

Rayons X et haute pression: un outil pour explorer l'intérieur de la Terre

Jean-Philippe Perrillat - Laboratoire de Géologie de Lyon, UMR CNRS 5276
jean-philippe.perrillat@univ-lyon1.fr

Résumé

Comment notre planète s'est-elle formée ? Quelle est sa composition chimique ? Quels sont les minéraux et les roches de l'intérieur de la Terre ? Quelle est l'origine des volcans et des séismes ? Pour essayer de répondre à ces interrogations les minéralogistes ont développé une panoplie de dispositifs expérimentaux : presses multi-enclumes, cellules à enclumes de diamant, chauffage laser... qui permettent de recréer au laboratoire les conditions de pression et température des profondeurs du globe, jusqu'à 3,6 millions d'atmosphères et 6000 degrés. En les associant aux rayons X produits sur les sources synchrotrons, il est alors possible d'observer « in situ » le comportement des minéraux sous ces conditions extrêmes. La diffraction de rayons X, par exemple, est utilisée pour l'étude de transitions et de diagrammes de phases, l'affinement de structures cristallines et de liquides magmatiques, ou encore l'établissement d'équations d'état PVT. Ces applications seront illustrées au travers de l'exemple de l'olivine, minéral majeur du manteau terrestre, dont les transitions de phases à haute pression ont permis de mieux comprendre la structure interne du globe. Enfin, nous verrons que les développements technologiques récents, tels que la diffraction X résolue en temps et l'imagerie 3D par tomographie, ouvrent de nouveaux horizons pour comprendre l'évolution et la dynamique de notre planète.

1. Minéralogie expérimentale et structure interne du globe

L'analyse des temps de trajet des ondes sismiques entre le foyer d'un séisme et les réseaux de sismomètres mondiaux permet d'obtenir la carte tridimensionnelle des vitesses des ondes acoustiques dans le globe. Ces données, associées aux caractéristiques astronomiques de la planète (masse, moments d'inertie, potentiel gravitationnel) et à l'étude de ses modes propres de vibration excités lors de grands séismes, permettent en outre d'obtenir précisément la pression et la densité moyenne à une profondeur donnée (**Figure 1**). On constate que 99% de la masse du globe se trouve à des pressions excédant 1 GPa, 90% au-dessus de 10 GPa, et le centre de la planète à 364 GPa (soit 3,6 millions d'atmosphères). La Terre se comporte donc, pour les matériaux qui la constituent, comme un immense appareil de haute pression, laquelle est d'ailleurs bien connue en tout point. Par contre le profil de température avec la profondeur (géotherme) et la composition chimique de planète sont sujets à incertitudes. Cette dernière n'est contrainte que par les rares échantillons provenant de l'intérieur du globe par volcanisme (péridotites, inclusions minérales des diamants) et l'étude des météorites. Le rôle de la minéralogie expérimentale est donc d'apporter des mesures précises des constantes élastiques et de densité des matériaux géologiques, d'explorer leurs transitions et diagramme de phase en fonction de la pression, de la température, et de la composition chimique afin de construire un modèle cohérent de l'intérieur de la Terre.

Nous ne ferons pas ici une revue exhaustive des techniques de hautes pressions et température qui font l'objet de recueils de conférences du Réseau de Technologies des

Hautes Pressions du CNRS (disponibles en ligne www.reseauhpc.org), et de nombreux articles de revues (e.g. Bassett, 2009 ; Liebermann, 2011). Nous détaillerons au travers de l'exemple de l'olivine $(\text{Mg,Fe})_2\text{SiO}_4$, minéral majeur du manteau terrestre, comment notre connaissance des profondeurs du globe a évolué (et évolue encore !) avec le développement des techniques expérimentales et analytiques ; en particulier avec le couplage des instruments de hautes pressions avec le rayonnement X synchrotron.

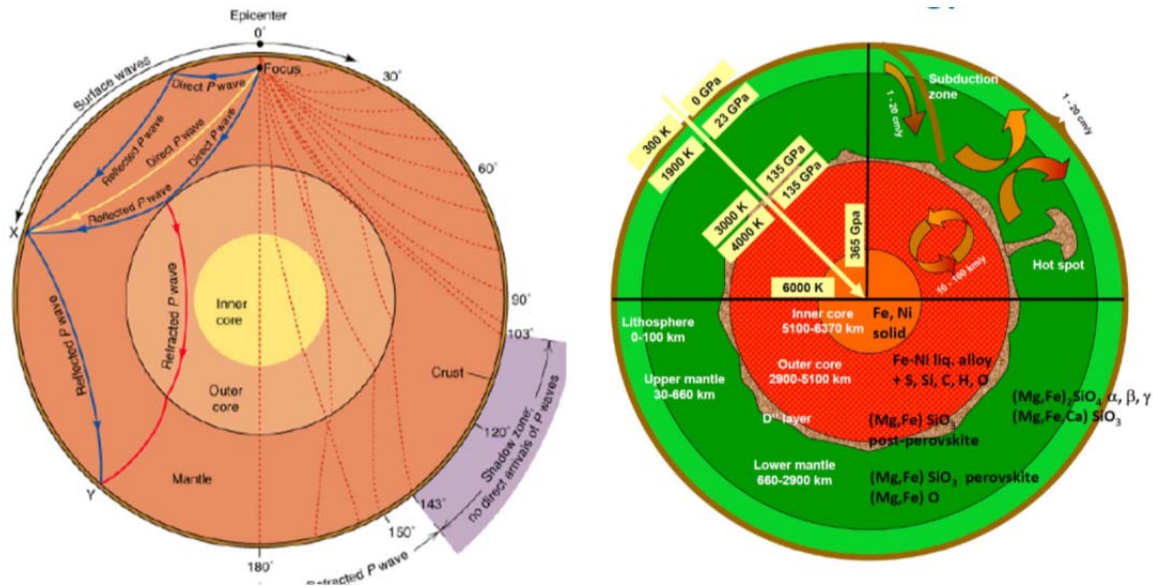


Figure 1 – Construction d'un modèle minéralogique du globe terrestre à partir des temps de propagations des ondes sismiques.

2. Petit historique de l'évolution des techniques haute-pression

L'olivine, silicate ferro-magnésien de formule $(\text{Mg,Fe})_2\text{SiO}_4$, est le minéral le plus abondant des péridotites, ces roches du manteau terrestre que l'on retrouve de façon exceptionnelle à la surface terrestre. Il est donc naturel que les minéralogistes se soient intéressés de longue date à son comportement sous pression et température pour comprendre l'intérieur de la Terre. Sans faire une liste exhaustive, sont cités ci-dessous les travaux de quelques « pionniers » qui ont joué un rôle majeur dans le développement des dispositifs hautes pressions-températures (HP-HT) (**Figure 2**) et posés les « jalons » de la minéralogie du manteau terrestre.

- P.W. Bridgman (1882-1961), prix Nobel de Physique en 1946, a donné un véritable essor aux techniques de hautes pressions grâce à de nombreuses avancées technologiques. Il conçoit un système d'enclumes métalliques opposées à « joint non-soutenu » dites enclumes de Bridgman, et développe les dispositifs « piston-cylindre ». Ces innovations lui permettent d'explorer les transitions de phase et les variations de volume de nombreux composés avec la pression, dont les silicates (Bridgman, 1949). En 2014, le nom de « bridgmanite » est donné en son honneur à la phase MgSiO_3 de structure pérovskite qui compose le manteau inférieur.

- F. Birch (1903-1992), professeur à Harvard dans le laboratoire de Bridgman, établit une relation linéaire entre la vitesse des ondes P et la masse volumique d'un corps. Par

comparaison aux données sismologiques, il conclue que le manteau terrestre est entièrement silicaté alors que le noyau est composé d'un alliage de fer (Birch,1952).

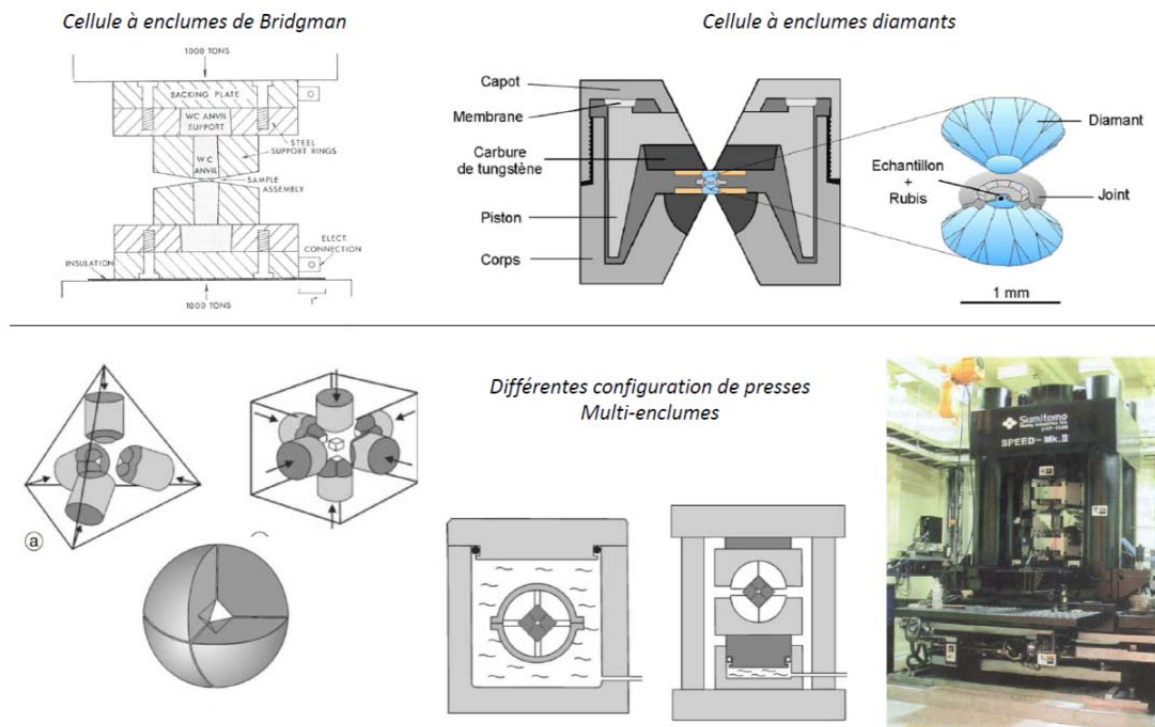


Figure 2 – Différents dispositifs de haute-pression : cellules à enclumes de Bridgman, cellule à enclumes diamant et presses multi-enclumes.

- A. Ringwood (1930-1996) et T. Wadsley (1918-1969) de l'Australian National University explorent les transformations de l'olivine sur des composés analogues, dont les germanates Mg_2GeO_4 , qui présentent une phase de haute pression de structure spinelle. Ils sont les premiers à synthétiser les phases $(Mg,Fe)_2SiO_4$ de structure « spinelle-modifiée » et « spinelle » qui portent aujourd'hui leurs noms (e.g. Ringwood, 1975). Ils relient ces transitions de phase de l'olivine aux discontinuités sismiques observées à 410 et 520 km de profondeur.
- Initialement développés par T. Hall à Brigham Young University (USA) en 1958, les dispositifs multi-enclumes vont connaître un essor important dans les années 60-70 au Japon et en Russie, sous l'influence respective de S. Akimoto et S. Stishov (et de leurs étudiants). Ces dispositifs (à quatre, six ou huit enclumes) génèrent alors des pressions jusqu'à ~ 30-40 GPa sur des volumes de plusieurs mm^3 et vont jouer un rôle majeur dans la construction des diagrammes de phase du manteau supérieur et inférieur.
- La première cellule à enclumes de diamant apparaît en 1959 (van Valkenburg *et al.*, 1959) au National Bureau of Standards (USA). Elle sera adoptée et développée par de nombreux laboratoires pour atteindre des pressions toujours plus élevées, 120 GPa en 1976 (Mao *et al.*, 1978). Liu L.G. (1975) utilise une cellule à enclumes de diamant couplée au chauffage laser (Basset & Ming, 1972) pour montrer que le composé $MgSiO_3$ adopte une structure de pérovskite aux conditions du manteau inférieur.

- La communauté française a joué un rôle de premier plan dans le développement des techniques haute-pression. On peut citer le développement de la presse Paris-Edimbourg (presse gros volume à enclumes opposées) par JM. Besson au Département des Hautes Pressions (UPMC, Paris). En géophysique, JP Poirier et ses collègues (IPGP, Paris) observent en microscopie électronique des échantillons d'olivine transformés en cellule enclumes diamant – chauffage laser, et proposent un mécanisme martensitique pour la transformation olivine-ringwoodite (Lacam et al.,1980).

L'utilisation d'enclumes et de milieux de confinements opaques pour la génération des hautes pressions est une limitation majeure à l'observation « in situ » des matériaux. De fait, dans la majorité des travaux présentés ci-dessus, les échantillons sont caractérisés après trempes par microscopie optique et électronique, ou diffraction de rayons X. Cette approche post-mortem ne permet pas, en particulier, l'observation de phases non-métastables à la décompression, l'étude de transitions displacives, ou la détermination précise des propriétés élastiques des minéraux à HP-HT. A partir des années 70-80 l'avènement des sources synchrotrons et neutrons va permettre de lever ces limitations.

3. Les sources synchrotrons et la révolution « in situ »

Le rayonnement synchrotron est produit lorsque des particules chargées (électrons ou positrons) relativistes sont soumises à une accélération centripète. Cette lumière, émise dans la gamme des rayons X ($\lambda = 10^{-8}$ à 10^{-11} m, $E=10-130$ keV), possède de nombreuses qualités : brillance, polarisation, accordabilité, faible divergence et structure temporelle. Ces trente dernières années ont conduit à la conception d'anneaux de stockage spécifiques à l'utilisation de ce rayonnement, citons les installations SOLEIL (Saclay) et l'ESRF (Grenoble). La brillance de ce type de source (\approx flux de photons) est de l'ordre de $10^{20}-10^{22}$ photons/s/mm²/mrad²/0,1%bw, soit 10^{12} fois plus que la plus performant des diffractomètres de laboratoire à anodes tournantes. Ainsi ces sources présentent une forte intensité, un spectre blanc d'émission, une excellente collimation dans le plan vertical, un faisceau polarisé et pulsé, qui rendent possible une large gamme d'expériences et de techniques analytiques : diffraction, diffusion inélastique, spectroscopie d'absorption, fluorescence, etc... Dans le domaine des hautes pressions, l'avantage majeur est la possibilité de générer un faisceau X intense de quelques micromètres de diamètre, collimaté ou focalisé, particulièrement bien adapté pour l'étude d'échantillons de taille réduite (mm à μ m) dans des dispositifs de confinements type cellules enclumes diamants ou presse multi-enclumes (e.g. Duffy, 2005).

▪ La transition olivine-spinelle et les discontinuités sismiques à 410 et 670 km

L'essentiel des travaux de diffraction X sous pression se fait sur poudres (i) soit en dispersion d'énergie en utilisant un faisceau blanc ; c'est généralement le cas dans les dispositifs multi-enclumes ou l'angle d'accès des rayons X est limité par les enclumes métalliques ; (ii) soit en dispersion angulaire avec un faisceau monochromatique et un détecteur 2D. Cette dernière technique très utilisée en cellule à enclumes de diamant à l'avantage de permettre un affinement des structures cristallines par la méthode de Rietveld.

La position et la pente de Clapeyron des transformations olivine > wadsleyite > ringwoodite et ringwoodite > perovskite + periclase ont ainsi été déterminées avec précision grâce au progrès de la métrologie « in situ » des pressions et températures (i.e. utilisation du signal de diffraction de calibrants internes, ex : poudre NaCl, KCl, Au, Pt..., dont l'équation d'état PVT

est connue précisément). D'un point de vue géophysique, il est dès lors possible de relier la profondeur des discontinuités sismiques à 410km et 670 km à la température du manteau terrestre. (**Figure 3**)

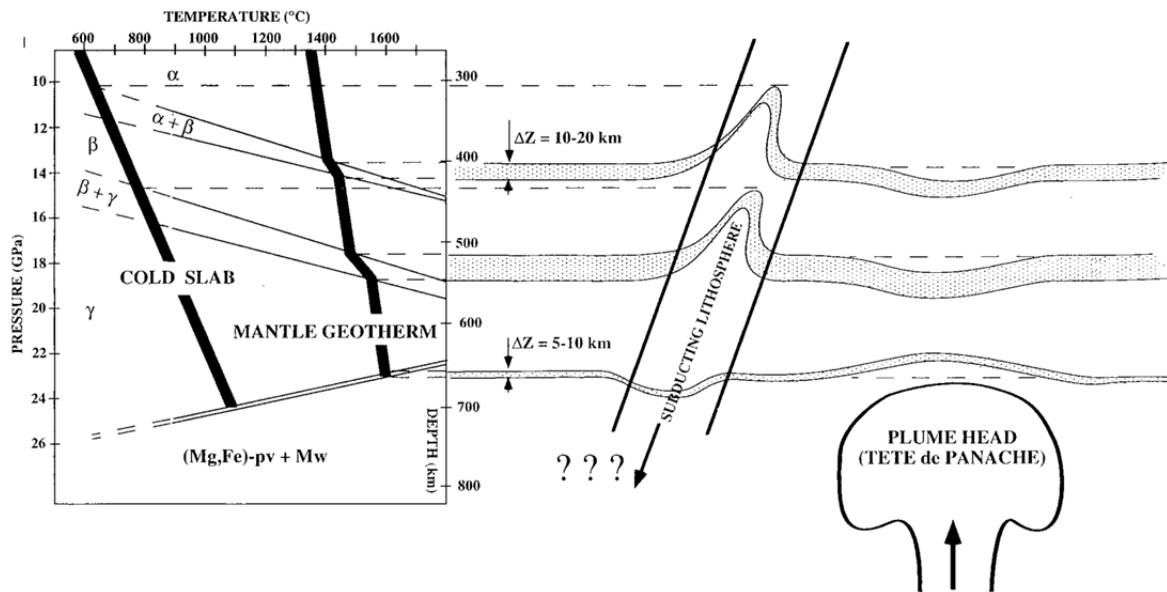


Figure 3 – Diagramme de phase de l’olivine et discontinuités sismiques du manteau terrestre (d’après Gillet, 1995).

▪ **Propriétés thermo-élastiques de l’olivine et de ses polymorphes : vers un modèle minéralogique du manteau terrestre**

L’interprétation des vitesses sismiques V_p et V_s à l’intérieur du globe nécessite la connaissance des modules d’incompressibilité (K) et de cisaillement (G) des phases minérales et leurs évolutions avec les conditions P-T. Ces propriétés thermoélastiques sont déterminées par diffraction X « in situ » en suivant l’évolution du volume de maille de l’espèce minérale et un formalisme d’équation d’état PVT (i.e. Vinet, Birch-Murnaghan, Mie-Grüneisen). Ces équations d’état PVT peuvent aujourd’hui être mesurées jusqu’aux conditions du noyau terrestre grâce au couplage de la cellule enclumes diamants au chauffage laser (YAG, CO_2) (Andrault & Fiquet, 2001). Ce type de chauffage génère de forts gradients de température latéraux et axiaux. L’utilisation du rayonnement synchrotron est alors cruciale puisque la taille du faisceau X sur l’échantillon doit être beaucoup plus petite que celle de la zone de chauffage du laser. De plus la mesure doit être suffisamment rapide puisqu’il est impossible de stabiliser une température de plusieurs milliers de degrés pendant plusieurs heures.

Les équations d’état de l’olivine, de ses polymorphes wadsleyite et ringwoodite, et de la perovskite $MgSiO_3$ sont maintenant relativement bien connues, et servent de base à la construction de modèles minéralogiques du manteau terrestre (**Figure 4**).

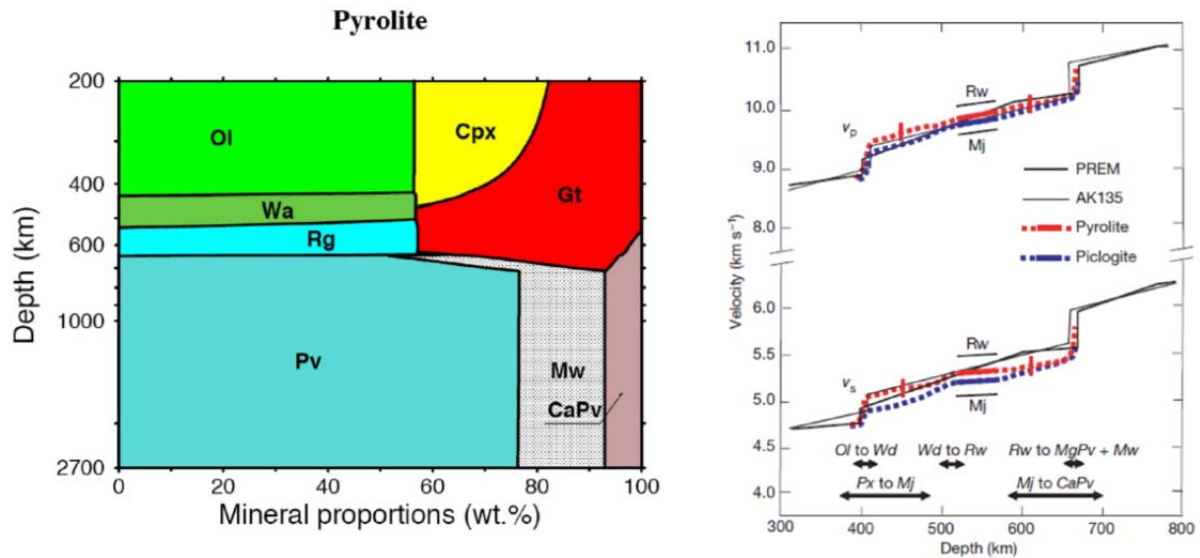


Figure 4 – Modèle minéralogique radial du manteau terrestre (Matas, 1999), et comparaison du profil sismique calculé aux modèles sismiques PREM et AK135 (Irifune et al., 2008)

▪ **La transition post-pérovskite et la nature de la limite manteau-noyau**

Au printemps 2004, une équipe de minéralogistes japonais (Murakami et al, 2004) publie la découverte d’une nouvelle forme du composé $MgSiO_3$ aux conditions du manteau inférieur. Le signal de diffraction de la pérovskite $MgSiO_3$ montre en effet des pics additionnels lorsque celle-ci est soumise à des conditions supérieures à 120 GPa et 2500 K. L’indexation des spectres DRX conduit à la définition d’une nouvelle phase, la « post-pérovskite », de structure légèrement plus dense et anisotrope que la pérovskite.

Cette transition de phase éclaire d’un jour nouveau la zone D’’ située entre 2600 et 2900 km de profondeur à la frontière entre le manteau et le noyau, et caractérisée par de forts contrastes des vitesses sismiques (de 2 à 3%). Cette nouvelle transition expliquerait non seulement la discontinuité sismique à 2600-2700 km, mais également le caractère anisotrope de cette zone par la structure lamellaire de la « post-pérovskite » (**Figure 5**).

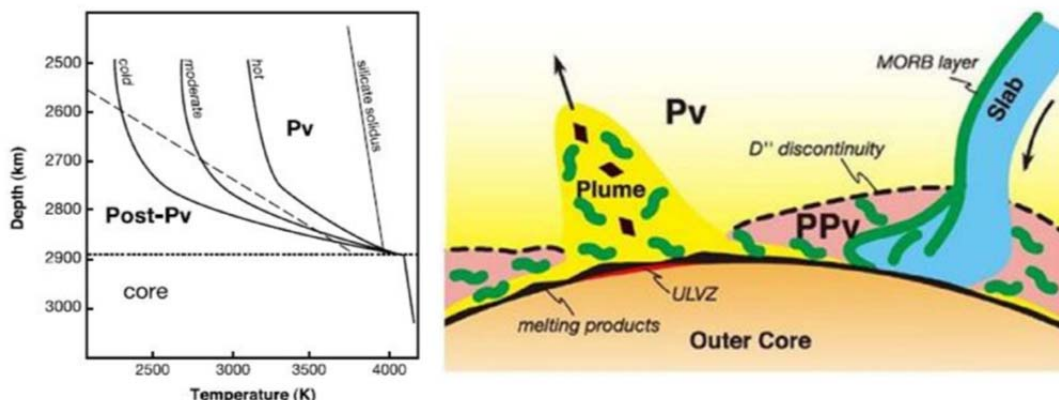


Figure 5 – Relation entre la pente de Clapeyron de la transition Pérovskite – Post-Pérovskite et différents géothermes. Implications sur la topographie de la couche D’’. (Hirose et al., 2005).

▪ Fusion des silicates dans le manteau inférieur : un océan de magma profond?

La mesure de courbes de fusion de silicates aux conditions du manteau inférieur représente un véritable défi technologique compte tenu des difficultés de confinement, de la réactivité chimique, et de la dynamique (i.e. convection, ségrégation) de ces liquides à HP-HT. De plus le passage du solidus/liquidus doit être accompagné d'une mesure simultanée et précise de la température. Là encore des travaux pionniers (Fiquet *et al.*, 2010 ; Andraut *et al.*, 2011) ont été réalisés dans les cinq dernières années grâce à la résolution temporelle qu'autorise le rayonnement synchrotron. La méthode consiste à faire suivre à l'échantillon en cellule enclumes diamants une rampe rapide de chauffage en contrôlant la puissance du laser, et à enregistrer à chaque palier de température un spectre DRX. La fusion est caractérisée par la disparition des pics de diffraction, et leur remplacement par un signal diffus dont l'étude peut renseigner sur la structure locale du liquide et sa densité (Morard *et al.*, 2014).

Les courbes de fusion de péridotites croisent potentiellement le géotherme à la base du manteau inférieur, compatible avec l'existence d'un océan de magma profond à la frontière noyau-manteau (Figure 6).

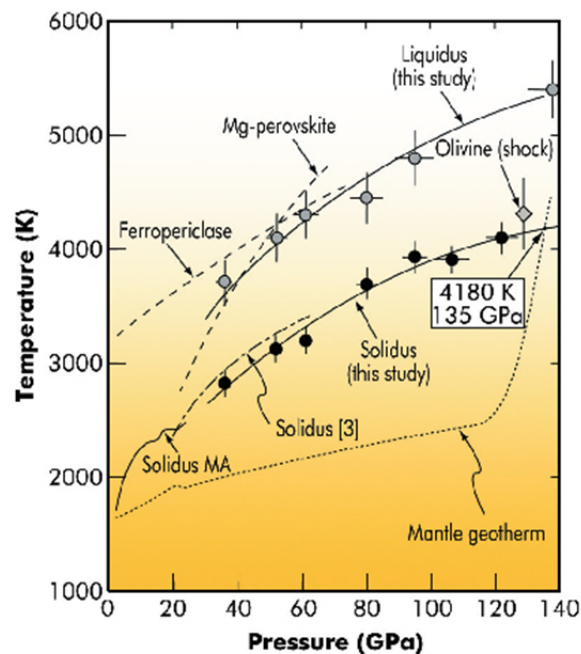


Figure 6 – Courbes de solidus et liquidus de la péridotite déterminées aux conditions du manteau inférieur par chauffage laser en cellule enclumes diamants (Fiquet *et al.*, 2010)

4. Développements récents et nouveaux horizons

Les sources de rayonnement synchrotron ont entamé ces dernières années d'ambitieux programmes de développement afin de pousser les limites des résolutions spatiales et temporelles de la lumière X. L'obtention de faisceaux nanométriques ouvre la voie à la caractérisation physico-chimique des échantillons à une échelle encore inexplorée. Dans le domaine des hautes pressions, ces faisceaux nanométriques vont bénéficier aux expériences de ultra-haute pression $P > 200$ GPa où l'échantillon ne mesure que quelques microns. De même la diminution des temps d'acquisitions des spectres/images X autorise l'étude des cinétiques de réaction, ou la caractérisation spatiale 2D-3D des échantillons par l'enregistrement de plusieurs milliers de spectres/images. Ces avancées s'accompagnent du

développement de nouveaux appareillages haute-pression pour la déformation, la tomographie, ou la mesure de propriétés de transport (ex : viscosité des liquides).

▪ **Cinétique de la réaction olivine-ringwoodite et origine de la sismicité profonde**

Alors que la transition de l’olivine vers la wadsleyite puis la ringwoodite s’effectue respectivement à 410 et 660 km de profondeur dans le manteau terrestre, au niveau des zones de subduction froides ces transitions peuvent être retardées et s’effectuer à plus grande profondeur. Il a été proposé que la déstabilisation rapide de cette olivine métastable soit responsable des séismes profonds observés entre 550-700 km de profondeur. La cinétique de cette réaction a été suivie par diffraction de rayons X résolue en temps. La succession des spectres de diffraction révèle non seulement l’existence d’une phase intermédiaire métastable, mais permet également de suivre l’avancement de la réaction par un affinement Rietveld des proportions des différentes phases (**Figure 7**). Ces données sont ensuite analysées par un modèle cinétique d’Avrami pour déduire une loi cinétique de la transformation (estimation des vitesses de nucléation et de croissance des grains). Appliquée aux conditions PT des zones de subduction, cette cinétique confirme la persistance d’olivine métastable jusqu’à 700 km de profondeur.

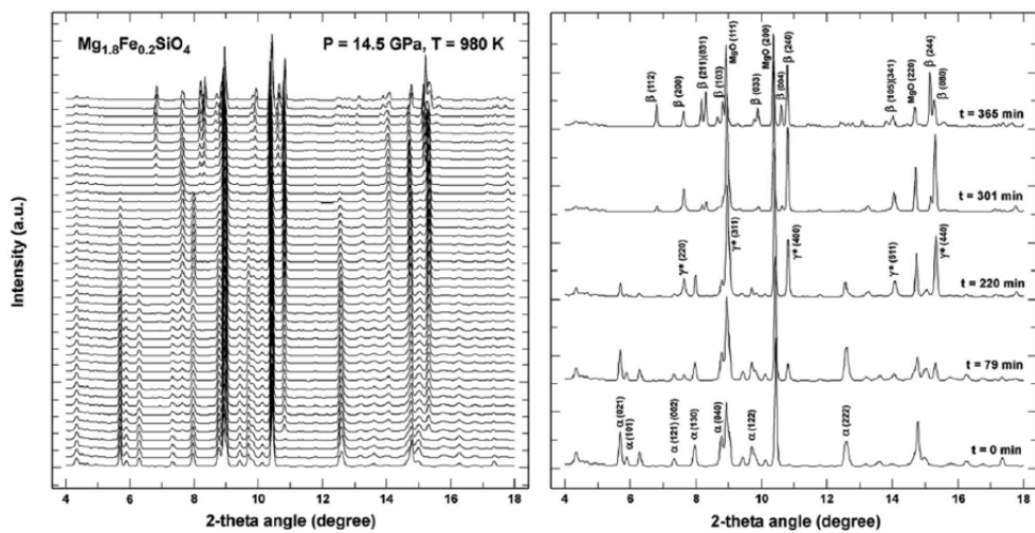
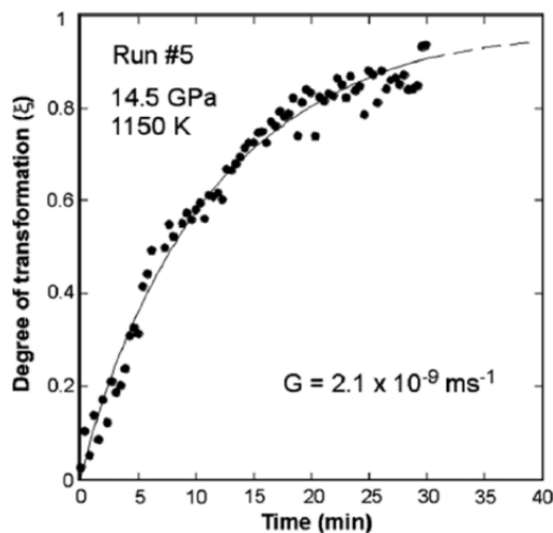


Figure 7 – Succession de spectres DRX au travers de la transition olivine-wadsleyite. Le diagramme d’avancement de réaction correspondant est ajusté à une loi cinétique de Cahn-Avrami afin de déterminer la vitesse de croissance de grain (Perrillat *et al.*, 2013).



▪ Anélasticité de l'olivine et atténuation des ondes sismiques

La Terre n'est pas purement élastique et l'atténuation des ondes sismiques dans le manteau terrestre prouve que la relaxation visqueuse opère déjà aux fréquences sismiques (0,001 à 1 Hz). Cette atténuation est associée à une perte d'énergie, et résulte de processus de relaxation à l'échelle microscopique (migration des défauts ponctuels, des dislocations et des frontières de grains, etc...) ou de la présence de liquides (fluides ou magmas). De fait l'interprétation des profils sismiques et des images tomographiques doit tenir compte du comportement viscoélastique des minéraux à faibles taux de déformation et basses fréquences. La méthode expérimentale la plus utilisée pour mesurer les propriétés anélastiques des matériaux est celle dite d'oscillations forcées, dans laquelle l'échantillon et un standard élastique montés en série sont soumis à une torsion sinusoïdale à basse fréquence. La mesure des amplitudes relatives et des différences de phases entre la déformation de l'échantillon et du standard permettent de déterminer le module de cisaillement (G) et la dissipation d'énergie (Q^{-1}).

Un module de torsion en presse Paris-Edimbourg (Rotational and Tomography Paris-Edinburgh Cell) a été développé pour la réalisation de ces expériences aux conditions du manteau terrestre. Le principal challenge est alors de mesurer de faibles contraintes et déformations à haute résolution temporelle, alors que l'échantillon est contenu dans l'assemblage haute-pression. Ces difficultés techniques sont levées par l'utilisation du rayonnement synchrotron : la déformation est mesurée en temps réel par imagerie X, alors que la diffraction permet l'estimation de la contrainte, et des conditions P-T. La **Figure 8** présente le dispositif expérimental et les premières mesures d'oscillations forcées réalisées sur l'olivine aux conditions du manteau supérieur et fréquences sismiques.

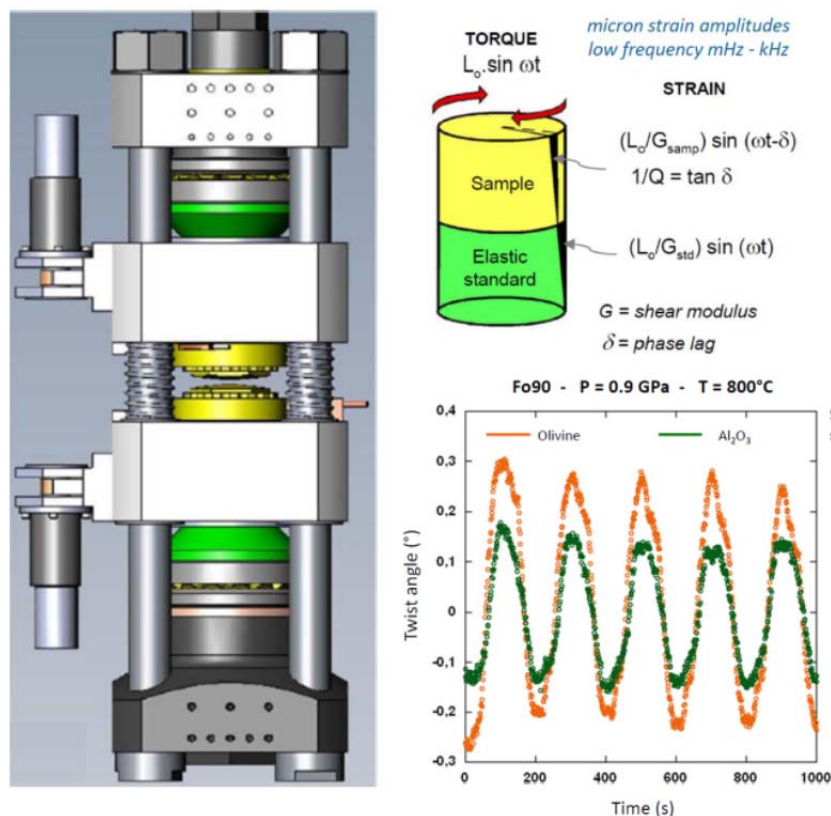


Figure 8 – Schéma de la presse RoToPEc, et principe des mesures d'atténuation par oscillations forcées sur l'olivine (Perrillat *et al.*)

▪ La ségrégation métal-silicate observée en tomographie X : analogue de la différenciation planétaire

La Terre s'est formée il y a ~ 4,5 milliards d'année par l'accrétion de planétésimaux suivie d'un intense bombardement météoritique. Le passage de cette Terre primitive à la structure actuelle du globe en enveloppes concentriques (i.e. atmosphère, croûte et manteau silicaté, noyau métallique) nécessite une différenciation et une ségrégation des différents éléments chimiques. En particulier, la formation du noyau a dû s'accompagner de la migration d'un alliage de fer liquide au travers d'une matrice silicatée. La modélisation physique de ce processus nécessite la connaissance de nombreux paramètres tels que la viscosité des liquides, leurs tensions de surface, mouillabilité... et leurs évolutions en fonction de la pression, température, contrainte. La tomographie X en presse RoToPEc (**Figure 8**) permet aujourd'hui de contraindre certains de ces paramètres. L'expérience consiste à mesurer une série d'images radiographiques X sur un angle de 180° à intervalles de 0,1-0,5° grâce à la rotation simultanée des deux enclumes supportant l'assemblage expérimental. La répartition 3D des phases est alors obtenue par un algorithme de reconstruction tomographique, grâce au contraste d'absorption X entre silicate et métal (**Figure 9**).

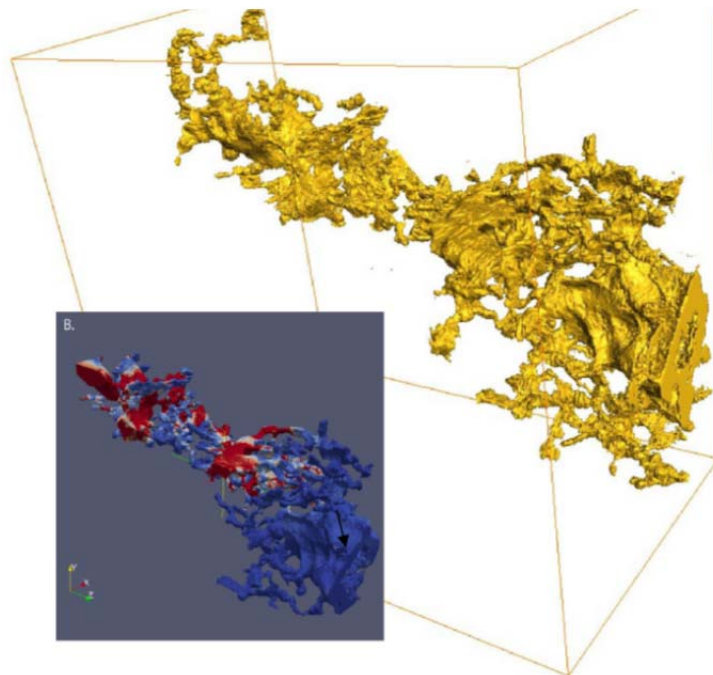


Figure 9 – Répartition 3D d'un liquide FeS au contact d'une matrice d'olivine déformée en cisaillement en presse RoToPEc (Berg et al.).

Références

- Andrault et al. (2011) Solidus and liquidus profiles of chondritic mantle: Implication for melting of the Earth across its history, *Earth Planet. Sci Lett*, 304, 251-259.
- Andrault, D. & Fiquet, G. (2001) Synchrotron radiation and laser heating in a diamond anvil-cell, *Rev. Sci. Instr.*, 72, 2.
- Bassett, W. (2009) Diamond anvil cell, 50th birthday, *High Pres. Res.*, 29,2, 163-186.

Bassett, W & Ming LC. (1972) Disproportionation of Fe_2SiO_4 to $2\text{FeO} + \text{SiO}_2$ at pressures up to 250 kbar and temperature up to 3000°C , *Phys. Earth Planet. Int.*, 6, 154-60.

Birch, F. (1952) Elasticity and the constitution of the Earth's Interior, *J. Geophys. Res.*, 57, 227-286.

Bridgman, PW (1949) *The Physics of High Pressure*, Ed. Bell & Sons, Londres

Duffy, T.S. (2005) Synchrotron facilities and the study of the Earth's interior, *IOP Rep. Prog. Phys.*, 68,1811-1865.

Fiquet, G. et al. (2010) Melting of peridotite to 140 GPa, *Science*, 329, 1516-1518.

Liebermann, RC (2011) Multi-anvil, high-pressure apparatus : a half-century of development and progress, *High Press. Res.*, 31, 4, 493-532.

Lacam, A., Madon, M., Poirier, JP. (1980) Olivine glass and spinel formed in a laser heated diamond anvil-cell : an investigation by transmission electron microscopy, *Nature*, 288, 155-157.

Liu L.G. (1976) Post-oxide phases of olivine and pyroxene and mineralogy of the mantle, *Nature*, 258, 510-512.

Mao, H. K., P. M. Bell, J. W. Shaner, and D. J. Steinberg (1978) Specific volume measurements of Cu, Mo, Pd, and Ag and calibration of the ruby R1 fluorescence pressure gauge from 0.06 to 1 Mbar, *J. Appl. Phys.*, 49, 3276–3283, 1978.

Murakami et al. (2004) Post-perovskite transition in MgSiO_3 , *Science*, 304, 855-857.

Morard et al. (2014) Properties of iron alloys under Earth's core conditions, *Comptes rendus Géosciences*, 346, 130-139.

Perrillat et al. (2013) Mechanism and kinetics of the a–b transition in San Carlos olivine $\text{Mg}_{1.8}\text{Fe}_{0.2}\text{SiO}_4$, *J. Geophys. Res : Solid Earth*, 118, 1–10, doi:10.1002/jgrb.50061.

Ringwood, AE (1975) *Composition and Petrology of the Earth's mantle*, Ed. McGraw-Hill, New-York.