (Figure 8.16).

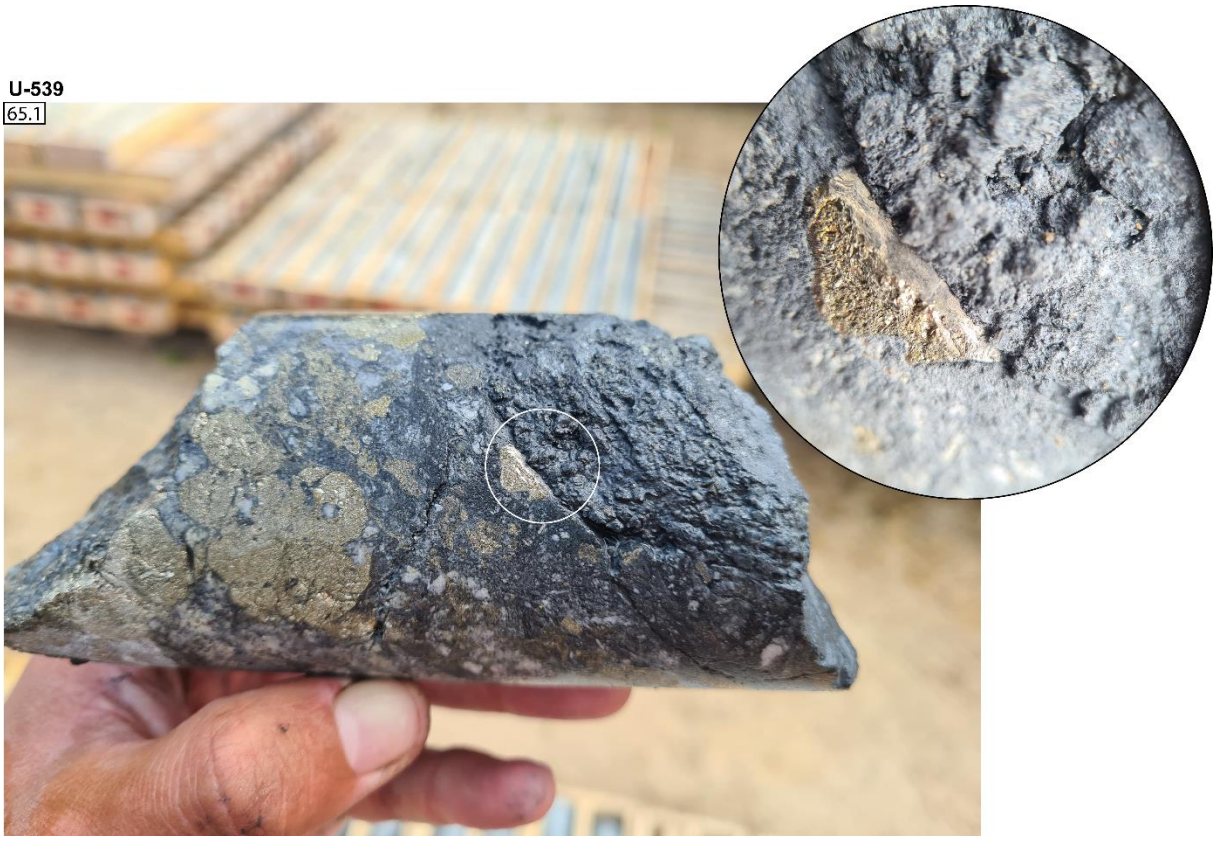


Figure 8.16 : Echantillon de cataclasite U-539_65,1 (Cigar Lake) extrêmement riche en pyrite, traversé par une brèche de faille non cohésive responsable de la déstabilisation de la pyrite.

Yeo et Potter (2010) ont effectué une revue bibliographique des potentiels réducteurs de l'U^{6+} en solution. Parmi les exemples présentés, plusieurs discutent du rôle de l'altération de la pyrite. La dégradation de la pyrite en milieu réducteur peut s'effectuer en deux étapes : la première réaction (8.1) entraîne la transformation de la pyrite en pyrrhotite (Cheney, 1985), tandis que la seconde réaction (8.2) déstabilise complètement les sulfures minéraux, libérant ainsi du Fe(II) et du H_2S (Belzile et al., 2004) :

(**8.1**) $FeS_2 + H_2 \rightarrow FeS + H_2S$

(**8.2**) $FeS + H_2 \rightarrow Fe^{2+} + H_2S$

H_2S est considéré comme un agent réducteur potentiel pour l'U^{6+}, comme l'ont proposé plusieurs études (Cheney, 1985 ; Beyer et al., 2010 ; Dargent et al., 2015 ; Yeo et Potter, 2010). Beyer et al. (2010) ont notamment suggéré que l'H_2S issu de la dégradation de la pyrite était le principal réducteur de l'U^{6+} dans le prospect d'uranium de type discordance de Boomerang Lake, dans le Bassin du Thelon (Territoires du Nord-Ouest, Canada).

Le fer ferreux (Fe^{2+}), libéré par ces réactions, est également identifié comme un potentiel réducteur pour l'uranium selon certains auteurs (Ng et al., 2013 ; Yeo et Potter, 2007). Ce Fe^{2+} peut aussi être généré par l'oxydation de la pyrite en milieu oxydant, selon la réaction (**8.3**) :

(**8.3**) $FeS_2 + 7/2O_2 + H_2O \rightarrow Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 2H^+$

Ainsi, en fonction du potentiel redox du fluide hydrothermal, les réactions (8.1) et (8.2) en milieu réducteur ou la réaction (8.3) en milieu oxydant seront privilégiées.

8.4.3 Schéma des mobilités du carbone et du soufre dans les systèmes de type discordance du Bassin de l'Athabasca.

L'objectif de cette section est de synthétiser les observations pétrographiques et géochimiques dans un organigramme permettant d'illustrer les mobilités élémentaires, depuis les premiers stades de la matière organique dans les sédiments du Wollaston jusqu'à la précipitation des oxydes d'uranium.

Les différentes équations considérées pour précipiter l'uranium sont les suivantes :

$UO_2^{2+} + 2Fe^{2+} \rightarrow UO_{2(s)} + 2Fe^{3+}$ (Dargent, 2014)

$UO_2^{2+} + H_2 \rightarrow UO_{2(s)} + 2H^+$

$UO_2^{2+} + HS^- + Fe^{2+} \rightarrow UO_{2(s)} + S^0 + H^+$ (Dargent, 2014)

$UO_2^{2+} + 2H_2S + Fe^{2+} \rightarrow UO_{2(s)} + FeS_{2(s)} + 4H^+$

$3UO_2^{2+} + CH_4 + H_2O \rightarrow 3UO_{2(s)} + CO + 6H^+$ (Dargent, 2014)

$4UO_2^{2+} + CH_4 + 2H_2O \rightarrow 4UO_{2(s)} + CO_2 + 8H^+$ (Dargent, 2014)

Ces équations font intervenir des agents réducteurs porteurs de carbone et de soufre, ou des espèces gazeuses produites dans le cadre des cycles de ces éléments.

Le schéma est organisé en quatre parties : i) en bas de l'organigramme, les mobilités pré-bassin de l'Athabasca reprenant les différents types de graphite, de pyrite et de carbonates décrits et étudiés dans la Partie A (chapitres 1 à 3), ii) au-dessus, les mobilités post-bassin et les différentes phases gazeuses produites par déstabilisation des minéraux pré-Athabasca dans les failles, iii) l'arrivée de fluide à UO_2^{2+} (rouge hachuré) en solution et les réactions chimiques associées, et iv) un phase d'oxydation tardive (bleu hachuré).

Les réactions responsables de la précipitation de l'uranium s'appliquent également aux événements secondaires, tertiaires, et ultérieurs. Bien que la sidérite ait longtemps été considérée comme un minéral tardif, les processus impliqués dans sa formation restent similaires à ceux des phases précoces, ce qui en fait un marqueur fiable de la présence de minéralisations uranifères. Il est probable que plusieurs générations de sidérite et de pyrite soient associées aux différents épisodes d'enrichissement en uranium. Cependant, d'un point de vue métallogénique, ces générations successives relèvent des mêmes mécanismes fondamentaux, témoignant de la continuité des processus géochimiques dans le système minéralisateur.

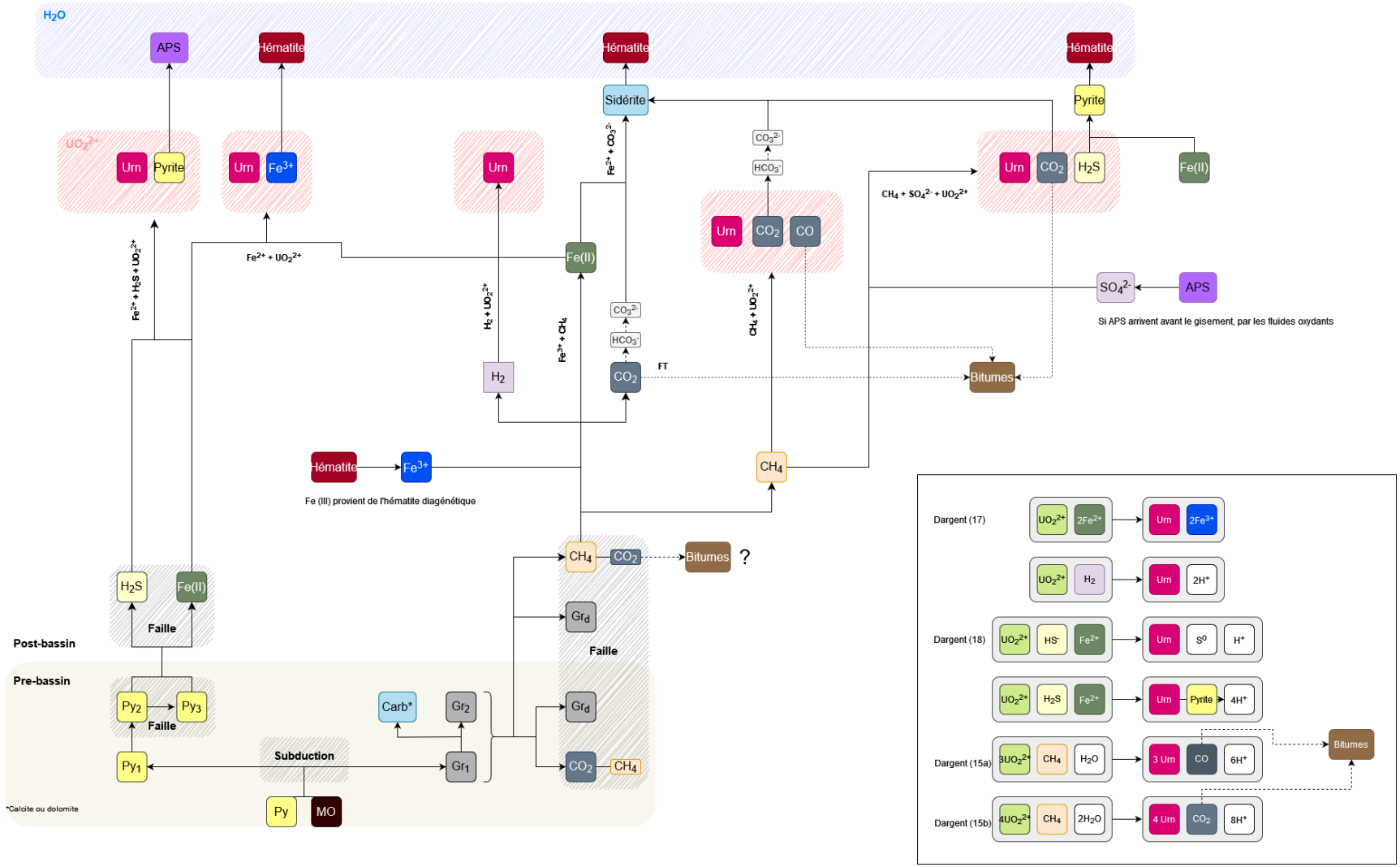


Figure 8.17 : Organigramme des mobilités élémentaires du carbone et du soufre depuis les premiers dépôts sédimentaires au Paléoprotérozoïque jusqu'à la formation des minéralisations primaires d'uranium. Py = Pyrite ; Gr = Graphite ; Carb = Carbonates ; Urn = Uraninite ; APS = alumino-phosphates-sulfates ; FT = réaction Fischer-Tropsch. Equations envisagées pour la précipitation des oxydes d'uranium en bas à droite.

Conclusions

9 Conclusions générales

Les enrichissements en graphite et pyrite se produisent sur des centaines de millions d'années, depuis la graphitisation de la matière organique issue d'un protolithe sédimentaire datant du Paléoprotérozoïque, jusqu'à l'exhumation de l'orogène transhudsonien et la précipitation de graphite hydrothermal et pyrite hydrothermale dans les zones de cisaillement ductiles et les zones de faille ductile-fragiles et fragiles avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca.

Trois processus ont joué un rôle majeur dans la concentration du graphite dans les zones de cisaillement : i) la fusion partielle a favorisé la concentration du graphite métamorphique (Gr_1) dans les intervalles de restite par la migration des jus de fusion, ii) la précipitation de graphite hydrothermal (Gr_2) dans les mylonites, cataclasites et leurs zones de dommage associées à partir de fluides riches en C issus de l'oxydation du Gr_1 lors de la fusion partielle et iii) la remobilisation mécanique du graphite dans les cœurs de failles lors de l'activité tectonique (Gr_d). Des morphologies distinctes de graphite sont identifiées, directement liées à ces trois processus. La circulation de fluides riches en C dans les zones de dommage pendant de longues périodes induit la formation d'un halo d'altération hydrothermale enrichi en graphite et minéraux associés (pyrite, muscovite et chlorite ferromagnésienne), dont la taille est liée à la nature des roches encaissantes.

Trois types de pyrite existaient dans la WMTZ avant le dépôt du Bassin de l'Athabasca : i) une première pyrite (Py_1) d'origine sédimentaire puis métamorphosé lors du métamorphisme prograde engendré par l'orogénèse transhudsonienne associée au Gr_1, mais tendant à disparaître dans les terrains aux plus hauts degrés de métamorphisme, une deuxième pyrite (Py_2) hydrothermale précipitée dans les zones de cisaillement ductiles (i.e. mylonites) mises en place après le pic de métamorphisme en chemin rétrograde, elle n'est pas directement associée au Gr_2 bien qu'elle se localise dans les mêmes structures, et iii) une troisième pyrite (Py_3) hydrothermale formée dans les cœurs de faille ductile-fragiles et fragiles (i.e. cataclasites) montrant les plus gros cristaux ainsi que des textures automorphes, elle n'est pas directement liée au Gr_2 et continue même de précipiter après le graphite.

La comparaison systématique entre les socles paléoprotérozoïques de MCS et WF dans les différents chapitres montre une grande variabilité de plusieurs paramètres :

- La proportion de roches magmatiques varie fortement ;
- L'épaisseur des zones de faille est aussi variable ;

- Les concentrations en graphite et pyrite, liées aux zones de faille et aux halos d'altération hydrothermale associés, diffèrent également.

Les analyses isotopiques du carbone dans le graphite montrent une origine organique pour le Gr_1, essentiellement organique pour le Gr_2. Le graphite ayant subi des processus de déformation intenses, dont la structure apparaît désorganisée (Gr_d), est sujet à du fractionnement isotopique mettant en évidence une libération de fluide à $CO_2 \pm CH_4$ lors de la déformation pré-Athabasca, avec CO_2 comme phase majeure.

Les analyses isotopiques du carbone dans les dolomites montrent des valeurs de $\delta^{13}C$ entre -14.16 ‰ et -3.53 ‰ mettant en évidence une contribution des fluides dérivés du graphite pour précipiter les dolomites aux $\delta^{13}C$ les plus légers.

Les analyses isotopiques du soufre dans les pyrites pré-Athabasca révèlent deux principaux groupes de pyrite formées avant le dépôt des séries sédimentaires :

- Un premier groupe constitué des pyrites métasédimentaires (Py_1), des pyrites hydrothermales dans les mylonites (Py_2) et de certaines pyrites hydrothermales dans les cataclasites (Py_3) dont les valeurs de $\delta^{34}S$ sont comprises entre −1,45 ‰ et +13,20 ‰ ; ce groupe contient les pyrites n'ayant pas ou peu fractionné et dont les valeurs de $\delta^{34}S$ sont proches des valeurs originelles dans les pyrites métasédimentaires.
- Un second groupe constitué de pyrites hydrothermales dans les cataclasites (Py_3) qui présente un fractionnement isotopique important résultant d'un mélange entre deux sources de fluide riche en S.

Après le dépôt du Bassin de l'Athabasca, de nouvelles phases minérales à carbone et soufre précipitent incluant : de la sidérite dans le socle et le bassin, des nodules de matière carbonée observés exclusivement dans le bassin, deux nouvelles générations de pyrite (Py_4 dans le socle et Py_5 dans le socle et le bassin), des alumino-phosphates-sulfates (APS) dans le socle et le bassin. La précipitation des oxydes d'uranium est associée aux enveloppes d'altération à illite, à Py_5 et aux fractures à sidérite (± matière carbonée).

Deux types principaux de structures sont associés aux deux événements majeurs de déformation post-Athabasca : i) des brèches non cohésives dans le socle, plus abondantes à WF qu'à MCS, et associées à une altération hydrothermale à chlorite magnésienne et phyllosilicates

potassiques ; ii) des brèches non cohésives et gouges fortement altérées par de l'illite, présentes à la fois dans le bassin et le socle, et plus fréquentes à MCS qu'à WF. Les deux types de structures présentent une orientation principale parallèle à celle des zones de cisaillement à graphite détectées en électromagnétisme. Certaines structures associées au second évènement à MCS recoupent les structures à graphite et pyrite héritées.

Les analyses isotopiques du carbone dans la sidérite révèlent que le carbone proviendrait du graphite, révélant alors qu'il a été possible de déstabiliser ce dernier. Des indices pétrographiques, géochimiques viennent soutenir cette hypothèse. Par ailleurs, les analyses isotopiques montrent que le graphite dans les cœurs de faille libère des quantités variables de gaz, avec une prédominance de CH_4 pour les évènements de déformation post-Athabasca.

Les valeurs isotopiques des Py_4 en fractures sub-horizontales dans le socle révèlent un fractionnement isotopique syn-précipitation témoin de modifications des conditions rédox et/ou de la température au cours de la circulation des fluides. Les valeurs isotopiques des Py_5, dans les failles et fractures plus ou moins contemporaines à l'évènement minéralisateur à U, peuvent être expliquées par un mélange de fluides avec deux sources de S, ou par des processus de distillation de Rayleigh pour obtenir les valeurs de $\delta^{34}S$ les plus hautes.

Différents scénarios de précipitation des oxydes d'uranium en relation avec les mobilités du C et du S ont été proposés, tenant compte des contextes pétrographiques, structuraux, géochimiques et isotopiques établis dans le manuscrit.

Références bibliographiques

10 Références bibliographiques

Abdelrazek, M., Benedicto, A., Gerbeaud, O., Ledru, P., 2021. Reactivation mechanisms and related-porosity enhancement of shear zones in the context of basement-hosted uranium mineralization: case of the Spitfire discovery in the Patterson Lake corridor, Canada. GEEA 21, geochem2020-082. https://doi.org/10.1144/geochem2020-082

Abercrombie, R., McGarr, A., Di Toro, G., & Kanamori, H., 2006. Earthquakes: Radiated energy and the physics of faulting. Washington, DC: American Geophysical Union 170, 1–327.

Adlakha, E.E., Hattori, K., Zaluski, G., Kotzer, T., Potter, E.G., 2014. Alteration within the basement rocks associated with the P2 fault and the McArthur River uranium deposit, Athabasca Basin (No. 7462). https://doi.org/10.4095/293364

Adlakha, E.E., Hattori, K., 2015. Compositional variation and timing of aluminum phosphate-sulfate minerals in the basement rocks along the P2 fault and in association with the McArthur River uranium deposit, Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada. American Mineralogist 100, 1386–1399. https://doi.org/10.2138/am-2015-5069

Adlakha, E.E., Hattori, K., Zaluski, G., Kotzer, T., Davis, W.J., Potter, E.G., 2015. Mineralogy of a fertile fluid conduit related to unconformity-type uranium deposits in the Athabasca Basin, Saskatchewan 4, 74–82. https://doi.org/10.4095/295776

Adlakha, E., Hattori, K., 2022. Thermotectonic events recorded by U-Pb geochronology and Zr-in-rutile thermometry of Ti oxides in basement rocks along the P2 fault, eastern Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada. GSA Bulletin 134, 567–576.

Al-Ani, T., Ahtola, T., Cutts, K. & Torppa, A. 2022: Metamorphic evolution of graphite in the Paleoproterozoic Savo Schist Belt (SSB), Central Finland: Constraints from geothermetric modeling. Ore Geology Reviews 141, 104672, doi: https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2021.104672.

Alexandre, P., Kyser, K., Polito, P., 2005. Alteration Mineralogy and Stable Isotope Geochemistry of Paleoproterozoic Basement- Hosted Unconformity-Type Uranium Deposits in the Athabasca Basin, Canada 18.

Alexandre, P., Kyser, T.K., 2006. Geochemistry of uraniferous bitumen in the southwest athabasca basin, saskatchewan, Canada. Economic

Alexandre, P., Kyser, K., Thomas, D., Polito, P., Marlat, J., 2009. Geochronology of unconformity-related uranium deposits in the Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada and their integration in the evolution of the basin. Miner Deposita 44, 41–59. https://doi.org/10.1007/s00126-007-0153-3

Annesley, I.R., Madore, C., 1989. The Wollaston Group and Its Underlying Archean Basement in Saskatchewan: 1989 Fieldwork and Preliminary Observations. Saskatchewan Geological Survey ; Saskatchewan Energy and Mines 89.

Annesley, I.R., Madore, C., Portella, P., 2005. Geology and thermotectonic evolution of the western margin of the Trans-Hudson Orogen: evidence from the eastern sub-Athabasca basement, Saskatchewan. Can. J. Earth Sci. 42, 573–597. https://doi.org/10.1139/e05-034

Ansdell, K.M., Kyser, T.K., 1992. Mesothermal gold mineralization in a Proterozoic greenstone belt ; western Flin Flon Domain, Saskatchewan, Canada. Economic Geology 87, 1496–1524. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.87.6.1496

Ansdell, K.M., 2005. Tectonic evolution of the Manitoba-Saskatchewan segment of the Paleoproterozoic Trans-Hudson Orogen, Canada. Can. J. Earth Sci. 42, 741–759. https://doi.org/10.1139/e05-035

Baudemont, D., Fedorowich, J., 1996. Structural control of uranium mineralization at the Dominique-Peter Deposit, Saskatchewan, Canada. Economic Geology 91, 855–874. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.91.5.855

Belzile, N., Chen, Y. W., Cai, M. F., Li, Y., 2004. A review on pyrrhotite oxidation. Journal of geochemical exploration, 84(2), 65-76. https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2004.03.003

Benedicto, A., Abdelrazek, M., Ledru, P., MacKay, C., Kinar, D., 2021. Structural Controls of Uranium Mineralization in the Basement of the Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada. Geofluids 2021.

Berner, R.A., 1970. Sedimentary pyrite formation. American journal of science 268, 1–23.

Berner, R.A., 1984. Sedimentary pyrite formation: An update. Geochimica et Cosmochimica Acta 48, 605–615. https://doi.org/10.1016/0016-7037(84)90089-9

Beyer, S. R., Kyser, K., Hiatt, E. E., Fraser, I., 2010. Geological evolution and exploration geochemistry of the Boomerang Lake unconformity-type uranium prospect, Northwest Territories, Canada. https://doi.org/10.5382/SP.15.2.15

Beyssac, O., Goffé, B., Chopin, C., Rouzaud, J.N., 2002. Raman spectra of carbonaceous material in metasediments: a new geothermometer: RAMAN SPECTROSCOPY OF CARBONACEOUS MATERIAL. Journal of Metamorphic Geology 20, 859–871. https://doi.org/10.1046/j.1525-1314.2002.00408.x

Bickford, M.E., Collerson, K.D., Lewry, J.F., 1994. Crustal history of the Rae and Hearne provinces, southwestern Canadian Shield, Saskatchewan: constraints from geochronologic and isotopic data. Precambrian Research 68, 1–21. https://doi.org/10.1016/0301-9268(94)90062-0

Boiron, M. -C., Cathelineau, M., Richard, A., 2010. Fluid flows and metal deposition near basement /cover unconformity: lessons and analogies from Pb–Zn–F–Ba systems for the understanding of Proterozoic U deposits. Geofluids 10, 270–292. https://doi.org/10.1111/j.1468-8123.2010.00289.x

Bruneton, P., 1987. Geology of the cigar lake uranium deposit (Saskatchewan, Canada) 99–119.

Bruneton, P., 1993. Geological environment of the Cigar Lake uranium deposit. Canadian Journal of Earth Sciences 30, 653–673.

Buseck, P.R., Beyssac, O., 2014. From Organic Matter to Graphite: Graphitization. Elements 10, 421-426, doi: 10.2113/gselements.10.6.421.

Bray, C.J., Spooner, E.T.C., 1988. Unconformity-related uranium mineralization, McClean deposits, north Saskatchewan, Canada; hydrogen and oxygen isotope geochemistry. The Canadian Mineralogist 26, 249–268.

Cao, S., Neubauer, F., 2019. Graphitic material in fault zones: Implications for fault strength and carbon cycle. Earth-Science Reviews 194, 109–124. https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2019.05.008

Card, C.D., 2012. The origins of anomalously graphitic rocks and quartzite ridges in the basement to the southeastern Athabasca Basin, Summary of Investigations 2012, Volume 2, Saskatchewan Geological Survey, Sask. Ministry of the Economy, Misc. Rep 4, 15.

Card, C.D., 2021. The Patterson Lake corridor of Saskatchewan, Canada: defining crystalline rocks in a deep-seated structure that hosts a giant, high-grade Proterozoic unconformity uranium system. GEEA 21, geochem2020-007. https://doi.org/10.1144/geochem2020-007

Carl, C., Pechmann, E.V., Höhndorf, A., Ruhrmann, G., 1992. Mineralogy and U/Pb, Pb/Pb, and Sm/Nd geochronology of the Key Lake uranium deposit, Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada. Can. J. Earth Sci. 29, 879–895. https://doi.org/10.1139/e92-075

Carothers, W. W., Adami, L. H., & Rosenbauer, R. J. (1988). Experimental oxygen isotope fractionation between siderite-water and phosphoric acid liberated CO2-siderite. Geochimica et Cosmochimica Acta, 52(10), 2445-2450. https://doi.org/10.1016/0016-7037(88)90302-X

Case, G.N.D., Karl, S.M., Regan, S.P., Johnson, C.A., Ellison, E.T., Caine, J.S., Holm-Denoma, C.S., Pianowski, L.S., Marsh, J.H., 2023. Insights into the metamorphic history and origin of flake graphite mineralization at the Graphite Creek graphite deposit, Seward Peninsula, Alaska, USA. Miner Deposita 58, 939–962. https://doi.org/10.1007/s00126-023-01161-3

Cesare, B., 1995. Graphite precipitation in C--O--H fluid inclusions: closed system compositional and density changes, and thermobarometric implications. Contributions to Mineralogy and Petrology 122, 25–33. https://doi.org/10.1007/s004100050110

Cesare, B., Meli, S., Nodari, L., Russo, U., 2005. Fe3+ reduction during biotite melting in graphitic metapelites: another origin of CO2 in granulites. Contrib Mineral Petrol 149, 129–140. https://doi.org/10.1007/s00410-004-0646-3

Cheney, E. S., 1985. Similarities between roll-type and Athabasca unconformity-type uranium deposits and the possible role of sulfides in their origin. Geology of Uranium Deposits, 32, 159-163.

Chester, F.M., Evans, J.P., Biegel, R.L., 1993. Internal structure and weakening mechanisms of the San Andreas Fault. J. Geophys. Res. 98, 771–786. https://doi.org/10.1029/92JB01866

Chi, G., Li, Z., Chu, H., Bethune, K.M., Quirt, D.H., Ledru, P., Normand, C., Card, C., Bosman, S., Davis, W.J., Potter, E.G., 2018. A shallow-burial mineralization model for the unconformity-related uranium deposits in the Athabasca basin. Economic Geology 113, 1209–1217. https://doi.org/10.5382/econgeo.2018.4588

Chi, G., Chu, H., Petts, D., Potter, E., Jackson, S., Williams-Jones, A., 2019. Uranium-rich diagenetic fluids provide the key to unconformity-related uranium mineralization in the Athabasca Basin. Sci Rep 9, 5530. https://doi.org/10.1038/s41598-019-42032-0

Chu, X., Ague, J.J., 2013. Phase equilibria for graphitic metapelite including solution of CO 2 in melt and cordierite: implications for dehydration, partial melting and graphite precipitation. Journal Metamorphic Geology 31, 843–862. https://doi.org/10.1111/jmg.12047

Cloutier, J., Kyser, K., Olivo, G.R., Alexandre, P., Halaburda, J., 2009. The Millennium Uranium Deposit, Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada: An Atypical Basement-Hosted Unconformity-Related Uranium Deposit. Economic Geology 104, 815–840. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.104.6.815

Cloutier, J., Kyser, K., Olivo, G.R., Alexandre, P., 2010. Contrasting Patterns of Alteration at the Wheeler River Area, Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada: Insights into the Apparently Uranium-Barren Zone K Alteration System. Economic Geology 105, 303–324. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.105.2.303

Cloutier, J., Kyser, K., Olivo, G. R., & Brisbin, D., 2011. Geochemical, isotopic, and geochronlologic constraints on the formation of the Eagle Point basement-hosted uranium deposit, Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada and recent remobilization of primary uraninite in secondary structures. Mineralium Deposita, 46, 35–56.

Coplen, T. B., Kendall, C., Hopple, J., 1983. Comparison of stable isotope reference samples. Nature, 302(5905), 236-238.

Craig, J.R., Vokes, F.M., 1993. The metamorphism of pyrite and pyritic ores: an overview. Mineral. mag. 57, 3–18. https://doi.org/10.1180/minmag.1993.057.386.02

Craig, J.R., Vokes, F.M., Solberg, T.N., 1998. Pyrite: physical and chemical textures. Mineralium Deposita 34, 82–101. https://doi.org/10.1007/s001260050187

Craw, D., 2002. Geochemistry of late metamorphic hydrothermal alteration and graphitisation of host rock, Macraes gold mine, Otago Schist, New Zealand. Chemical Geology 191, 257–275. https://doi.org/10.1016/S0009-2541(02)00139-0

Creaser, R.A., Stasiuk, L.D., 2007. Depositional age of the Douglas Formation, northern Saskatchewan, determined by Re-Os geochronology. BULLETIN-GEOLOGICAL SURVEY OF CANADA 588, 341.

Crocker, C.H., Collerson, K.D., Lewry, J.F., Bickford, M.E., 1993. Sm・Nd, U・Pb, and Rb・Sr geochronology and lithostructural relationships in the southwestern Rae province: constraints on crustal assembly in the western Canadian shield. Precambrian Research 61, 27–50. https://doi.org/10.1016/0301-9268(93)90056-8

Cumming, G.L., Krstic, D., 1992. The age of unconformity-related uranium mineralization in the Athabasca Basin, northern Saskatchewan. Can. J. Earth Sci. 29, 1623–1639. https://doi.org/10.1139/e92-128Cuney, M., 2010. Evolution of Uranium Fractionation Processes through Time: Driving the Secular Variation of Uranium Deposit Types. Economic Geology 105, 553–569. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.105.3.553

Dargent, M., 2014. Spéciation et réduction de l'U (VI) dans les fluides chlorurés acides en conditions hydrothermales: Du transport au dépôt de l'uranium dans les gisements sous discordance. Thèse de doctorat. Université de Lorraine.

Dargent, M., Truche, L., Dubessy, J., Bessaque, G., Marmier, H., 2015. Reduction kinetics of aqueous U(VI) in acidic chloride brines to uraninite by methane, hydrogen or C-graphite under hydrothermal conditions: Implications for the genesis of unconformity-related uranium ore deposits. Geochimica et Cosmochimica Acta 167, 11–26. https://doi.org/10.1016/j.gca.2015.06.027

De, S.K., Chacko, T., Creaser, R.A., Muehlenbachs, K., 2000. Geochemical and Nd-Pb-O isotope systematics of granites from the Taltson Magmatic Zone, NE Alberta: implications for early Proterozoic tectonics in western Laurentia. Precambrian Research 102, 221–249. https://doi.org/10.1016/S0301-9268(00)00068-1

DeDecker, J., 2019. Alteration and Mineral Paragenesis of the McArthur River and Fox Lake Uranium Deposits, Athabasca Basin: A New Model for the Formation of Unconformity-Related Uranium Deposits. Colorado School of Mines.

Derome, D., Cathelineau, M., Cuney, M., Fabre, C., Lhomme, T., Banks, D.A., 2005. Mixing of Sodic and Calcic Brines and Uranium Deposition at McArthur River, Saskatchewan, Canada: A Raman and Laser-Induced Breakdown Spectroscopic Study of Fluid Inclusions. Economic Geology 100, 1529–1545. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.100.8.1529

Dezayes, C., Lerouge, C., 2019. Reconstructing Paleofluid Circulation at the Hercynian Basement/Mesozoic Sedimentary Cover Interface in the Upper Rhine Graben. Geofluids 2019, 1–30. https://doi.org/10.1155/2019/4849860

Dos Santos, M. C., & Alvarez, F., 1998. Nitrogen substitution of carbon in graphite: Structure evolution toward molecular forms. Physical Review B, 58(20), 13918. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.58.13918

Drits, V.A., Weber, F., Salyn, A.L., Tsipursky, S.I., 1993. X-Ray Identification of One-Layer Illite Varieties: Application to the Study of Illites Around Uranium Deposits of Canada. Clays and clay miner. 41, 389–398. https://doi.org/10.1346/CCMN.1993.0410316

Eldursi, K., Chi, G., Bethune, K., Li, Z., Ledru, P., & Quirt, D., 2021. New insights from 2-and 3-D numerical modelling on fluid flow mechanisms and geological factors responsible for the formation of the world-class Cigar Lake uranium deposit, eastern Athabasca Basin, Canada. Mineralium Deposita 56, 1365-1388.

Engvik, A.K., Gautneb, H., Baranwal, V.C., Rønning, J.-S., Solberg, K.J., Liu, Y. & Austrheim, H. 2021: The control of shear-zone development and electric conductivity by graphite in granulite: An example from the Proterozoic Lofoten-Vesterålen Complex of northern Norway. Terra Nova 33, 529-539, doi: 10.1111/ter.12545.

Evans, J.P., Forster, C.B., Goddard, J.V., 1997. Permeability of fault-related rocks, and implications for hydraulic structure of fault zones. Journal of Structural Geology 19, 1393–1404. https://doi.org/10.1016/S0191-8141(97)00057-6

Farquhar, J., Johnston, D. T., Wing, B. A., Habicht, K. S., Canfield, D. E., Airieau, S., Thiemens, M. H., 2003. Multiple sulphur isotopic interpretations of biosynthetic pathways: implications for biological signatures in the sulphur isotope record. Geobiology 1, 27-36. https://doi.org/10.1046/j.1472-4669.2003.00007.x

Fayek, M., Kyser, T.K., 1997. Characterization of multiple fluid-flow events and rare-earth-element mobility associated with formation of unconformity-type uranium deposits in the Athabasca Basin, Saskatchewan. The Canadian Mineralogist 35, 627–658.

Fossen, H., 2016. Structural geology. Cambridge university press.

Fowler, C.M., Stead, D., Pandit, B.I., Janser, B.W., Nisbet, E.G., Nover, G., 2005. A database of physical properties of rocks from the Trans-Hudson Orogen, Canada. Can. J. Earth Sci. 42, 555–572. https://doi.org/10.1139/e05-006

French, B.M., 1966. Some geological implications of equilibrium between graphite and a C-H-O gas phase at high temperatures and pressures. Reviews of Geophysics 4, 223–253. https://doi.org/10.1029/RG004i002p00223

Furlanetto, F., Thorkelson, D.J., Rainbird, R.H., Davis, W.J., Gibson, H.D., Marshall, D.D., 2016. The Paleoproterozoic Wernecke Supergroup of Yukon, Canada: Relationships to orogeny

in northwestern Laurentia and basins in North America, East Australia, and China. Gondwana Research 39, 14–40. https://doi.org/10.1016/j.gr.2016.06.007

Gaboreau, S., Beaufort, D., Vieillard, P., Patrier, P., Bruneton, P., 2005. Aluminum phosphate–sulfate minerals associated with proterozoic unconformity-type uranium deposits in the east alligator river uranium field, northern territories, Australia. The Canadian Mineralogist 43, 813–827. https://doi.org/10.2113/gscanmin.43.2.813

Gaboreau, S., Cuney, M., Quirt, D., Beaufort, D., Patrier, P., Mathieu, R., 2007. Significance of aluminum phosphate-sulfate minerals associated with U unconformity-type deposits: The Athabasca basin, Canada. American Mineralogist 92, 267–280. https://doi.org/10.2138/am.2007.2277

Gautneb, H., Rønning, J.S., Engvik, A.K., Henderson, I.H.C., Larsen, B.E., Solberg, J.K., Ofstad, F., Gellein, J., Elvebakk, H. & Davidsen, B. 2020: The Graphite Occurrences of Northern Norway, a Review of Geology, Geophysics, and Resources. Minerals 10, 626, doi: 10.3390/min10070626.

Gigon, J., Skirrow, R.G., Harlaux, M., Richard, A., Mercadier, J., Annesley, I.R., Villeneuve, J., 2019. Insights into B-Mg-Metasomatism at the Ranger U Deposit (NT, Australia) and Comparison with Canadian Unconformity-Related U Deposits. Minerals 9, 432. https://doi.org/10.3390/min9070432

Glover, P.W.J., 1996. Graphite and electrical conductivity in the lower continental crust: A review. Physics and Chemistry of the Earth 21, 279–287. https://doi.org/10.1016/S0079-1946(97)00049-9

Goldsby, D.L., Tullis, T.E., 2002. Low frictional strength of quartz rocks at subseismic slip rates. Geophysical Research Letters 29. https://doi.org/10.1029/2002GL015240

Graham, U.M., Ohmoto, H., 1994. Experimental study of formation mechanisms of hydrothermal pyrite. Geochimica et Cosmochimica Acta 58, 2187–2202. https://doi.org/10.1016/0016-7037(94)90004-3

Grare, A., Lacombe, O., Mercadier, J., Benedicto, A., Guilcher, M., Trave, A., Ledru, P., Robbins, J., 2018. Fault Zone Evolution and Development of a Structural and Hydrological Barrier: The Quartz Breccia in the Kiggavik Area (Nunavut, Canada) and Its Control on Uranium Mineralization. Minerals 8, 319. https://doi.org/10.3390/min8080319

Gratier, J.-P., Dysthe, D.K., Renard, F., 2013. The Role of Pressure Solution Creep in the Ductility of the Earth's Upper Crust, in: Advances in Geophysics. Elsevier, pp. 47–179. https://doi.org/10.1016/B978-0-12-380940-7.00002-0

Groves, D.I., Goldfarb, R.J., Gebre-Mariam, M., Hagemann, S.G., Robert, F., 1998. Orogenic gold deposits: A proposed classification in the context of their crustal distribution and relationship to other gold deposit types. Ore Geology Reviews 13, 7–27. https://doi.org/10.1016/S0169-1368(97)00012-7

Guillou-Frottier, L., Carrė, C., Bourgine, B., Bouchot, V., Genter, A., 2013. Structure of hydrothermal convection in the Upper Rhine Graben as inferred from corrected temperature data and basin-scale numerical models. Journal of Volcanology and Geothermal Research 256, 29–49. https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2013.02.008

Guillou-Frottier, L., Milesi, G., Roche, V., Duwiquet, H., & Taillefer, A., 2024. Heat flow, thermal anomalies, tectonic regimes and high-temperature geothermal systems in fault zones. Comptes Rendus. Géoscience 356, 389-421. https://doi.org/10.5802/crgeos.213

Györfi, I., Hajnal, Z., White, D.J., Takács, E., Reilkoff, B., Annesley, I.R., Powell, B., Koch, R., 2007. High-resolution seismic survey from the McArthur River region: contributions to mapping of the complex P2 uranium ore zone, Athabasca Basin, Saskatchewan (No. 588). https://doi.org/10.4095/223784

Halter, G., 1988. Zonalités des altérations dans l'environnement des gisements d'uranium associés à la discordance du Protérozoïque Moyen (Saskatchewan, Canada). Université Louis Pasteur, Strasbourg.

Hanmer, S., Bowring, S., Van Breemen, O., Parrish, R., 1992. Great Slave Lake shear zone, NW Canada: mylonitic record of Early Proterozoic continental convergence, collision and indentation. Journal of Structural Geology 14, 757–773. https://doi.org/10.1016/0191-8141(92)90039-Y

Hardy, S., McClay, K., 1999. Kinematic modelling of extensional fault-propagation folding. Journal of Structural Geology 21, 695–702. https://doi.org/10.1016/S0191-8141(99)00072-3

Harper, C.T., 1983. Geology and uranium deposits of the central part of the Carswell structure, northern Saskatchewan, Canada. Colorado School of Mine, Golden.

Harper, C.T., Ebel, C., Yeo, G., Card, C., Nelson, C., 2005. Wollaston Lake project: geology of the Wollaston Supergroup in the Rabbabou Bay–Wellbelove Bay area, northeast Wollaston

Lake, Saskatchewan (parts of NTS 64L-6,-7,-10, and-11). Summary of Investigations 2, 2005–4.

Harvey, S.E., Bethune, K., 2000. Paleotopography and clay mineral alteration associated with the Deilmann uranium orebody, Key Lake, Saskatchewan. Summary of Investigations 2, 2000–4.

Hastie, E.C.G., Gagnon, J.E., Samson, I.M., 2018. The Paleoproterozoic MacLellan deposit and related Au-Ag occurrences, Lynn Lake greenstone belt, Manitoba: An emerging, structurally-controlled gold camp. Ore Geology Reviews 94, 24–45. https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2018.01.016

Hemley, J.J., Jones, W.R., 1964. Chemical aspects of hydrothermal alteration with emphasis on hydrogen metasomatism. Economic Geology 59, 538–569. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.59.4.538

Hiatt, E.E., Kyser, T.K., 2007. Sequence stratigraphy, hydrostratigraphy, and mineralizing fluid flow in the Proterozoic Manitou Falls Formation, eastern Athabasca Basin, Saskatchewan (No. 588). https://doi.org/10.4095/223793

Hoeve, J., Sibbald, T.I.I., 1978. On the genesis of Rabbit Lake and other unconformity-type uranium deposits in northern Saskatchewan, Canada. Economic Geology 73, 1450–1473. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.73.8.1450

Hoeve, J., Quirt, D., 1987. A stationary redox front as a critical factor in the formation of high-grade, unconformity-type uranium ores in the Athabasca basin, Saskatchewan, Canada. bulmi 110, 157–171. https://doi.org/10.3406/bulmi.1987.7977

Hoffman, P.F., 1988. United Plates of America, The Birth of a Craton: Early Proterozoic Assembly and Growth of Laurentia | Annual Review of Earth and Planetary Sciences. https://www.annualreviews.org/doi/abs/10.1146/annurev.ea.16.050188.002551?journalCode=earth (accessed 3.4.22).

Hollister, L.S., 1988. On the origin of CO 2 -rich fluid inclusions in migmatites. Journal Metamorphic Geology 6, 467–474. https://doi.org/10.1111/j.1525-1314.1988.tb00434.x

Holloway, J.R., 1976. Fluids in the evolution of granitic magmas: Consequences of finite CO2 solubility. Geological Society of America Bulletin 87, 1513–1518.

Hu, S.-Y., Evans, K., Craw, D., Rempel, K., Grice, K., 2017. Resolving the role of carbonaceous material in gold precipitation in metasediment-hosted orogenic gold deposits. Geology 45, 167–170. https://doi.org/10.1130/G38462.1

Huizenga, J.-M., 2011. Thermodynamic modelling of a cooling C–O–H fluid–graphite system: implications for hydrothermal graphite precipitation. Miner Deposita 46, 23–33. https://doi.org/10.1007/s00126-010-0310-y

Huizenga, J.M., Touret, J.L.R., 2012. Granulites, CO2 and graphite. Gondwana Research 22, 799–809. https://doi.org/10.1016/j.gr.2012.03.007

Inagaki, M., Kaburagi, Y., & Hishiyama, Y., 2014. Thermal management material: Graphite. Advanced Engineering Materials 16, 494-506.

Jaguin, J., 2015. Geochemical signature of trace elements in minerals and fluids associated to uranium mineralization - Application to unconformity-related U deposits (post-doctoral project). CREGU, Vandœuvre-lès-Nancy.

Jeanneret, P., Goncalves, P., Durand, C., Trap, P., Marquer, D., Quirt, D., Ledru, P., 2016. Tectono-metamorphic evolution of the pre-Athabasca basement within the Wollaston–Mudjatik Transition Zone, Saskatchewan. Can. J. Earth Sci. 53, 231–259. https://doi.org/10.1139/cjes-2015-0136

Jeanneret, P., Goncalves, P., Durand, C., Poujol, M., Trap, P., Marquer, D., Quirt, D., Ledru, P., 2017. Geochronological constraints on the trans-Hudsonian tectono-metamorphic evolution of the pre-Athabasca basement within the Wollaston-Mudjatik Transition Zone, Saskatchewan. Precambrian Research 301, 152–178. https://doi.org/10.1016/j.precamres.2017.07.019

Jefferson, C.W., Thomas, D.J., Gandhi, S.S., Ramaekers, P., Delaney, G., Brisbin, D., Cutts, C., Portella, P., Olson, R.A., 2007. Unconformity-associated uranium deposits of the Athabasca Basin, Saskatchewan and Alberta (No. 588). https://doi.org/10.4095/223744

Johnston, D. T., 2011. Multiple sulfur isotopes and the evolution of Earth's surface sulfur cycle. Earth-Science Reviews, 106(1-2), 161-183. https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2011.02.003

Kaczowka, A.J., 2017. Geometallurgical and geological evaluation of the high-grade polymetallic unconformity-related cigar lake uranium deposit. Queen’s University (Canada).

Kaneki, S., Hirono, T., 2016. Blackening of fault gouge by comminution and pyrolysis of carbonaceous materials during earthquake slip. Tectonophysics 677–678, 160–170. https://doi.org/10.1016/j.tecto.2016.03.039

Kato, N., Hirono, T., 2016. Heterogeneity in friction strength of an active fault by incorporation of fragments of the surrounding host rock. Earth Planet Sp 68, 134. https://doi.org/10.1186/s40623-016-0512-3

Kirilova, M., Toy, V.G., Timms, N., Halfpenny, A., Menzies, C., Craw, D., Beyssac, O., Sutherland, R., Townend, J., Boulton, C., Carpenter, B.M., Cooper, A., Grieve, J., Little, T., Morales, L., Morgan, C., Mori, H., Sauer, K.M., Schleicher, A.M., Williams, J., Craw, L., 2018. Textural changes of graphitic carbon by tectonic and hydrothermal processes in an active plate boundary fault zone, Alpine Fault, New Zealand. Geological Society, London, Special Publications 453, 205–223. https://doi.org/10.1144/SP453.13

Kirilova, M., Toy, V., Rooney, J.S., Giorgetti, C., Gordon, K.C., Collettini, C., Takeshita, T., 2018. Structural disorder of graphite and implications for graphite thermometry. Solid Earth 9, 223–231. https://doi.org/10.5194/se-9-223-2018

Kister, P., Vieillard, P., Cuney, M., Quirt, D., Laverret, E., 2005. Thermodynamic constraints on the mineralogical and fluid composition evolution in a clastic sedimentary basin: the Athabasca Basin (Saskatchewan, Canada). ejm 17, 325–341. https://doi.org/10.1127/0935-1221/2005/0017-0325

Kotzer, T.G., Kyser, T.K., Irving, E., 1992. Paleomagnetism and the evolution of fluids in the Proterozoic Athabasca Basin, northern Saskatchewan, Canada. Can. J. Earth Sci. 29, 1474–1491. https://doi.org/10.1139/e92-118

Kotzer, T.G., Kyser, T.K., 1995. Petrogenesis of the Proterozoic Athabasca Basin, northern Saskatchewan, Canada, and its relation to diagenesis, hydrothermal uranium mineralization and paleohydrogeology. Chemical Geology 120, 45–89. https://doi.org/10.1016/0009-2541(94)00114-N

Kouketsu, Y., Miyake, A., Igami, Y., Taguchi, T., Kagi, H., Enami, M., 2019. Drastic effect of shearing on graphite microtexture: attention and application to Earth science. Prog Earth Planet Sci 6, 23. https://doi.org/10.1186/s40645-019-0271-4

Kullerud, G., Yoder, H.S., 1959. Pyrite stability relations in the Fe-S system. Economic Geology 54, 533–572. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.54.4.533

Krabbendam, M., Urai, J.L., van Vliet, L.J., 2003. Grain size stabilisation by dispersed graphite in a high-grade quartz mylonite: an example from Naxos (Greece). Journal of Structural Geology 25, 855–866. https://doi.org/10.1016/S0191-8141(02)00086-X

Kribek, B., Sýkorová, I., Machovič, V., Knésl, I., Laufek, F., Zachariáš, J., 2015. The origin and hydrothermal mobilization of carbonaceous matter associated with Paleoproterozoic orogenic-type gold deposits of West Africa. Precambrian Research 270, 300–317. https://doi.org/10.1016/j.precamres.2015.09.017

Kyser, T.K., Wilson, M.R., Ruhrmann, G., 1989. Stable isotope constraints on the role of graphite in the genesis of unconformity-type uranium deposits. Canadian Journal of Earth Sciences 26, 490–498.

Kyser, K., Hiatt, E., Renac, C., Durocher, K., Holk, G., Deckart, K., 2000. Diagenetic fluids in Paleo-and Meso-Proterozoic sedimentary basins and their implications for long protracted fluid histories. Mineralogical Association of Canada Short Course 28, 225–262.

Lamb, W., Valley, J.W., 1984. Metamorphism of reduced granulites in low-CO2 vapour-free environment. Nature 312, 56–58. https://doi.org/10.1038/312056a0

Landais, P., Dubessy, J., Dereppe, J.-M., Philp, R.P., 1993. Characterization of graphite alteration and bitumen genesis in the Cigar Lake deposit (Saskatchewan, Canada). Can. J. Earth Sci. 30, 743–753. https://doi.org/10.1139/e93-060

Laverret, E., Mas, P.P., Beaufort, D., Kister, P., Quirt, D., Bruneton, P., Clauer, N., 2006. Mineralogy and Geochemistry of the Host-Rock Alterations Associated with the Shea Creek Unconformity-Type Uranium Deposits (Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada). Part 1. Spatial Variation of Illite Properties. Clays and clay miner. 54, 275–294. https://doi.org/10.1346/CCMN.2006.0540301

Law, R.D., 2014. Deformation thermometry based on quartz c-axis fabrics and recrystallization microstructures: A review. Journal of Structural Geology 66, 129–161. https://doi.org/10.1016/j.jsg.2014.05.023

Lawley, C.J.M., Schneider, D.A., Camacho, A., McFarlane, C.R.M., Davis, W.J., Yang, X.-M., 2023. Post-orogenic exhumation triggers gold mineralization in the Trans-Hudson orogen: New geochronology results from the Lynn Lake greenstone belt, Manitoba, Canada. Precambrian Research 395, 107127. https://doi.org/10.1016/j.precamres.2023.107127

Ledru, P., Benedicto, A., Chi, G., Khairallah, C., MERCADIER, J., Poh, J., Robbins, J., 2023. Le système métallogénique à la discordance du bassin de l'Athabasca (Canada). Ressources métalliques 2 : Cadre géodynamique et exemples remarquables dans le monde 135.

Leventhal, J.S., Grauch, R.I., Threlkeld, C.N., Lichte, F.E., Harper, C.T., 1987. Unusual organic matter associated with uranium from the Claude Deposit, Cluff Lake, Canada. Economic Geology 82, 1169–1176. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.82.5.1169

Lewry, J.F., Sibbald, T.I.I., 1977. Variation in lithology and tectonometamorphic relationships in the Precambrian basement of northern Saskatchewan. Can. J. Earth Sci. 14, 1453–1467. https://doi.org/10.1139/e77-126

Lewry, J.F., Sibbald, T.I.I., 1980. Thermotectonic evolution of the churchill province in Northern Saskatchewan. Tectonophysics 68, 45–82. https://doi.org/10.1016/0040-1951(80)90008-6

Li, Z., Chi, G., Bethune, K.M., Eldursi, K., Thomas, D., Quirt, D., Ledru, P., 2018. Synchronous egress and ingress fluid flow related to compressional reactivation of basement faults: the Phoenix and Gryphon uranium deposits, southeastern Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada. Miner Deposita 53, 277–292. https://doi.org/10.1007/s00126-017-0737-5

Lin, A., 1999. S–C cataclasite in granitic rock. Tectonophysics, 304(3), 257-273. https://doi.org/10.1016/S0040-1951(99)00026-8

Lockner, D.A., Tanaka, H., Ito, H., Ikeda, R., Omura, K., Naka, H., 2009. Geometry of the Nojima Fault at Nojima-Hirabayashi, Japan – I. A Simple Damage Structure Inferred from Borehole Core Permeability. Pure appl. geophys. 166, 1649–1667. https://doi.org/10.1007/s00024-009-0515-0

Long, D.G.F., 2007. Topographic influences on the sedimentology of the Read and Manitou Falls formations, eastern Athabasca Basin, Saskatchewan (No. 588). https://doi.org/10.4095/223771

Lünsdorf, N.K., Dunkl, I., Schmidt, B.C., Rantitsch, G., von Eynatten, H., 2017. Towards a Higher Comparability of Geothermometric Data Obtained by Raman Spectroscopy of Carbonaceous Material. Part 2: A Revised Geothermometer. Geostand Geoanal Res 41, 593–612. https://doi.org/10.1111/ggr.12178

Luque, F.J., Ortega, L., Barrenechea, J.F., Millward, D., Beyssac, O., Huizenga, J.-M., 2009. Deposition of highly crystalline graphite from moderate-temperature fluids. Geology 37, 275–278. https://doi.org/10.1130/G25284A.1

Luque, F.J., Crespo-Feo, E., Barrenechea, J.F., Ortega, L., 2012. Carbon isotopes of graphite: Implications on fluid history. Geoscience Frontiers 3, 197–207. https://doi.org/10.1016/j.gsf.2011.11.006

Macdonald, C.C., 1980. MINERALOGY AND GEOCHEMISTRY OF A PRECAMBRIAN REGOLITH IN THE ATHABASCA BASIN.

Majumdar, S., Singh, S., Sahoo, P.R., 2020. Characterization of organic matter and its implications for pyrite hosted refractory gold mineralization along the South Purulia Shear Zone, eastern India. Ore Geology Reviews 124, 103584. https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2020.103584

Marchal, P.,

Martz, P., 2018. Caractéristiques, chronologie et rôles des circulations fluides dans le bassin d'Athabasca et son socle : implications dans la formation et l'évolution du gisement d'uranium de Cigar Lake.

Martz, P., Cathelineau, M., Mercadier, J., Boiron, M.-C., Jaguin, J., Tarantola, A., Demacon, M., Gerbeaud, O., Quirt, D., Doney, A., Ledru, P., 2017. C-O-H-N fluids circulations and graphite precipitation in reactivated Hudsonian shear zones during basement uplift of the Wollaston-Mudjatik Transition Zone: Example of the Cigar Lake U deposit. Lithos 294–295, 222–245. https://doi.org/10.1016/j.lithos.2017.10.001

Martz, P., Mercadier, J., Cathelineau, M., Boiron, M.-C., Quirt, D., Doney, A., Gerbeaud, O., De Wally, E., Ledru, P., 2019a. Formation of U-rich mineralizing fluids through basinal brine migration within basement-hosted shear zones: A large-scale study of the fluid chemistry around the unconformity-related Cigar Lake U deposit (Saskatchewan, Canada). Chemical Geology 508, 116–143. https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2018.05.042

Martz, P., Mercadier, J., Perret, J., Villeneuve, J., Deloule, E., Cathelineau, M., Quirt, D., Doney, A., Ledru, P., 2019b. Post-crystallization alteration of natural uraninites: Implications for dating, tracing, and nuclear forensics. Geochimica et Cosmochimica Acta 249, 138–159. https://doi.org/10.1016/j.gca.2019.01.025

McNicoll, V.J., Thériault, R.J., McDonough, M.R., 2000. Taltson basement gneissic rocks: U–Pb and Nd isotopic constraints on the basement to the Paleoproterozoic Taltson magmatic zone, northeastern Alberta 37.

Mercadier, J., Richard, A., Boiron, M.-C., Cathelineau, M., Cuney, M., 2010. Migration of brines in the basement rocks of the Athabasca Basin through microfracture networks (P-Patch U deposit, Canada). Lithos 115, 121–136. https://doi.org/10.1016/j.lithos.2009.11.010

Mercadier, J., Cuney, M., Cathelineau, M., Lacorde, M., 2011. U redox fronts and kaolinisation in basement-hosted unconformity-related U ores of the Athabasca Basin (Canada): late U remobilisation by meteoric fluids. Miner Deposita 46, 105–135. https://doi.org/10.1007/s00126-010-0314-7

Milesi, G., Fischer, E., Obin, T., Serdoun, M., Bulliard, M., Boulogne, Q., Gerbeaud, O., Rousset, V., Anderson, M., Harvey, S., Zaluski, G., Mercadier, J., 2024. Structural network at the basement/cover interface reveals formation mechanisms of uranium deposits in the Eastern Athabasca Basin (Saskatchewan, Canada), soumis à Mineralium Depositae.

Mitchell, T.M., Faulkner, D.R., 2009. The nature and origin of off-fault damage surrounding strike-slip fault zones with a wide range of displacements: A field study from the Atacama fault system, northern Chile. Journal of Structural Geology 31, 802–816. https://doi.org/10.1016/j.jsg.2009.05.002

Mitchell, T. M., Ben-Zion, Y., & Shimamoto, T., 2011. Pulverized fault rocks and damage asymmetry along the Arima-Takatsuki Tectonic Line, Japan. Earth and Planetary Science Letters 308(3-4), 284-297. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2011.04.023

Moissette, A., Dubessy, J., 1992. Réactivité du graphite à H2SO4 à 250°C (Lettre d'information du CREGU No. 53).

Moore, D. E., & Rymer, M. J., 2007. Talc-bearing serpentinite and the creeping section of the San Andreas fault. Nature 448, 7155, 795-797.

Moris-Muttoni, B., Raimbourg, H., Augier, R., Champallier, R., Le Trong, E., 2022. The impact of melt versus mechanical wear on the formation of pseudotachylyte veins in accretionary complexes. Sci Rep 12, 1529. https://doi.org/10.1038/s41598-022-05379-5

Morrow, C.A., Moore, D.E., Lockner, D.A., 2000. The effect of mineral bond strength and adsorbed water on fault gouge frictional strength. Geophysical Research Letters 27, 815–818. https://doi.org/10.1029/1999GL008401

Mount, S., Potter, E.G., Yang, Z., Fayek, M., Powell, J.W., Chi, G., Rizo, H., 2022. Formation of the high-grade Triple R uranium deposit revealed by Fe and S isotopes in pyrite. GEEA 22, geochem2021-023. https://doi.org/10.1144/geochem2021-023

Mumin, A.H., Trott, M., 2003. Hydrothermal iron-sulphide copper graphite mineralization in the northern Kisseynew Domain, Trans-Hudson orogen, Manitoba (NTS 63O and 64B): Evidence for deepseated IOCG (Olympic Dam)-style metal deposition? Report of Activities 79–85.

Nakamura, Y., Oohashi, K., Toyoshima, T., Satish-Kumar, M., Akai, J., 2015. Strain-induced amorphization of graphite in fault zones of the Hidaka metamorphic belt, Hokkaido, Japan. Journal of Structural Geology 72, 142–161. https://doi.org/10.1016/j.jsg.2014.10.012

Nishiwaki, T., & Lin, A., 2019. Fractures and subsidiary faults developed in the active strike-slip Nojima fault zone, Japan, and tectonic implications. Tectonics 38(12), 4290-4300. https://doi.org/10.1029/2018TC005391

Ng, R., Alexandre, P., Kyser, K., Cloutier, J., Abdu, Y.A., Hawthorne, F.C., 2013. Oxidation state of iron in alteration minerals associated with sandstone-hosted unconformity-related uranium deposits and apparently barren alteration systems in the Athabasca Basin, Canada: Implications for exploration. Journal of Geochemical Exploration 130, 22–43. https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2013.02.009

Oohashi, K., Hirose, T., Kobayashi, K., Shimamoto, T., 2012. The occurrence of graphite-bearing fault rocks in the Atotsugawa fault system, Japan: Origins and implications for fault creep. Journal of Structural Geology 38, 39–50. https://doi.org/10.1016/j.jsg.2011.10.011

Oohashi, K., Hirose, T., Shimamoto, T., 2013. Graphite as a lubricating agent in fault zones: An insight from low- to high-velocity friction experiments on a mixed graphite-quartz gouge: GRAPHITE AS A LUBRICATING AGENT IN FAULT. J. Geophys. Res. Solid Earth 118, 2067–2084. https://doi.org/10.1002/jgrb.50175

Ostermeijer, G. A., Aben, F. M., Mitchell, T. M., Rockwell, T. K., Rempe, M., & Farrington, K., 2022. Evolution of co-seismic off-fault damage towards pulverisation. Earth and Planetary Science Letters 579, 117353. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2021.117353

Pacquet, A., Weber, F., 1993. Pétrographie et minéralogie des halos d'altération autour du gisement de Cigar Lake et leurs relations avec les minéralisations. Can. J. Earth Sci. 30, 674–688. https://doi.org/10.1139/e93-055

Pagel, M., 1975. Détermination des conditions physico-chimiques de la silici- fication diagénétique des grès Athabasca (Canada) au moyen des inclusions fluides 280, 2301–2304.

Paiste, K., Lepland, A., Zerkle, A.L., Kirsimäe, K., Kreitsmann, T., Mänd, K., Romashkin, A.E., Rychanchik, D.V. & Prave, A.R. 2020: Identifying global vs. basinal controls on Paleoproterozoic organic carbon and sulfur isotope records. Earth-Science Reviews 207, 103230, doi: 10.1016/j.earscirev.2020.103230.

Parnell, J., Brolly, C., 2021. Increased biomass and carbon burial 2 billion years ago triggered mountain building. Commun Earth Environ 2, 238. https://doi.org/10.1038/s43247-021-00313-5

Pascal, M., Ansdell, K., Annesley, I.R., Kotzer, T., Jiricka, D., 2016a. Graphite-Bearing Pelitic Schists and Their Altered Equivalents In the Dufferin Lake Zone, South-Central Athabasca Basin, Saskatchewan: Constraints On Graphite Formation and Destruction, and Implications For Uranium Mineralization. Can Mineral 54, 1459–1491. https://doi.org/10.3749/canmin.1600004

Pascal, M., Boiron, M.-C., Ansdell, K., Annesley, I.R., Kotzer, T., Jiricka, D., Cuney, M., 2016b. Fluids preserved in variably altered graphitic pelitic schists in the Dufferin Lake Zone, south-central Athabasca Basin, Canada: implications for graphite loss and uranium deposition. Miner Deposita 51, 619–636. https://doi.org/10.1007/s00126-015-0628-6

Passchier, C.W., Trouw, R.A., 2005. Microtectonics. Springer Science & Business Media.

Pasteris, 1999. Causes of the uniformly high crystallinity of graphite in large epigenetic deposits. J Metamorph Geol 17, 779–787. https://doi.org/10.1046/j.1525-1314.1999.00231.x

Pasteris, J.D., Beyssac, O., 2020: Welcome to Raman spectroscopy: successes, challenges, and pitfalls. Elements 16, 87-92, doi: 10.2138/gselements.16.2.87.

Percival, J.B., Kodama, H., 1989. Sudoite from Cigar Lake, Saskatchewan. The Canadian Mineralogist 27, 633–641.

Phillips, W.J., 1972. Hydraulic fracturing and mineralization. JGS 128, 337–359. https://doi.org/10.1144/gsjgs.128.4.0337

Poh, J., Eldursi, K., Ledru, P., Yamato, P., Chi, G., Benedicto, A., 2022. Role of Hydrothermal Circulation along and above Inherited Basement Structures Relating to Unconformity-Related Uranium Mineralization. Geofluids 2022, 1–20. https://doi.org/10.1155/2022/9131289

Pokrovski, G.S., Dubessy, J., 2015. Stability and abundance of the trisulfur radical ion S 3 − in hydrothermal fluids. Earth and Planetary Science Letters 411, 298–309. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2014.11.035

Prave, A.R., Kirsimäe, K., Lepland, A., Fallick, A.E., Kreitsmann, T., Deines, Y.E., Romashkin, A.E., Rychanchik, D.V., Medvedev, P.V., Moussavou, M., Bakakas, K. & Hodgskiss, M.S.W. 2021: The grandest of them all: the Lomagundi–Jatuli Event and Earth's oxygenation. Journal of the Geological Society jgs2021-036, doi: 10.1144/jgs2021-036.

Qiu, H., Lin, H., Yang, J., 2023. Effects of Paleoregolith and Fault Offset on the Formation of Unconformity-Type Uranium Deposits. Minerals 13, 1381. https://doi.org/10.3390/min13111381

Rabiei, M., Chi, G., Potter, E.G., Tschirhart, V., MacKay, C., Frostad, S., McElroy, R., Ashley, R., McEwan, B., 2021. Fluid evolution along the Patterson Lake corridor in the southwestern Athabasca Basin: constraints from fluid inclusions and implications for unconformity-related uranium mineralization. GEEA 21, geochem2020-029. https://doi.org/10.1144/geochem2020-029

Raffensperger, J.P., Garven, G., 1995a. The formation of unconformity-type uranium ore deposits; 1, Coupled groundwater flow and heat transport modeling. American Journal of Science 295, 581–636. https://doi.org/10.2475/ajs.295.5.581

Raffensperger, J.P., Garven, G., 1995b. The formation of unconformity-type uranium ore deposits 2. Coupled hydrochemical modeling. American Journal of Science 295, 639–696.

Rainbird, R.H., Stern, R.A., Rayner, N., Jefferson, C.W., 2007. Age, provenance, and regional correlation of the Athabasca Group, Saskatchewan and Alberta, constrained by igneous and detrital zircon geochronology (No. 588). https://doi.org/10.4095/223761

Ramaekers, P., Jefferson, C.W., Yeo, G.M., Collier, B., Long, D.G.F., Drever, G., McHardy, S., Jiricka, D., Cutts, C., Wheatley, K., Catuneanu, O., Bernier, S., Kupsch, B., Post, R., 2007. Revised geological map and stratigraphy of the Athabasca Group, Saskatchewan and Alberta (No. 588). https://doi.org/10.4095/223754

Reid, K.D., Ansdell, K., Jiricka, D., Witt, G., Card, C., 2014. Regional Setting, Geology, and Paragenesis of the Centennial Unconformity-Related Uranium Deposit, Athabasca Basin, Saskatchewan, Canada. Economic Geology 109, 539–566. https://doi.org/10.2113/econgeo.109.3.539

Reyx, J., Ruhlmann, F., 1993. Étude métallographique des différentes associations minérales et caractérisation chimique des minéraux uranifères du gisement de Cigar Lake (Saskatchewan, Canada). Can. J. Earth Sci. 30, 705–719. https://doi.org/10.1139/e93-057

Richard, A., Banks, D.A., Mercadier, J., Boiron, M.-C., Cuney, M., Cathelineau, M., 2011. An evaporated seawater origin for the ore-forming brines in unconformity-related uranium deposits (Athabasca Basin, Canada): Cl/Br and δ37Cl analysis of fluid inclusions. Geochimica et Cosmochimica Acta 75, 2792–2810. https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.02.026

Richard, A., Rozsypal, C., Mercadier, J., Banks, D.A., Cuney, M., Boiron, M.-C., Cathelineau, M., 2012. Giant uranium deposits formed from exceptionally uranium-rich acidic brines. Nature Geosci 5, 142–146. https://doi.org/10.1038/ngeo1338

Richard, A., Cathelineau, M., Boiron, M.-C., Mercadier, J., Banks, D.A., Cuney, M., 2016. Metal-rich fluid inclusions provide new insights into unconformity-related U deposits (Athabasca Basin and Basement, Canada). Miner Deposita 51, 249–270. https://doi.org/10.1007/s00126-015-0601-4

Rickard, D., 1995. Kinetics of FeS precipitation: Part 1. Competing reaction mechanisms. Geochimica et Cosmochimica Acta 59, 4367–4379. https://doi.org/10.1016/0016-7037(95)00251-T

Rickard, D., 1997. Kinetics of pyrite formation by the H2S oxidation of iron (II) monosulfide in aqueous solutions between 25 and 125°C: The rate equation. Geochimica et Cosmochimica Acta 61, 115–134. https://doi.org/10.1016/S0016-7037(96)00321-3

Rickard, D., & Luther III, G. W., 1997. Kinetics of pyrite formation by the H2S oxidation of iron (II) monosulfide in aqueous solutions between 25 and 125 C: The mechanism. Geochimica et Cosmochimica Acta, 61(1), 135-147. https://doi.org/10.1016/S0016-7037(96)00322-5

Riegler, T., Beaufort, M.-F., Allard, T., Pierson-Wickmann, A.-C., Beaufort, D., 2016. Nanoscale relationships between uranium and carbonaceous material in alteration halos around unconformity-related uranium deposits of the Kiggavik camp, Paleoproterozoic Thelon Basin, Nunavut, Canada. Ore Geology Reviews 79, 382–391. https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2016.04.018

Rosing-Schow, N., Bagas, L., Kolb, J., Balić-Žunić, T., Korte, C., Fiorentini, M.L., 2017. Hydrothermal flake graphite mineralisation in Paleoproterozoic rocks of south-east Greenland. Miner Deposita 52, 769–789. https://doi.org/10.1007/s00126-016-0701-9

Ruhrmann, G., 1987. The Gaertner uranium orebody at Key Lake (northern Saskatchewan, Canada) after three years of mining: An update of the geology.

Sangély, L., Chaussidon, M., Michels, R., Huault, V., 2005. Microanalysis of carbon isotope composition in organic matter by secondary ion mass spectrometry. Chemical Geology 223, 179–195. https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2005.06.001

Sangély, L., Chaussidon, M., Michels, R., Brouand, M., Cuney, M., Huault, V., Landais, P., 2007. Micrometer scale carbon isotopic study of bitumen associated with Athabasca uranium deposits: Constraints on the genetic relationship with petroleum source-rocks and the abiogenic origin hypothesis. Earth and Planetary Science Letters 258, 378–396. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.03.018

Schidlowski, M., 2001. Carbon isotopes as biogeochemical recorders of life over 3.8 Ga of Earth history: evolution of a concept. Precambrian Research 106, 117–134. https://doi.org/10.1016/S0301-9268(00)00128-5

Scholz, C.H., 1988. The brittle-plastic transition and the depth of seismic faulting. Geol Rundsch 77, 319–328. https://doi.org/10.1007/BF01848693

Schoonen, M.A.A., Barnes, H.L., 1991. Reactions forming pyrite and marcasite from solution: I. Nucleation of FeS2 below 100°C. Geochimica et Cosmochimica Acta 55, 1495–1504. https://doi.org/10.1016/0016-7037(91)90122-L

Scibek, J., Annesley, I.R., 2021. Permeability Testing of Drill Core from Basement Rocks in the Fault-Hosted Gryphon U Deposit (Eastern Athabasca Basin, Canada): Insights into Fluid–Rock Interactions Related to Deposit Formation and Redistribution. Nat Resour Res 30, 2909–2956. https://doi.org/10.1007/s11053-021-09811-x

Seal, R. R., 2006. Sulfur isotope geochemistry of sulfide minerals. Reviews in mineralogy and geochemistry 61, 633-677. https://doi.org/10.1016/0016-7037(82)90113-2

Shanks III, W. C., Bischoff, J. L., Rosenbauer, R. J., 1981. Seawater sulfate reduction and sulfur isotope fractionation in basaltic systems: interaction of seawater with fayalite and magnetite at 200–350 C. Geochimica et Cosmochimica Acta, 45(11), 1977-1995. https://doi.org/10.1016/0016-7037(81)90054-5

Sheahan, C., Fayek, M., Quirt, D., Jefferson, C.W., 2016. A Combined Ingress-Egress Model for the Kianna Unconformity-Related Uranium Deposit, Shea Creek Project, Athabasca Basin, Canada. Economic Geology 111, 225–257. https://doi.org/10.2113/econgeo.111.1.225

Shipton, Z. K., Soden, A. M., Kirkpatrick, J. D., Bright, A. M., Lunn, R. J. (2006). How thick is a fault? Fault displacement-thickness scaling revisited. In Abercrombie, et al., 2006; Earthquakes: Radiated Energy and the Physics of Faulting, 193–198.

Sibson, R.H., 1977. Fault rocks and fault mechanisms. Journal of the Geological Society 133, 191–213. https://doi.org/10.1144/gsjgs.133.3.0191

Sibson, R. H., 1996. Structural permeability of fluid-driven fault-fracture meshes. Journal of Structural geology 18(8), 1031-1042. https://doi.org/10.1016/0191-8141(96)00032-6

Simandl, G.J., Paradis, S., Akam, C., 2015. Graphite deposit types, their origin, and economic significance. British Columbia Ministry of Energy and Mines & British Columbia Geological Survey 3, 163–171.

Skirrow, R.G., Mercadier, J., Armstrong, R., Kuske, T., Deloule, E., 2016. The Ranger uranium deposit, northern Australia: Timing constraints, regional and ore-related alteration, and genetic implications for unconformity-related mineralisation. Ore Geology Reviews 76, 463–503. https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2015.09.001

Song, H., Chi, G., Wang, K., Li, Z., Bethune, K.M., Potter, E.G., Liu, Y., 2022. The role of graphite in the formation of unconformity-related uranium deposits of the Athabasca Basin, Canada: A case study of Raman spectroscopy of graphite from the world-class Phoenix uranium deposit. American Mineralogist 107, 2128–2142. https://doi.org/10.2138/am-2022-8158

Stasiuk, L.D., Fowler, M.G., Jiricka, D., Mossisson, D., Sopuck, V., Wheatley, K., Wilson, N.S., Zaluski, G., 2001. Preliminary investigation into organic petrology and organic geochemistry of Proterozoic Douglas Formation shales and Athabasca Group sandstones distal and proximal to uranium mineralization, Athabasca basin, Saskatchewan. Summary of Investigations 2, 2001–4.

Stevens, G., 1997. Melting, carbonic fluids and water recycling in the deep crust: an example from the Limpopo Belt, South Africa. J Metamorph Geol 15, 141–154. https://doi.org/10.1111/j.1525-1314.1997.00010.x

Stipp, M., Stünitz, H., Heilbronner, R., Schmid, S.M., 2002. Dynamic recrystallization of quartz: correlation between natural and experimental conditions. SP 200, 171–190. https://doi.org/10.1144/GSL.SP.2001.200.01.11

Strauss, H., Melezhik, V.A., Lepland, A., Fallick, A.E., Hanski, E.J., Filippov, M.M., Deines, Y.E., Illing, C.J., Črne, A.E. & Brasier, A.T. 2013: Enhanced Accumulation of Organic Matter: The

Shunga Event. In Melezhik, V., Prave, A.R., Hanski, E.J., Fallick, A.E., Lepland, A., Kump, L.R. & Strauss, H. (eds.): Reading the archive of Earth's oxygenation, Springer, Berlin, 1195-1273, doi: https://doi.org/10.1007/978-3-642-29670-3_6.

Stüeken, E.E., Szilas, K., van Hinsberg, V.J., 2023. Evaluating the biosignature potential of nitrogen concentrations in graphite and associated K-silicates. Chemical Geology 617, 121274. https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2022.121274

Thériault, R.J., 1992. Nd Isotopic Evolution of the Taltson Magmatic Zone, Northwest Territories, Canada: Insights into Early Proterozoic Accretion along the Western Margin of the Churchill Province. The Journal of Geology 100, 465–475. https://doi.org/10.1086/629598

Tissot, B.P., Welte, D.H., 1984. Petroleum formation and occurrence. Springer-Verlag.

Toma, J., Creaser, R. A., Card, C., Pana, D., Dufrane, A., & Li, L., 2024. Nuna supercontinent assembly linked to carbon cycling in shear zones 1.9–1.7 billion years ago. Nature Geoscience, 17(10), 1038-1045. https://doi.org/10.1038/s41561-024-01519-w

Tourigny, G., Quirt, D.H., Wilson, N.S.F., Wilson, S., Breton, G., Portella, P., 2007. Geological and structural features of the Sue C uranium deposit, McClean Lake area, Saskatchewan (No. 588). https://doi.org/10.4095/223768

Tran, H.T., 2001. Tectonic evolution of the paleoproterozoic wollaston group in the cree lake zone, northern saskatchewan, canada. Faculty of Graduate Studies and Research, University of Regina.

Tran, H.T., Ansdell, K., Bethune, K., Watters, B., Ashton, K., 2003. Nd isotope and geochemical constraints on the depositional setting of Paleoproterozoic metasedimentary rocks along the margin of the Archean Hearne craton, Saskatchewan, Canada. Precambrian Research 123, 1–28. https://doi.org/10.1016/S0301-9268(03)00012-3

Viegas, G., Menegon, L., & Archanjo, C., 2016. Brittle grain-size reduction of feldspar, phase mixing and strain localization in granitoids at mid-crustal conditions (Pernambuco shear zone, NE Brazil). Solid Earth 7(2), 375-396. https://doi.org/10.5194/se-7-375-2016

Wang, A., Dhamenincourt, P., Dubessy, J., Guerard, D., Landais, P., Lelaurain, M., 1989. Characterization of graphite alteration in an uranium deposit by micro-Raman spectroscopy, X-ray diffraction, transmission electron microscopy and scanning electron microscopy. Carbon 27, 209–218. https://doi.org/10.1016/0008-6223(89)90125-5

Wang, K., Chi, G., Bethune, K.M., Li, Z., Blamey, N., Card, C., Potter, E.G., Liu, Y., 2018. Fluid P-T-X characteristics and evidence for boiling in the formation of the Phoenix uranium deposit (Athabasca Basin, Canada): Implications for unconformity-related uranium mineralization mechanisms. Ore Geology Reviews 101, 122–142. https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2018.07.010

Wibberley, C. A., 1999. Are feldspar-to-mica reactions necessarily reaction-softening processes in fault zones? Journal of Structural Geology 21, 1219–1227. https://doi.org/10.1016/S0191-8141(99)00019-X

Wibberley, C. A., Yielding, G., & Di Toro, G., 2008. Recent advances in the understanding of fault zone internal structure: a review. Geological Society, London, Special Publications 299, 5-33.

Williams, R. T., Rowe, C. D., Okamoto, K., Savage, H. M., & Eves, E., 2021. How fault rocks form and evolve in the shallow San Andreas fault. Geochemistry, Geophysics, Geosystems 22(11), e2021GC010092. https://doi.org/10.1029/2021GC010092

Wilson, M.R., Kyser, T.K., 1987. Stable isotope geochemistry of alteration associated with the Key Lake uranium deposit, Canada. Economic Geology 82, 1540–1557. https://doi.org/10.2113/gsecongeo.82.6.1540

Wilson, N.S.F., Stasiuk, L.D., Fowler, M.G., 2007. Origin of organic matter in the Proterozoic Athabasca Basin of Saskatchewan and Alberta, and significance to unconformity uranium deposits (No. 588). https://doi.org/10.4095/223778

Wilson, C. J., Vassallo, J. J., & Hoek, J. D., 2020. Rheological behaviour of mafic dykes deformed in a granite host, Wanna, Eyre Peninsula, South Australia. Journal of Structural Geology, 140, 104-164.

Yang, M.-J., Di, Y.-J., Zhang, D., Wu, D.-T., Fang, Y. & Zhang, X.-M. 2024: A New Insight into the Genesis of Graphite Deposits in Madagascar Using U–Pb Zircon Dating and Electron Microprobe Analysis. Minerals 14, 484

Yeo, G.M., Delaney, G., 2007. The Wollaston Supergroup, stratigraphy and metallogeny of a Paleoproterozoic Wilson cycle in the Trans-Hudson orogen, Saskatchewan. BULLETIN-GEOLOGICAL SURVEY OF CANADA 588, 89.

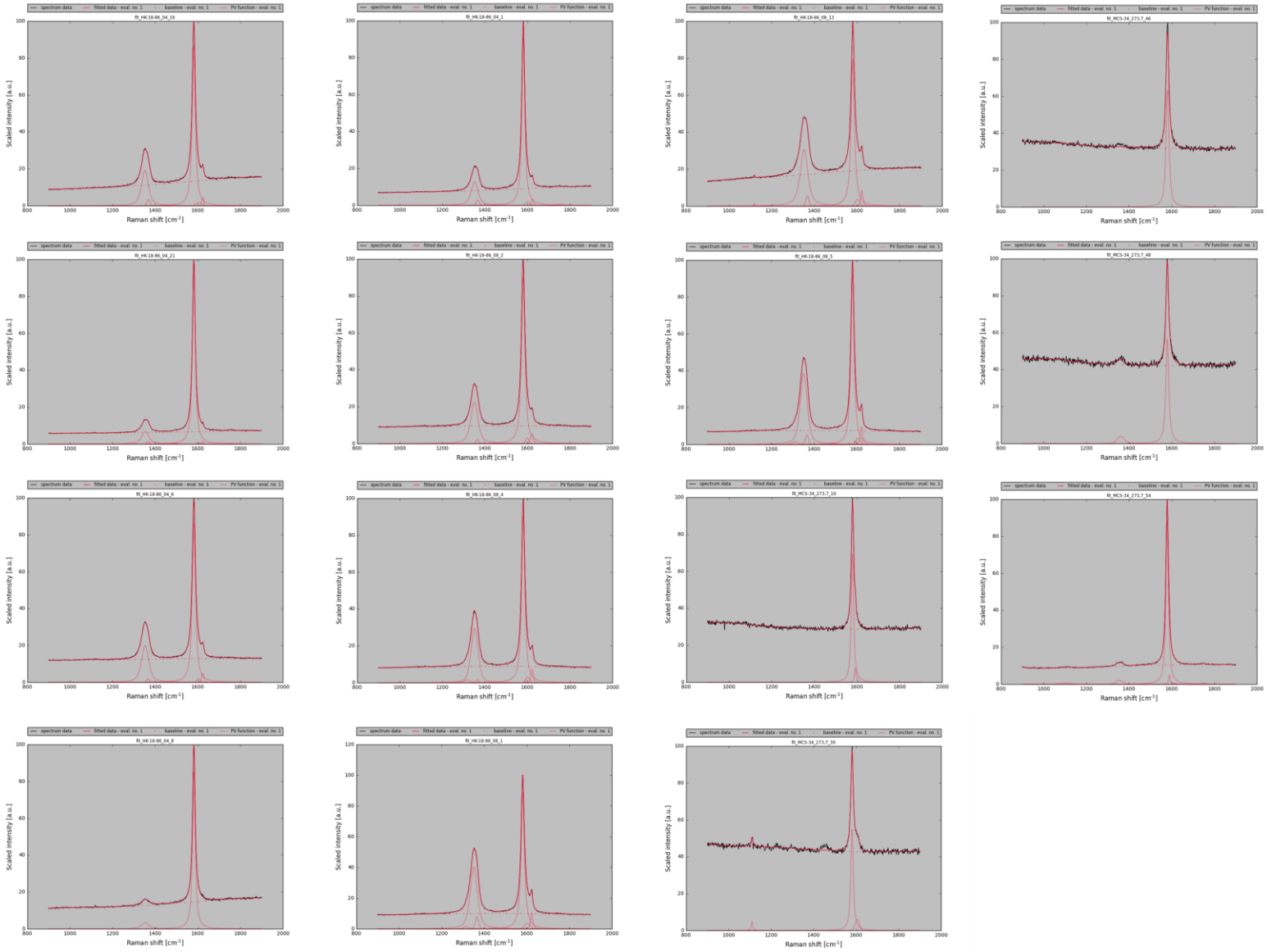
Yeo, G.M., Jefferson, C.W., Ramaekers, P., Jefferson, C.W., Delaney, G., EXTECH, I., 2007. Comparison of lower Athabasca Group stratigraphy among depositional systems, Saskatchewan and Alberta. BULLETIN-GEOLOGICAL SURVEY OF CANADA 588, 465.

Young, N., Chi, G., Liu, Y., Song, H., 2023. Graphite does not function as a direct reducing agent for unconformity-related uranium mineralization – Evidence from the graphitic metapelite-hosted Gryphon uranium deposit, northern Saskatchewan, Canada. Ore and Energy Resource Geology 15, 100028. https://doi.org/10.1016/j.oreoa.2023.100028

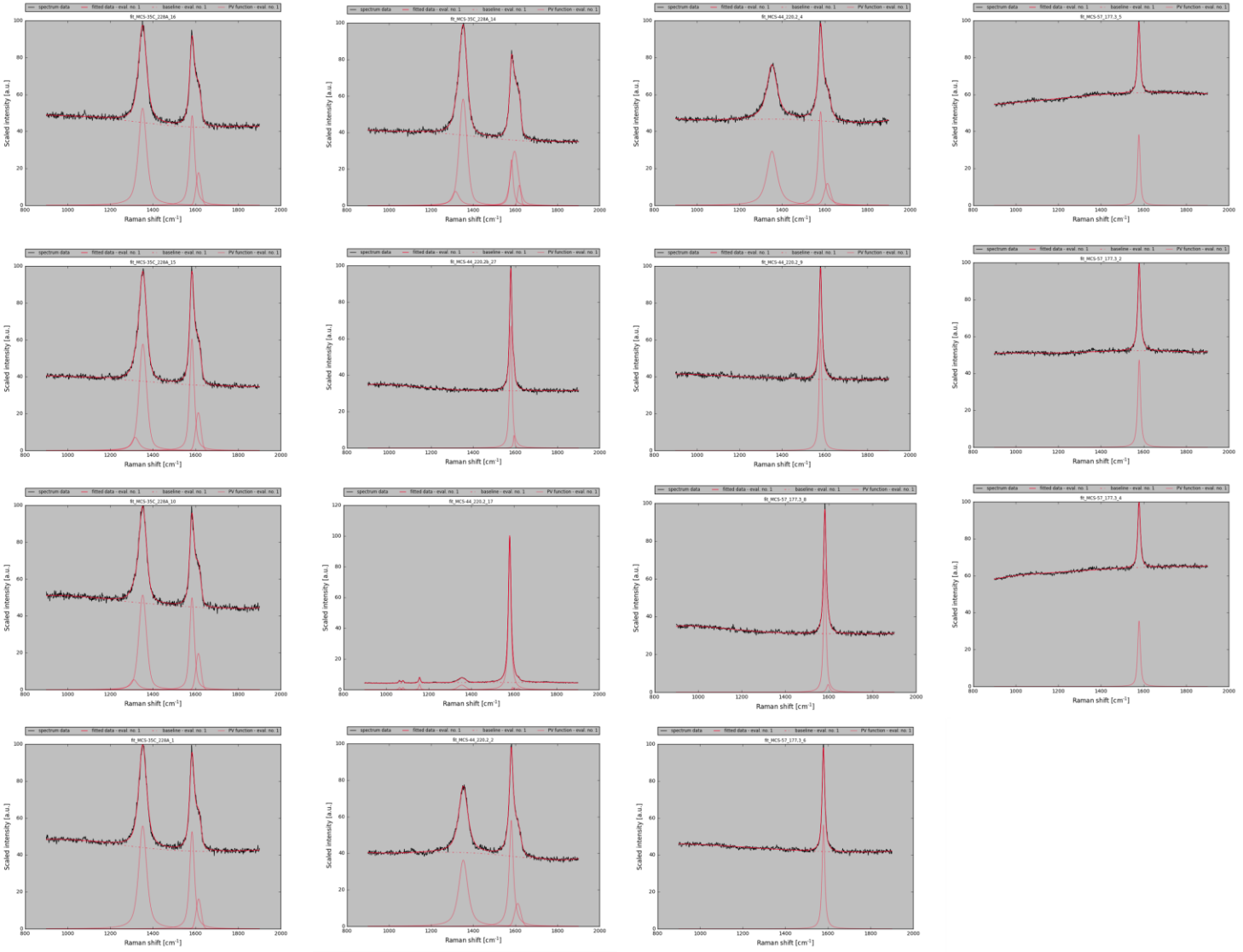
Zhong, Y., Ma, X.-D., Li, H.-K. & Zhai, M.-G. 2019: Revisit and comparative analysis of the typical graphite deposits in the Paleoproterozoic khondalite series, western North China Craton: Implications for genesis, depositional environment and prospecting potential. Ore Geology Reviews 109, 370-380, doi: https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2019.04.023.

Ziegenbein, D., Johannes, W., 1980. Graphite in CHO fluids: An unsuitable compound to buffer fluid composition at temperatures up to 700°C.

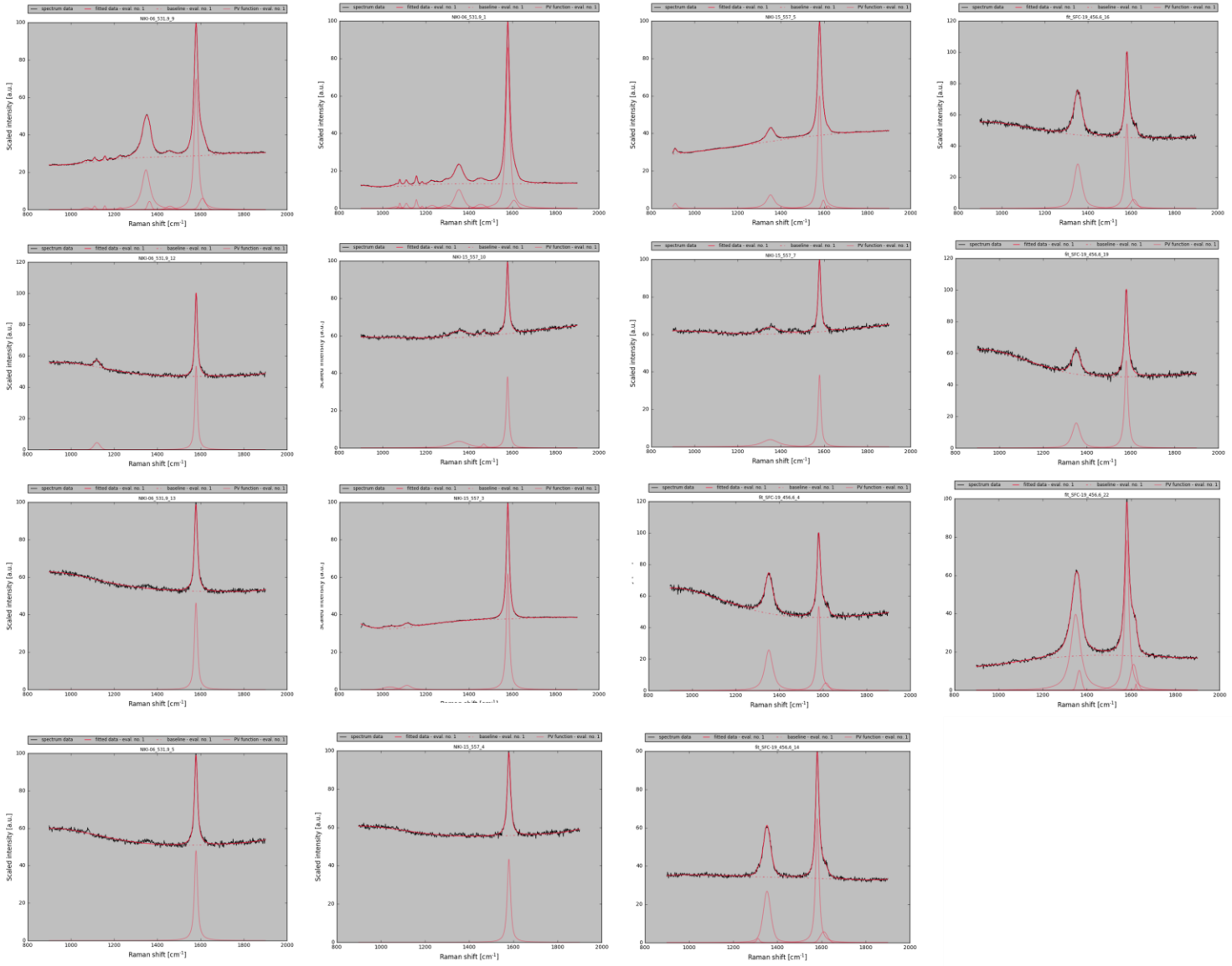
11 Annexes



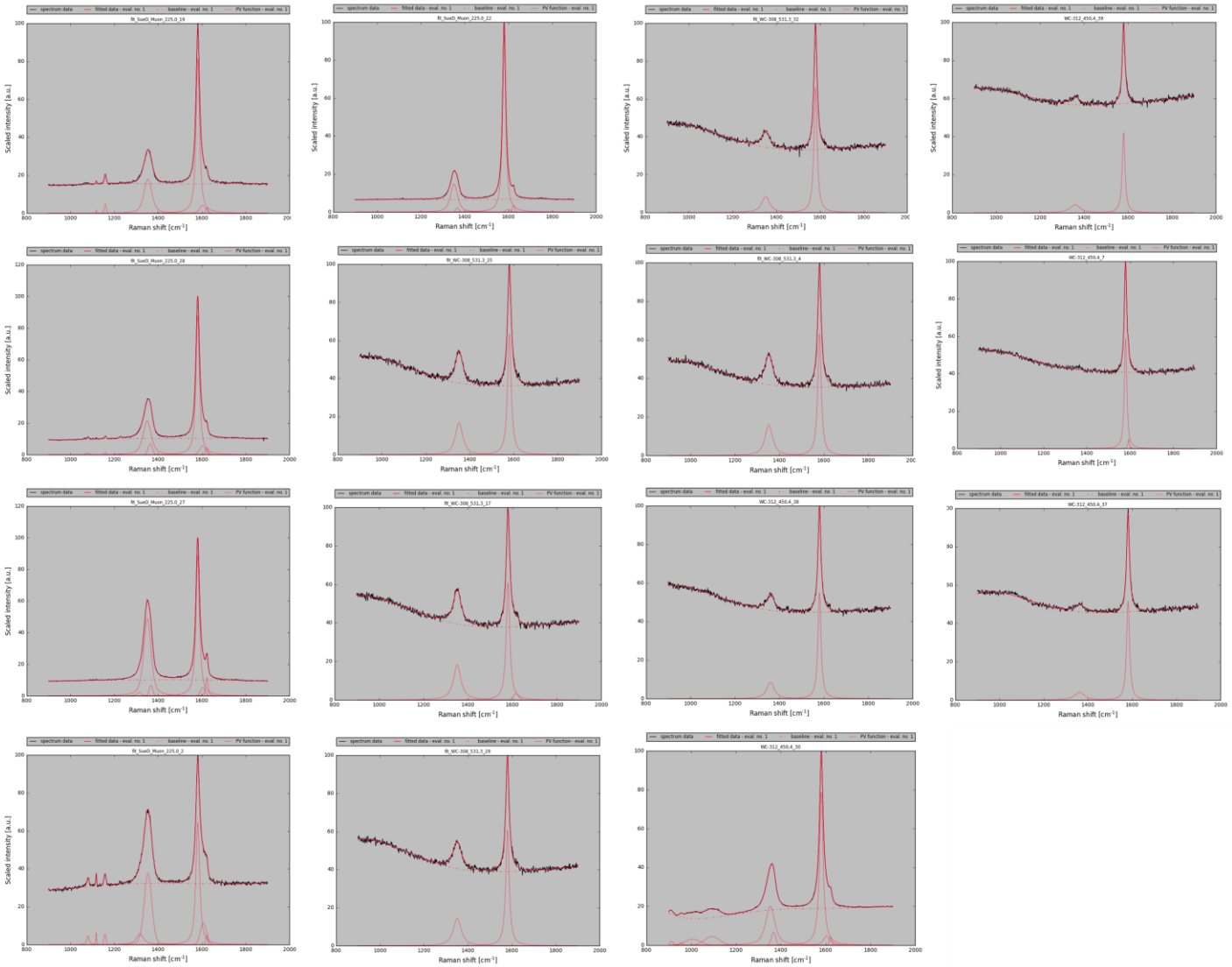
Annexe 1 : 5 spectres Raman par échantillon pour le graphite des lames minces HK-18-86-04, HK-18-86-08 et MCS-34_273,7.



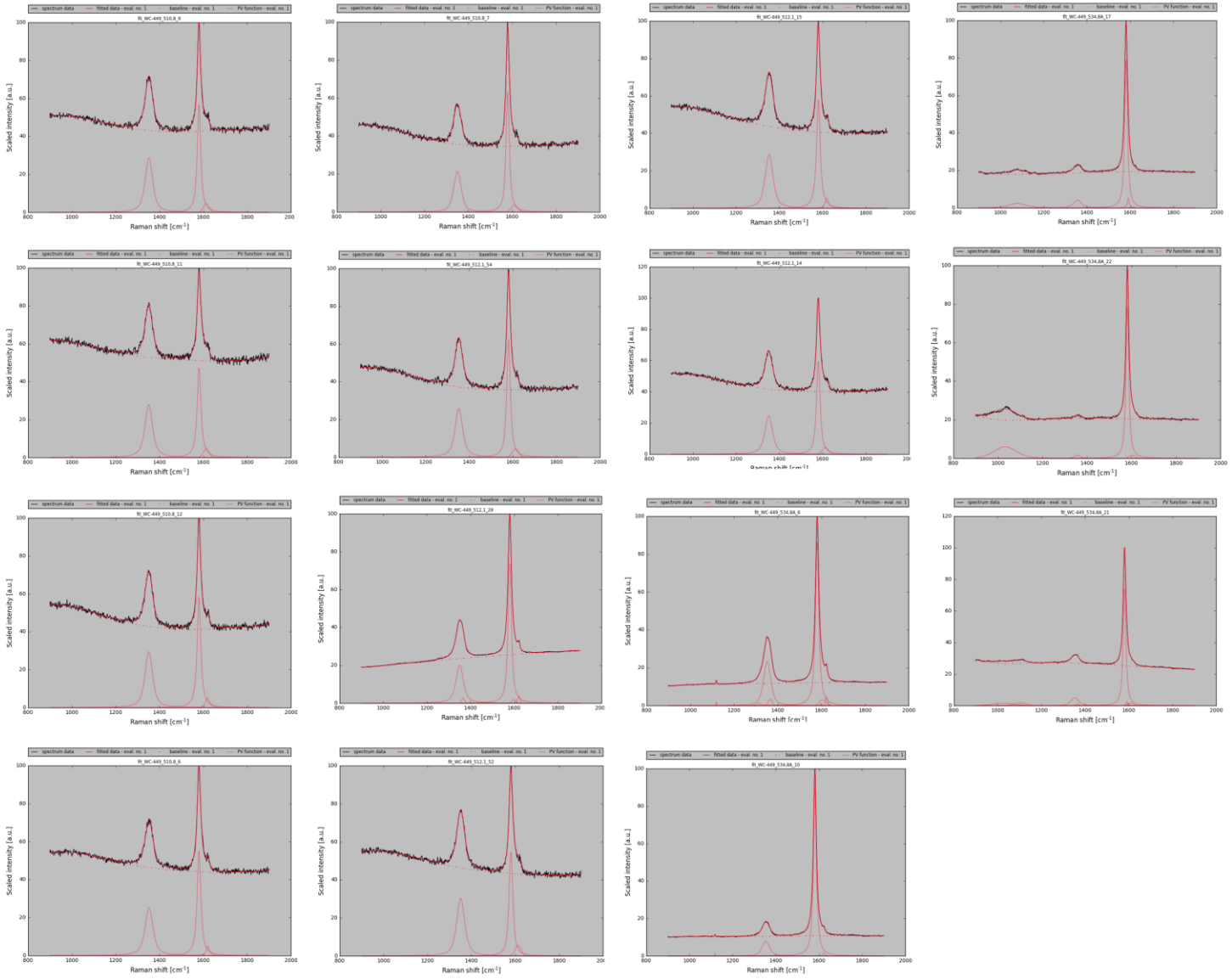
Annexe 2: 5 spectres Raman par échantillon pour le graphite des lames minces MCS-35C_228A, MCS-44_220,2 et MCS-57_177,3.



Annexe 3 : 5 spectres Raman par échantillon pour le graphite des lames minces Niki-06_531,9, Niki-15_557 et SFC-19_456,6.



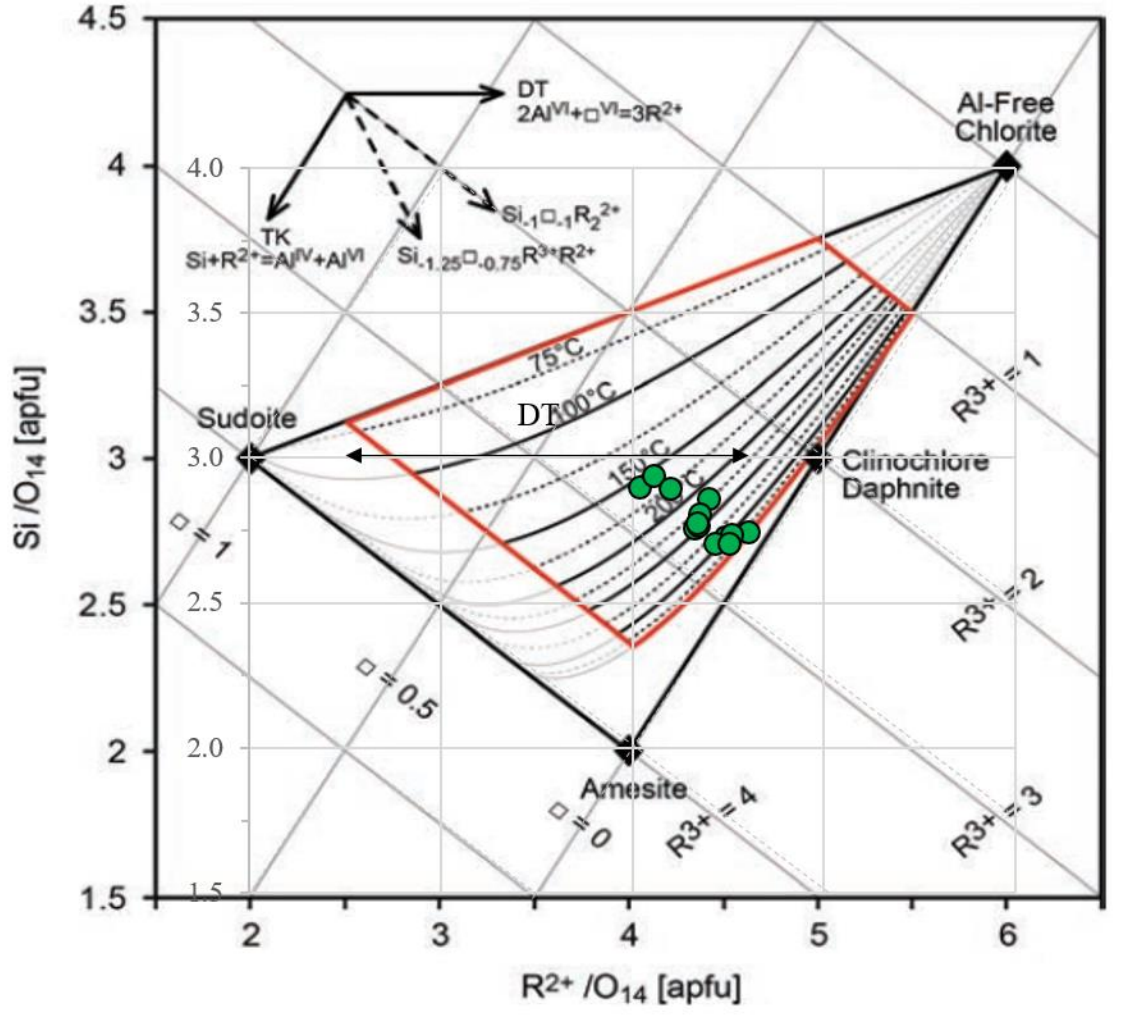
Annexe 4 : 5 spectres Raman par échantillon pour le graphite des lames minces SueD_Muon_225, WC-308_531,3 et WC-312_450,4.



Annexe 5 : 5 spectres Raman par échantillon pour le graphite des lames minces WC-449_510,8, WC-449_512,1 et WC-449_534,8A.

	Tetrahedral layer			Octahedral layer									
	Si	^{IV}Al	^{VI}Al	Fe^{2+}	Fe^{3+}	Fe_{total}	Mg	Mn	S Octa	Fe/(Fe+Mg)	R^{2+}	R^{3+}	R^{4+}
MCS-34_273,7-2	2.86	1.11	1.43	2.46	0.00	2.46	1.91	0.02	5.83	0.56	4.40	2.55	2.89
MCS-34_273,7-3	2.76	1.23	1.52	2.61	0.00	2.61	1.70	0.02	5.85	0.61	4.32	2.75	2.77
MCS-44_220,2-6	2.77	1.22	1.51	2.38	0.00	2.38	1.95	0.02	5.85	0.55	4.35	2.73	2.78
MCS-44_220,2-11	2.90	1.10	1.66	2.27	0.00	2.27	1.75	0.02	5.69	0.56	4.04	2.76	2.90
MCS-44_220,2-12	2.81	1.18	1.48	2.37	0.00	2.37	1.97	0.01	5.83	0.55	4.35	2.66	2.82
MCS-44_220,2-16	2.94	1.05	1.61	2.19	0.00	2.19	1.91	0.01	5.72	0.53	4.11	2.66	2.95
MCS-44_220,2-17	2.89	1.09	1.56	2.36	0.00	2.36	1.83	0.01	5.76	0.56	4.20	2.65	2.91
WF-68-01_501,5-13	2.73	1.26	1.41	2.17	0.00	2.17	2.25	0.07	5.90	0.49	4.48	2.67	2.74
WF-68-01_501,5-16	2.75	1.23	1.34	2.22	0.00	2.22	2.32	0.07	5.94	0.49	4.61	2.57	2.77
WF-68-01_501,5-17	2.74	1.25	1.40	2.24	0.00	2.24	2.21	0.07	5.92	0.50	4.52	2.65	2.75
WF-68-01_501,5-18	2.78	1.21	1.51	2.19	0.00	2.19	2.08	0.07	5.85	0.51	4.34	2.72	2.79
WF-68-01_501,5-19	2.71	1.28	1.47	2.24	0.00	2.24	2.13	0.06	5.90	0.51	4.43	2.75	2.72
WF-68-01_501,5-20	2.71	1.28	1.42	2.29	0.00	2.29	2.12	0.09	5.92	0.52	4.50	2.70	2.72
Moyenne	*2.80*	*1.19*	*1.49*	*2.31*	*0.00*	*2.31*	*2.01*	*0.04*	*5.84*	*0.53*	*4.36*	*2.68*	*2.81*
Ecart Type	*0.08*	*0.08*	*0.09*	*0.13*	*0.00*	*0.13*	*0.19*	*0.03*	*0.08*	*0.03*	*0.16*	*0.07*	*0.08*

Annexe 6 : Données triées des chlorites du rétrométamorphisme analysées en microsonde élctronique de Castaing pour MCS et WF.



Annexe 7 : Chlorites de l'annexe précédente dans le diagramme Bourdelle et Cathelinau (2015).

Sample ID	As	Ba	Be	Bi	Cd	Co	Cr	Cs	Cu	Ga	Ge	Hf	Mo	Nb	Ni	Pb	Rb	Sb	Sc	Sn	Sr
	ppm																				
MCS-01_321.6	1.3	84.0	2.9	7.3	0.0	4.0	26.0	1.0	8.4	7.2	0.7	1.3	4.5	3.4	9.4	26.5	72.3	4.5	5.6	0.7	5.8
MCS-01_324	7.0	114.7	2.2	0.8	< L.D.	4.1	8.4	1.2	160.8	12.0	0.9	1.2	3.7	1.7	12.1	11.2	108.0	10.1	4.3	1.0	8.6
MCS-01_374.6	2.3	83.8	3.7	2.0	0.0	6.7	58.6	2.7	14.3	21.4	1.5	3.2	22.0	9.5	26.6	16.5	111.7	5.0	16.8	1.8	39.8
MCS-34_229.9	3.1	131.0	3.4	1.2	0.0	17.1	109.8	2.5	51.2	31.2	2.0	5.3	3.6	23.6	47.2	12.6	117.8	3.5	22.6	2.1	121.3
MCS-34_271.6	4.7	402.0	2.3	1.7	0.1	13.7	6.5	3.2	67.2	21.6	1.4	2.3	3.3	4.3	13.6	32.4	183.2	4.0	3.0	2.1	84.8
MCS-34_273.7	1.2	188.1	3.0	0.4	0.0	5.2	13.1	4.2	37.8	25.7	1.5	5.7	3.1	7.6	12.5	15.6	151.2	9.6	7.0	2.5	75.6
MCS-35C_225.9	2.3	121.4	3.3	0.2	0.0	4.2	98.8	2.6	12.8	40.2	1.3	5.3	7.3	15.9	48.0	8.8	195.6	4.9	19.9	1.9	37.4
MCS-35C_228A	26.5	106.7	2.3	1.7	< L.D.	20.3	38.9	1.9	14.0	9.9	0.8	2.0	15.1	6.1	37.5	8.7	101.7	7.4	7.0	0.9	10.8
MCS-35C_228B	13.8	163.1	2.4	0.7	0.0	8.5	14.5	2.0	43.1	17.0	0.6	1.1	2.3	2.8	17.1	6.1	188.2	4.5	3.8	1.1	6.6
MCS-35C_240.8	8.3	123.4	4.1	1.0	0.0	19.0	90.8	2.4	6.8	24.3	1.5	4.3	8.0	13.0	45.8	64.8	90.4	3.9	17.0	2.0	35.0
MCS-41_212.4	< L.D.	428.0	2.9	0.1	0.0	5.8	154.4	4.1	9.6	39.7	1.8	5.7	2.4	20.3	32.8	4.6	243.8	3.4	36.6	4.2	11.2
MCS-44_201	1.9	55.2	6.6	0.3	0.0	4.7	106.5	4.4	5.1	28.7	1.0	7.8	13.1	50.3	34.8	4.1	91.4	4.2	12.5	0.9	34.4
MCS-57_177.3	1.2	45.9	7.6	< L.D.	0.0	23.8	127.3	3.9	2.3	24.6	1.2	3.4	3.6	25.5	76.7	7.6	45.0	4.5	17.1	0.8	10.0
MCS-57_211.5	0.6	23.8	2.0	0.2	< L.D.	1.4	1.9	3.2	33.7	16.2	1.8	0.3	2.7	7.2	8.7	12.1	51.4	4.2	4.3	3.2	49.3
SueD_Muon_225	41.6	26.2	3.7	< L.D.	< L.D.	18.6	97.7	2.1	50.6	47.3	1.4	3.4	4.6	9.7	102.5	3.3	65.7	4.4	15.4	1.5	48.8
WF-67_493.8	5.0	71.2	5.7	0.1	0.1	14.2	188.2	5.3	3.4	41.6	1.3	7.5	36.1	34.1	61.6	3.8	69.7	3.9	31.4	2.2	60.0
WF-67_503.9	4.6	312.8	5.5	0.1	0.1	30.9	107.7	30.9	3.2	32.6	2.9	7.7	2.8	23.4	48.5	3.7	295.7	3.9	27.3	2.0	98.3
WF-67_571.4	40.1	540.5	8.0	2.7	0.1	52.8	123.8	14.7	79.9	33.9	3.5	5.0	3.5	19.6	55.4	23.7	215.9	4.7	30.4	2.8	56.4
WF-68_498.5	6.4	102.8	3.7	0.1	0.0	16.7	54.7	10.1	19.6	22.4	3.2	4.6	2.7	12.0	42.6	4.9	148.0	4.7	18.5	2.6	344.2
WF-68-01_504	22.4	27.1	6.5	0.4	0.1	9.8	282.6	30.7	57.6	21.3	2.7	9.8	3.5	15.3	68.0	5.3	76.2	3.6	13.2	2.2	30.4
WF-69_521.1	1.3	424.2	21.7	< L.D.	0.1	7.4	283.1	12.8	3.2	68.4	2.8	17.1	8.7	267.9	24.6	13.8	408.2	3.3	52.2	3.2	30.0
WF-69_541.1	389.2	70.8	7.8	2.5	0.1	62.2	233.7	1.4	52.8	19.9	2.3	6.3	8.8	11.3	106.4	10.8	45.6	6.2	13.0	1.0	22.8
WF-69_545.8	90.2	67.8	5.9	0.6	0.2	49.0	93.3	1.7	900.0	14.5	3.0	3.4	4.9	7.6	76.2	12.9	41.2	4.8	14.0	1.1	42.8
WF-69_547.4	31.3	113.1	9.6	0.2	0.0	71.2	206.8	9.4	17.9	31.9	2.1	6.9	6.4	17.6	109.1	17.4	162.7	4.1	23.6	1.4	32.9
WF-69_555.4	22.5	210.9	6.4	1.7	0.1	39.2	128.0	5.1	321.2	29.3	3.2	5.6	5.0	13.9	31.7	7.2	126.2	3.4	22.5	1.9	160.5
WF-69_556.2	26.3	143.1	5.8	0.7	0.0	54.3	155.8	3.7	54.0	25.6	2.6	4.9	5.4	15.6	64.1	12.2	93.0	4.2	22.0	1.5	50.3

Sample ID	Ta	Th	U	V	W	Y	Zn	Zr	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
	ppm																					
MCS-01_321.6	0.3	4.2	12.4	90.9	< L.D.	7.6	16.2	48.3	16.7	32.8	3.9	14.1	2.6	0.5	2.1	0.3	1.5	0.3	0.7	0.1	0.7	0.1
MCS-01_324	0.2	5.0	14.1	52.6	< L.D.	5.9	68.8	38.0	2.0	4.0	0.5	2.3	0.8	0.3	1.1	0.2	1.1	0.2	0.6	0.1	0.6	0.1
MCS-01_374.6	1.1	14.7	37.3	94.4	1.6	17.4	44.0	110.5	76.2	135.7	14.8	50.8	8.3	1.1	5.9	0.7	3.8	0.7	1.8	0.3	1.8	0.3
MCS-34_229.9	3.8	25.3	17.0	126.6	0.9	35.7	21.5	182.7	55.4	110.6	12.2	43.0	7.2	1.3	4.9	0.7	5.4	1.3	3.9	0.6	3.9	0.6
MCS-34_271.6	0.4	10.3	70.4	13.4	1.2	11.4	40.8	71.0	35.0	67.1	7.5	26.5	4.7	1.1	3.1	0.4	2.2	0.4	1.1	0.2	1.1	0.2
MCS-34_273.7	0.6	7.9	10.7	25.2	< L.D.	11.1	13.1	165.7	43.2	81.8	9.1	32.3	5.8	1.4	3.4	0.4	2.3	0.4	1.0	0.1	1.0	0.2
MCS-35C_225.9	1.6	17.9	3.6	319.7	1.1	29.9	26.5	191.3	55.7	105.7	12.1	42.9	7.5	1.1	6.0	0.9	5.5	1.1	2.9	0.4	2.5	0.4
MCS-35C_228A	0.6	6.2	5.8	56.2	< L.D.	9.1	18.1	72.8	31.8	64.1	7.4	26.4	4.7	0.6	3.5	0.4	2.2	0.4	0.9	0.1	0.8	0.1
MCS-35C_228B	0.4	6.8	1.3	30.0	< L.D.	5.0	9.8	34.8	4.6	9.4	1.2	4.5	1.0	0.3	1.0	0.2	1.0	0.2	0.5	0.1	0.5	0.1
MCS-35C_240.8	1.2	19.2	8.9	150.2	1.6	17.1	34.4	156.2	44.6	85.3	9.9	34.4	5.9	0.8	4.1	0.6	3.2	0.6	1.7	0.2	1.6	0.2
MCS-41_212.4	1.3	21.6	6.0	205.5	3.3	12.3	29.0	199.4	7.7	17.5	2.1	8.1	1.8	0.4	1.8	0.3	2.1	0.5	1.3	0.2	1.5	0.2
MCS-44_201	4.3	14.5	13.6	122.4	1.9	9.5	14.4	233.5	17.7	36.0	4.1	14.5	3.2	0.5	2.3	0.3	1.8	0.3	0.8	0.1	0.9	0.2
MCS-57_177.3	6.0	8.2	11.9	172.0	1.2	18.5	91.5	122.0	17.7	37.6	4.5	16.9	3.4	0.5	3.3	0.5	3.3	0.7	1.9	0.3	1.8	0.3
MCS-57_211.5	1.3	55.1	12.5	9.4	0.8	11.1	< L.D.	6.4	57.9	129.6	15.3	54.9	11.6	0.8	7.0	0.8	3.3	0.5	0.9	0.1	0.5	0.1
SueD_Muon_225	0.9	11.5	15.2	285.5	2.2	22.8	26.1	125.4	5.4	11.7	1.4	5.5	1.6	0.3	2.3	0.6	4.0	0.9	2.2	0.3	2.2	0.4

Sample ID	Ta	Th	U	V	W	Y	Zn	Zr	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
	ppm																					
WF-67_493.8	4.1	25.3	4.2	92.8	1.8	72.0	34.2	265.7	19.3	38.6	4.2	15.0	3.6	0.7	6.4	1.7	12.3	2.6	6.6	0.9	6.0	0.9
WF-67_503.9	4.2	13.3	1.9	128.6	3.0	20.0	114.9	275.9	34.8	70.2	7.4	25.4	4.2	1.1	3.3	0.5	3.2	0.8	2.4	0.4	2.8	0.5
WF-67_571.4	1.9	25.1	4.7	170.8	1.5	33.6	147.4	169.4	76.9	157.6	17.5	62.8	11.4	1.6	8.4	1.2	6.7	1.3	3.5	0.5	3.4	0.5
WF-68_498.5	1.3	31.7	1.9	90.0	4.0	30.3	82.6	160.0	114.0	235.5	26.8	97.4	17.4	2.6	12.6	1.4	6.4	1.2	3.3	0.5	3.4	0.5
WF-68-01_504	0.9	10.7	4.3	137.9	4.7	30.6	26.6	384.7	40.4	89.4	10.9	43.0	8.3	1.6	7.5	1.1	6.2	1.2	2.9	0.4	2.5	0.4
WF-69_521.1	47.5	74.7	180.9	423.2	138.8	33.0	23.3	577.2	13.6	28.5	3.3	12.9	4.1	0.9	5.1	1.0	6.9	1.5	4.2	0.7	5.2	0.8
WF-69_541.1	0.9	12.0	5.1	178.9	4.0	20.1	29.1	248.8	9.3	25.2	3.7	17.1	4.7	1.4	4.8	0.7	3.9	0.8	2.0	0.3	1.9	0.3
WF-69_545.8	0.7	10.6	1.7	101.5	3.1	27.8	281.8	132.6	27.6	54.0	6.0	21.2	3.7	0.7	3.5	0.6	4.5	1.0	2.9	0.4	2.9	0.4
WF-69_547.4	1.7	10.9	3.7	219.3	5.0	15.8	21.8	264.0	7.5	17.6	2.2	8.7	2.0	0.5	2.3	0.4	2.6	0.6	1.7	0.3	1.9	0.3
WF-69_555.4	1.1	21.4	4.2	139.8	6.8	33.6	53.6	205.8	91.2	170.8	18.5	64.8	10.1	1.9	6.3	0.9	5.8	1.3	3.6	0.5	3.8	0.6
WF-69_556.2	1.1	14.3	3.1	148.0	4.5	36.0	46.9	183.3	37.1	75.0	8.6	32.0	5.9	1.1	5.3	0.9	6.0	1.3	3.7	0.5	3.6	0.6

Annexe 8 : Tableau des concentrations (en ppm) mesurées en roche totale pour les éléments mineurs des échantillons de MCS et WF étudiés dans le Chapitre 3.

SAMPLE_ID	ANALYSE_ID	d_^{18O}	d_18O_2sigma
MCS-31_191,9A	MCS-31_191,9A@1	23.002	0.185
MCS-31_191,9A	MCS-31_191,9A@2	23.729	0.170
MCS-31_191,9A	MCS-31_191,9A@3	24.309	0.170
MCS-31_191,9A	MCS-31_191,9A@4	24.448	0.176
MCS-31_191,9A	MCS-31_191,9A@5	22.249	0.181
MCS-31_191,9A	MCS-31_191,9A@6	23.116	0.169
MCS-31_191,9A	MCS-31_191,9A@7	24.114	0.186
MCS-31_191,9A	MCS-31_191,9A@8	25.354	0.198
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@1	18.639	0.178
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@2	18.441	0.187
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@3	14.450	0.190
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@4	14.647	0.198
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@5	15.618	0.198
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@6	20.971	0.180
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@8	14.837	0.222
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@10	14.709	0.191
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@11	17.552	0.201
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@12	19.672	0.214
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@13	19.367	0.180
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@14	20.611	0.212
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@15	20.769	0.178
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@16	20.289	0.182
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@17	19.452	0.187
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@18	15.536	0.184
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@19	19.260	0.186
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@20	20.639	0.208
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@21	20.177	0.174
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@22	21.487	0.191
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@23	21.519	0.219
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@24	18.353	0.215
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@25	15.273	0.218
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@26	15.516	0.236
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@28	19.441	0.199
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@29	15.123	0.197
MCS-01_356,6	MCS-01_356,6@30	18.469	0.196
MCS-05_256,3	MCS-05_256,3@1	17.967	0.177
MCS-05_256,3	MCS-05_256,3@4	18.242	0.168
MCS-05_256,3	MCS-05_256,3@5	18.568	0.144
MCS-05_256,3	MCS-05_256,3@6	17.662	0.156
MCS-05_256,3	MCS-05_256,3@7	17.214	0.172
MCS-05_256,3	MCS-05_256,3@8	17.121	0.178

SAMPLE_ID	ANALYSE_ID	d_^{18O}	d_18O_2sigma
MCS-05_256,3	MCS-05_256,3@9	17.374	0.171
MCS-05_256,3	MCS-05_256,3@10	17.083	0.178
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A@1	11.806	0.190
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A@2	10.856	0.178
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A@3	12.722	0.151
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A@4	12.112	0.188
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A@5	13.048	0.184
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A@6	13.820	0.179
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A@7	12.629	0.157
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A@8	12.746	0.199
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@1	15.535	0.183
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@02	12.348	0.176
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@03	12.827	0.180
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@04	13.359	0.207
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@05	13.074	0.200
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@06	12.468	0.177
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@07	12.364	0.187
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@08	12.653	0.158
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@09	12.410	0.200
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@10	11.497	0.192
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@11	11.254	0.182
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@12	11.385	0.171
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@13	11.804	0.222
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@14	12.941	0.163
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@15	12.469	0.183
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@16	12.397	0.203
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@17	11.537	0.215
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@18	12.856	0.224
WC-449_534,8A	WC-449_534,8A-Trans1@19	13.600	0.215

Annexe 9 : Valeurs de $\delta^{18}O$ (‰) des échantillons de dolomite à McClean Sourth et Cigar Lake.

Temp.(°C)	$\alpha(CaCO_3\text{-}CH_4)$	$\alpha(CO_2\text{-}CH_4)$	$\alpha(C\text{-}CH_4)$	$\alpha(CaCO_3\text{-}C)$	$\alpha(CO_2\text{-}C)$	$\alpha(CO_2\text{-}CaCO_3)$
0	90,6	77,7	63,4	27,2	14,3	-13,0
10	85,5	73,7	59,3	26,2	14,4	-11,8
20	80,7	70,1	55,5	25,2	14,6	-10,7
25	78,5	68,3	53,7	24,8	14,6	-10,1
30	76,3	66,7	52,0	24,3	14,7	-9,6
40	72,2	63,6	48,8	23,4	14,8	-8,6
50	68,4	60,7	45,8	22,6	14,9	-7,7
60	64,9	58,0	43,0	21,8	15,0	-6,9
70	61,6	56,5	40,5	21,5	15,0	-6,1
80	58,5	53,2	38,1	20,4	15,1	-5,4
90	55,6	51,0	36,9	19,7	15,1	-4,7
100	52,9	48,9	33,8	19,1	15,1	-4,0
120	48,1	45,2	30,2	17,9	15,0	-2,9
140	43,8	41,9	26,9	16,9	14,9	-1,9
160	40,0	38,9	24,1	15,9	14,8	-1,1
180	36,6	36,3	21,6	15,0	14,6	-0,4
200	33,6	33,9	19,5	14,2	14,4	0,2
220	31,0	31,7	17,5	13,4	14,2	0,8
240	28,6	29,8	15,8	12,7	13,9	1,2
260	26,4	28,0	14,3	12,1	13,7	1,5
280	24,5	26,3	13,0	11,6	13,4	1,8
300	22,8	24,8	11,8	11,0	13,1	2,1
320	21,2	23,5	10,7	10,5	12,8	2,3
340	19,8	22,2	9,7	10,0	12,5	2,4
360	18,5	21,0	8,9	9,6	12,2	2,6
380	17,8	20,0	8,1	9,2	11,9	2,7
400	16,3	19,0	7,4	8,8	11,5	2,7
450	14,0	16,8	6,0	8,0	10,8	2,8
500	12,2	14,9	4,9	7,3	10,1	2,8
550	10,7	13,4	4,0	6,7	9,4	2,7
600	9,5	12,1	3,3	6,2	8,8	2,6
650	8,5	10,9	2,7	5,8	8,2	2,4
700	7,7	10,0	2,3	5,4	7,7	2,3

Annexe 10 : Tableau des valeurs de fractionnement isotopique à l'équilibre α du ^{13}C entre le dioxyde de carbone (CO_2), la calcite ($CaCO_3$), le graphite (C) et le méthane (CH_4), d'après Bottinga (1969).

$10^3 * ln(\alpha_{CaCO_3-Gr})$ représente le fractionnement entre la calcite et le graphite tel que :

$$\alpha_{CaCO_3-Gr} = \frac{\left({}^{13}C/{}^{12}C\right)_{CaCO_3}}{\left({}^{13}C/{}^{12}C\right)_{Gr}}$$

$10^3 * ln(\alpha_{CO_2-Gr})$ représente le fractionnement entre le CO_2 et le graphite tel que :

$$\alpha_{CO_2-Gr} = \frac{\left({}^{13}C/{}^{12}C\right)_{CO_2}}{\left({}^{13}C/{}^{12}C\right)_{Gr}}$$

$10^3 * ln(\alpha_{CO_2-CaCO_3})$ représente le fractionnement entre le CO_2 et la calcite (utile pour suivre comment la composition isotopique du CO_2 évolue) tel que :

$$\alpha_{CO_2-CaCO_3} = \frac{\left({}^{13}C/{}^{12}C\right)_{CO_2}}{\left({}^{13}C/{}^{12}C\right)_{CaCO_3}}$$

Temp.(°C)	**$10^3 ln(\alpha)_{CO_2\text{-}CaCO_3}$**	**$10^3 ln(\alpha)_{CO_2\text{-}C$**
500	3.89	*ND*
600	3.65	*ND*
700	3.54	7.73
800	3.16	7.17
900	2.97	*ND*
1000	2.61	5.71
1200	2.2	5.17

*Annexe 11: Table des valeurs de fractionnement isotopique à l'équilibre du ^{13}C entre le dioxyde de carbone (CO_2), la calcite ($CaCO_3$) et le graphite (C) calculées pour 1000*ln(α), d'après Scheele et Hoefs (1991).*

Résumé

Les gisements d'uranium de type discordance sont des gisements formés au Proterozoïque dans différentes provinces mondiales, dont le Bassin de l'Athabasca situé au Canada (Saskatchewan). Ces gisements hydrothermaux, caractérisés par les plus fortes teneurs en uranium connues sur Terre, se forment à la discordance entre un bassin et un socle cristallin traversé par des zones de cisaillement riches en graphite et pyrite. Le carbone (C) et le soufre (S) sont des éléments ubiquistes dans l'environnement de ces gisements et y sont présents sous différentes formes (minéraux, gaz) au sein du socle et du bassin, démontrant une mobilité de ces éléments depuis ces zones de cisaillement. Ces deux éléments sont considérés comme des acteurs clés dans la formation de ces gisements, sans qu'un consensus ait pu jusqu'ici être atteint quant à leur(s) rôle(s) respectif(s) dans les mécanismes aboutissant à ces gisements exceptionnels. Dans ce contexte, cette thèse est consacrée à l'étude de la mobilité du C et du S au cours du temps dans le système métallogénique considéré via l'étude des différents porteurs minéraux et gazeux de C et S, depuis les premiers enrichissements en C et S dans les zones de cisaillement liées à l'orogène Trans-Hudsonnien (ca. 1,85-1,75 Ga) et jusqu'à la formation après le dépôt du bassin des minéralisations primaires d'uranium (1,6-1,3 Ga) et des phases hydrothermales contemporaines porteuses de C et S.

Mots-clés : Uranium, Athabasca, Carbone, Soufre, Isotopie

Abstract

Unconformity-related uranium deposits are Proterozoic deposits formed in various provinces around the world, including the Athabasca Basin in Canada (Saskatchewan). These hydrothermal deposits, characterized by the highest uranium grades recorded on Earth, form at the unconformity between the basin and its crystalline basement, in spatial association with graphite- and pyrite-rich basement shear zones. Carbon (C) and sulfur (S) are ubiquitous elements in the environment of these deposits and are present in various forms (minerals, gases) within the basement and basin, reflecting their mobility from these shear zones. Both elements are considered key players in the formation of these deposits, although no consensus has yet been reached regarding their respective role(s) in the mechanisms leading to such exceptional deposits. In this context, this thesis is dedicated to the study of C and S mobility over time in the metallogenic system under consideration via the study of the various mineral and gaseous C and S carriers, from the first C and S enrichments in the shear zones associated with the Trans-Hudsonnian orogen (ca. 1.85-1.75 Ga) to the post-basin emplacement of primary uranium mineralization (1.6-1.3 Ga) and contemporary C and S-bearing hydrothermal phases.

Keywords: Uranium, Athabasca, Carbon, Sulfur, Isotopy