

50376  
1992  
10

62200

50376  
1992  
190

N° d'ordre : 950

présentée à

L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE

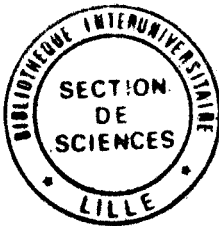
pour l'obtention du grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE**

**Spécialité : Science des Matériaux**

par

**Olivier GOLTRANT**



**ETUDE PAR MICROSCOPIE  
ELECTRONIQUE EN TRANSMISSION DES  
DEFAUTS INDUITS PAR ONDE DE CHOC  
DANS LE QUARTZ**

**Soutenu le 03 Juillet 1992 devant la Commission d'Examen**

Membres du jury :	M.	J.L. FARVACQUE.	Président
	Mme	M. BOUDEULLE	
	M.	C. WILLAIME	Rapporteurs
	M.	J.C. DOUKHAN	Directeur de Thèse
	M.	H. CHAMLEY	
	M.	V. COURTILLOT	
	M.	W. MÜLLER	Examineurs

## REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué à l'Université des Sciences et Technologies de Lille dans le laboratoire de Structure et Propriétés de l'Etat Solide (CNRS URA 234).

Monsieur le Professeur J.C. DOUKHAN m'a guidé lors de cette étude et ses nombreux conseils m'ont aidé tout au long de ce travail. J'ai beaucoup appris à son contact et je lui en suis infiniment reconnaissant.

Monsieur le Professeur J.L. FARVACQUE, directeur du laboratoire, a accepté de présider le jury de cette thèse. Je le remercie vivement pour l'intérêt qu'il porte ainsi à mon travail.

Madame le Professeur M. BOUDEULLE (Laboratoire de Minéralogie-Cristallographie, Lyon) et Monsieur le Professeur C. WILLAIME (Centre Armoricaïn d'Etude Structurale des Socles, Rennes) ont bien voulu juger ce travail. Je tiens à leur exprimer ici toute ma gratitude pour cet examen attentif.

Messieurs les professeurs H. CHAMLEY (Laboratoire de Dynamique Sédimentaire et Structurale, Lille), V. COURTILLOT (Laboratoire de Paléomagnétisme et Géodynamique, Institut de Physique du Globe, Paris) et W. MÜLLER (Institut für Mineralogie, Darmstadt) ont accepté d'examiner ce travail. Qu'ils soient ici remerciés pour l'intérêt qu'ils m'ont ainsi témoigné.

Enfin, il est évident que ce travail n'a rien de solitaire et s'inscrit dans le cadre du laboratoire. Je tiens ici à remercier vivement P. CORDIER pour les nombreuses discussions que nous avons eues, ainsi que pour son amitié. De nombreuses autres personnes m'ont également aidé tout au long de ce travail. Que J. INGRIN, E. VAN CAPPELLEN, H. LEROUX, P. JOREAU, J.M. GLOAGUEN, C. BOUCHERON, P. FRANCOIS, Y. ODOU, R. SEGUELA, J.L. POTDEVIN soient ici remerciés chaleureusement pour l'aide et l'amitié qu'ils m'ont témoigné. Je n'oublie pas les autres, mais la liste serait trop longue pour être exhaustive. Merci à tous.

Enfin, je ne peux oublier celle qui m'a soutenu tous les jours durant ces trois ans. Il m'est impossible d'exprimer sur ce papier en quelques mots tout ce que je voudrais dire. Modestement, je lui dédie ce travail...

*A BABETH*

# SOMMAIRE

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>I: REVUE DES TRAVAUX ANTERIEURS. ONDES DE CHOC. LIMITE CRETACE/TERTIAIRE</u>	7
I-1 : Ondes de choc	9
I-2 : Etudes antérieures sur les quartz choqués	13
I-2-a : Etudes au microscope optique de quartz choqués naturellement	14
I-2-b : Observations par MET de quartz choqués naturellement	16
I-2-c : Investigations par MET de quartz choqués expérimentalement	19
I-3 : La limite Crétacé/Tertiaire	20
I-4 : Cadre de notre étude	23
<u>II: LE QUARTZ : CRISTALLOCHIMIE ET PROPRIETES MECANIQUES</u>	25
II-1 : Cristallographie	27
II-1-a : Structure cristalline et cristallographie	29
II-1-b : Réseau réciproque	31

I-2 :	Macles dans la structure du quartz	34
II-2-a :	Macle du Dauphiné	34
II-2-b :	Macle du Brésil	35
II-3 :	Polymorphes de haute pression	36
II-3-a :	Coésite	37
II-3-b :	Stishovite	38
II-3-c :	Amorphisation sous pression	38
II-4 :	Propriétés mécaniques du quartz	39
II-4-a :	Systèmes de glissement dans la structure du quartz	39
II-4-b :	Déformation plastique	43
II-4-c :	Déformation par maclage mécanique	45
II-4-d :	Restauration et recristallisation	45
 <u>III : TECHNIQUES EXPERIMENTALES</u>		47
III-1 :	Préparation des échantillons	49
III-1-a :	Enrobage des échantillons	49
III-1-b :	Polissage mécanique	51
III-1-c :	Amincissement final (ionique)	51
III-2 :	Conditions d'observation en MET	52
III-2-a :	Détermination de l'orientation d'une ligne de dislocation	52
III-2-b :	Indexation d'un plan de défaut	54
III-2-c :	Limitations	58
 <u>IV : OBSERVATIONS</u>		61
IV-1 :	Sites de La Malbaie et Slate Islands	63
IV-1-a :	Contexte géologique	63
IV-1-b :	Observations communes aux deux sites	66

IV-2 : Site de Ries Crater	81
IV-2-a : Contexte géologique	81
IV-2-b : Observations	82
IV-3 : Dome de Vredefort	97
IV-3-a : Contexte géologique	97
IV-3-b : Observations	98
IV-4 : Site de Raton Basin	107
IV-4-a : Contexte géologique	107
IV-4-b : Observations	107
IV-5 : La caldeira de Toba	125
IV-5-a : Contexte géologique	125
IV-5-b : Observations	125
IV-6 : Conclusion	131
<u>V : DISCUSSION ET INTERPRETATION</u>	133
V-1 : Les macles mécaniques	136
V-2 : Les lamelles de phase amorphe	139
V-2-a : Critère de Born	140
V-2-b : Calculs des modules de cisaillement	146
V-2-c : Formation des lamelles amorphes par l'onde de choc	159
V-2-d : Conclusion	163
V-3 : Interprétations: pseudo PDF et rôle de l'eau	163
V-3-a : Les "veines"	163
V-3-b : Influence de l'eau	164
V-3-c : Polymorphes de haute pression?	165

V-4 : Quelles informations sur la crise de la limite K/T?	166
V-5 : Conclusion	170
<u>CONCLUSION</u>	171
<u>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</u>	177

# **Introduction**





De nombreuses indications de catastrophes naturelles sont préservées dans les structures géologiques, démontrant l'aspect dynamique et quelquefois violent de l'évolution de la Terre. Parmi ces catastrophes, les impacts météoritiques revêtent une importance particulière de par leur nature. Le phénomène d'impact est important non seulement dans l'histoire de l'évolution de la Terre, mais aussi dans l'histoire de la formation du système solaire. On pense en effet que ce sont des chocs entre astéroïdes qui ont conduit à l'accrétion des planètes, les premiers âges de ces planètes ayant ainsi été marqués par un grand nombre d'impacts. Revenant à l'histoire de notre planète, on peut noter que nombre de scientifiques pensent que ce sont probablement des impacts météoritiques qui ont causé les extinctions fauniques massives qui ont eu lieu durant l'histoire de la Terre. Si l'existence de cratères d'impacts météoritiques sur la surface de la Lune est évidente, leur existence sur Terre l'est moins du fait de l'érosion ainsi que de la dynamique tectonique plus rapide à la surface de la Terre. Pourtant, de nombreuses structures géologiques terrestres sont attribuées à des impacts de météorites. Aujourd'hui, le nombre de telles structures d'impact bien caractérisées est estimé à 130 avec un diamètre allant jusque 200 kilomètres. L'une des plus célèbres et des plus récentes (environ 50000 ans), dénommée Meteor Crater, est située en Arizona.

Ces structures d'impact présentent des signes particuliers aussi bien à l'échelle macroscopique qu'à l'échelle microscopique. Parmi ces signes, McIntyre (1962) a découvert des grains de quartz présentant des contrastes très particuliers en microscopie optique dans les roches provenant du site d'impact de Clearwater Lake au Québec. Il a attribué ces contrastes à des défauts spécifiques qui seraient induits par le choc très violent d'une météorite. Par la suite, on a trouvé des marques de choc apparemment identiques dans des grains de quartz de nombreuses autres structures géologiques. En 1968, une conférence internationale organisée par French et Short (French et Short, 1968) faisait le point sur un grand nombre de ces structures dans lesquelles se retrouvent des grains de quartz choqués. A cette occasion, la communauté scientifique a alors reconnu l'importance de cet indice détectable facilement dans les grains de quartz choqués. Dès ce moment, les quartz choqués ont été associés à des impacts météoritiques et,

pour bon nombre d'auteurs, la présence de telles marques dans les grains de quartz constitue à elle seule la preuve d'un impact météoritique.

Ces marques de choc dans le quartz sont usuellement détectées au microscope optique. Elles apparaissent sous la forme de fines lignes de contraste. Etant donné la variété de dénominations attribuées à ces défauts, il a été proposé lors d'une conférence récente de les appeler "planar deformation features" (PDF). Ces PDF constituent l'un des indices de ce que l'on appelle le métamorphisme de choc qui est l'ensemble des processus induits par le passage d'une onde de choc dans une roche (fractures, changements de phase, mosaïcisme, ...). Certains sites où l'on trouve des grains de quartz présentant au microscope optique de tels PDF ont cependant une origine qui n'est pas encore complètement élucidée. C'est par exemple le cas du dome de Vredefort en Afrique du Sud ou de la structure de Manson en Iowa. D'autre part, Carter et al. (1986) ont trouvé des PDF dans des grains de quartz des roches de la caldeira de Toba où s'est produit une formidable explosion volcanique (volcan Toba sur l'île de Sumatra, il y a environ 75000 ans). Des grains de quartz choqués ont été aussi retrouvés dans les sédiments associés à la limite Crétacé/Tertiaire qui se situe il y a environ 65 millions d'années. Leur présence est d'ailleurs l'un des arguments majeurs en faveur du scénario "impact météoritique" pour expliquer l'extinction massive qui a eu lieu à cette époque. L'extinction brutale des dinosaures en est l'illustration la plus frappante, mais 75% des espèces vivantes ont, en fait, disparu à cette époque. Notons enfin que l'on retrouve également des PDF dans les grains de quartz provenant de sites où ont été expérimentées des bombes atomiques. L'ensemble de ces observations confirme la relation étroite entre onde de choc d'une grande violence (impact d'une météorite, explosion atomique souterraine...) et présence de PDF dans les grains de quartz de la roche encaissante.

Bien que de nombreuses études aient été menées sur les quartz choqués, la plupart ne font état que d'observations au microscope optique. Seuls les quartz du site de Meteor Crater ont été examinés au microscope électronique en transmission (Kieffer et al., 1976) qui est le seul outil permettant la détermination de la microstructure des PDF. Par ailleurs, des expériences de choc (par explosion ou tir au canon à gaz) ont été réalisées sur des cristaux de quartz. On détecte également dans ces matériaux choqués

expérimentalement des PDF tant au microscope optique qu'en microscopie électronique en transmission (MET). En MET, de nombreuses lamelles d'une phase amorphe sont détectées dans ces quartz choqués expérimentalement (voir par exemple Müller, 1969; Gratz, 1984). En conséquence, de nombreux auteurs ont postulé que les PDF observés dans les quartz choqués naturellement devaient être également des lamelles de phase amorphe. Néanmoins, les conditions de chocs réalisés en laboratoire et celles d'un impact météoritique ne sont pas identiques. En particulier la durée de l'onde de choc, la forme de l'onde de choc et des ondes de raréfaction dépendent de la taille de l'impacteur. Il est donc possible que les microstructures de défauts générées par ces deux types de chocs soient également différentes. C'est dans le but de mieux connaître la réponse du quartz à des ondes de choc produites naturellement que cette étude a été menée. En effet, il nous a semblé important d'observer des grains de quartz choqués provenant de structures de tailles et d'âges différents. Ceci devrait nous permettre de répondre à un certain nombre de questions fondamentales concernant ces défauts de choc. Parmi ces questions, citons: quelle(s) microstructure(s) pour ces "planar deformation features" ? Regroupe-t-on sous ce vocable un ou plusieurs types de défauts? Comment se forment-ils? Sont-ils identiques à ceux observés dans les quartz choqués expérimentalement? Quelle est l'influence de facteurs comme la durée du choc ou la température de la cible? Les quartz choqués retrouvés sur le site volcanique de Toba sont-ils semblables à ceux retrouvés sur des sites d'impact météoritique bien caractérisés? Les grains de quartz choqués retrouvés dans les sédiments de la limite Crétacé/ Tertiaire sont-ils caractéristiques d'un impact?

La technique mise en oeuvre pour répondre à ces questions est la microscopie électronique en transmission (MET). Grâce à son fort grossissement (typiquement x10 000 à x500 000), cette technique permet l'observation directe de la (des) microstructure(s) des PDF. Elle permet également d'en caractériser les orientations cristallographiques et, dans le cas où il ne s'agit pas d'une phase amorphe, les défauts cristallins associés. Nous débuterons ce mémoire par une revue des travaux antérieurs et nous ferons une mise au point rapide sur deux aspects du problème auxquels il sera souvent fait référence : les ondes de choc et la limite Crétacé/Tertiaire. Le chapitre II est dévolu à des rappels sur la structure cristallographique du quartz, sur ses propriétés mécaniques et en particulier sur son comportement sous pression

hydrostatique. Les méthodes expérimentales utilisées lors de cette étude seront présentées dans le chapitre III. Le chapitre suivant présente nos caractérisations au MET des microstructures de choc dans des grains de quartz de diverses structures d'impacts ou en tout cas choquées naturellement. Enfin, le chapitre V est consacré à la discussion de ces observations.

# **Chapitre I**

**Revue des travaux antérieurs,**

**Ondes de choc,**

**Limite Crétacé/Tertiaire**



Le but de ce chapitre est de préciser les éléments nécessaires à l'exposé de nos résultats. Pour cela, il convient d'abord de rappeler brièvement quelques uns des phénomènes physiques associés à la propagation d'une onde de choc dans un matériau élastoplastique. En effet, les particularités de ce mode de déformation sont liées à la très grande vitesse de propagation de l'onde et au niveau de contrainte qu'elle génère dans le matériau. La seconde partie de ce chapitre est une revue des travaux antérieurs qui permettra de situer notre étude. Enfin la troisième partie de ce chapitre est un bref rappel des connaissances et hypothèses actuelles sur la limite Crétacé/Tertiaire et les deux scénarii les plus fréquemment cités. Il est clair qu'il n'est pas possible de présenter ici une revue exhaustive des données concernant des sujets aussi vastes que ceux abordés dans ce chapitre; en outre, nous ne maîtrisons pas suffisamment certains aspects de ces domaines, comme la physique des ondes de choc par exemple. Le but de ce chapitre est uniquement de rapporter ici les diverses notions nécessaires, ou tout simplement utiles, à la lecture de ce mémoire.

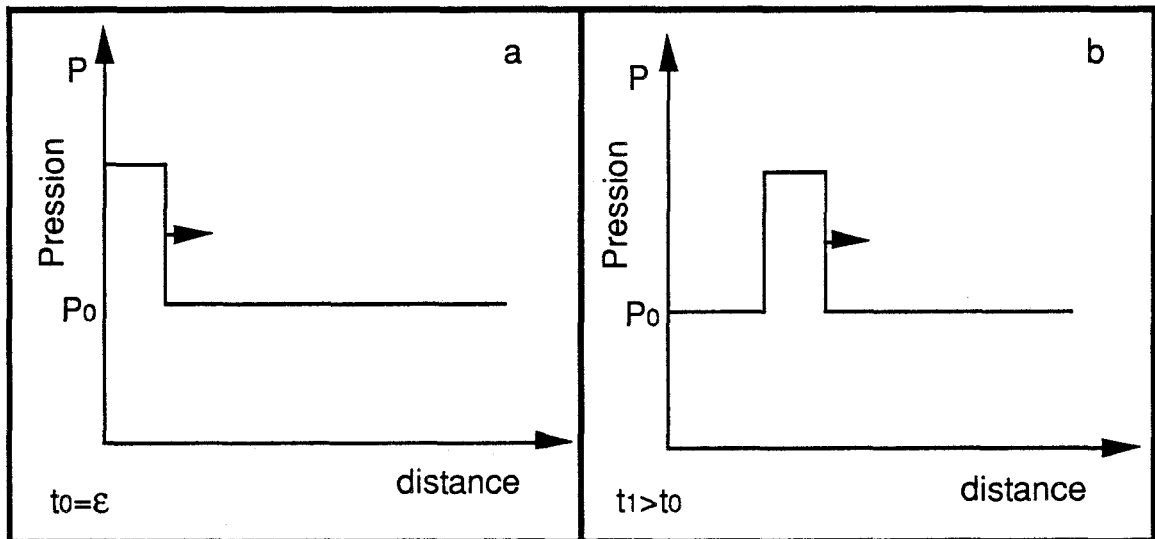
## I-1 : ONDES DE CHOC

L'impact d'une météorite frappant la Terre à grande vitesse (plusieurs km/s) crée une onde de choc. De même, les explosifs très puissants créent des ondes de choc. La pression est générée pendant un temps très bref de l'ordre de la milliseconde pour un impact météoritique, de la nanoseconde pour les expériences à l'aide d'explosifs ou de canons à gaz. Le pic de pression peut être extrêmement élevé (jusqu'à 70 gigapascals pour les chocs expérimentaux, peut être plus de 100 GPa lors d'impacts entre astéroïdes). Au laboratoire, on utilise les ondes de choc principalement dans le but d'établir les lois de comportement des solides sous de fortes pressions (équations d'état). Ces expériences permettent de déterminer les propriétés des solides, en particulier des silicates, à des pressions du même ordre de grandeur que celles qui existent aux grandes profondeurs de la Terre.

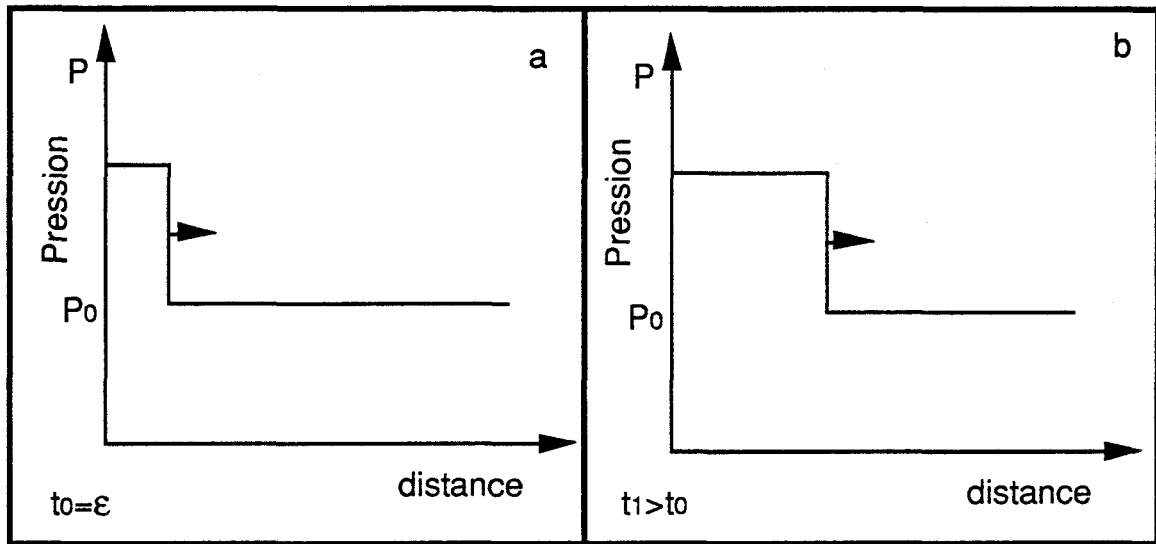
De manière générale, ces expériences sont réalisées à l'aide d'un canon qui projette sur un échantillon-cible, de taille millimétrique



à centimétrique, une plaque de métal. Le contact brutal entre la surface du projectile et la surface du solide-cible engendre une onde de choc qui se propage dans l'échantillon ainsi que dans le projectile. Il convient de bien distinguer les ondes de choc et les ondes élastiques usuelles (vibrations par exemple). En effet, la variation de pression associée au passage d'une onde de choc est tellement intense et rapide qu'on la décrit mathématiquement par une discontinuité de pression, de densité et d'énergie interne. Les particules constituant le solide passent d'un état de repos à un mouvement à grande vitesse conduisant à une forte compression (diminution de volume). Cette compression est un changement thermodynamique fortement irréversible. On peut décrire par la thermodynamique classique l'état de compression finale, mais pas le chemin de l'état initial à l'état comprimé. Cet état final est caractérisé par une pression, une température et une masse spécifique liées par l'équation d'état. Il est clair que le solide ne reste pas comprimé après le passage de l'onde de choc. Le retour à la pression ambiante se fait par le passage d'une onde de raréfaction qui naît sur la surface libre du corps. Le solide est ainsi ramené à la pression ambiante initiale par une détente adiabatique mais, à cause de l'irréversibilité, sa température et sa masse spécifique ne sont pas égales à la température et la masse spécifique initiales. Notons enfin qu'on augmente l'intensité de l'onde de choc en augmentant l'énergie cinétique du projectile, c'est à dire en augmentant soit sa vitesse initiale, soit sa masse.



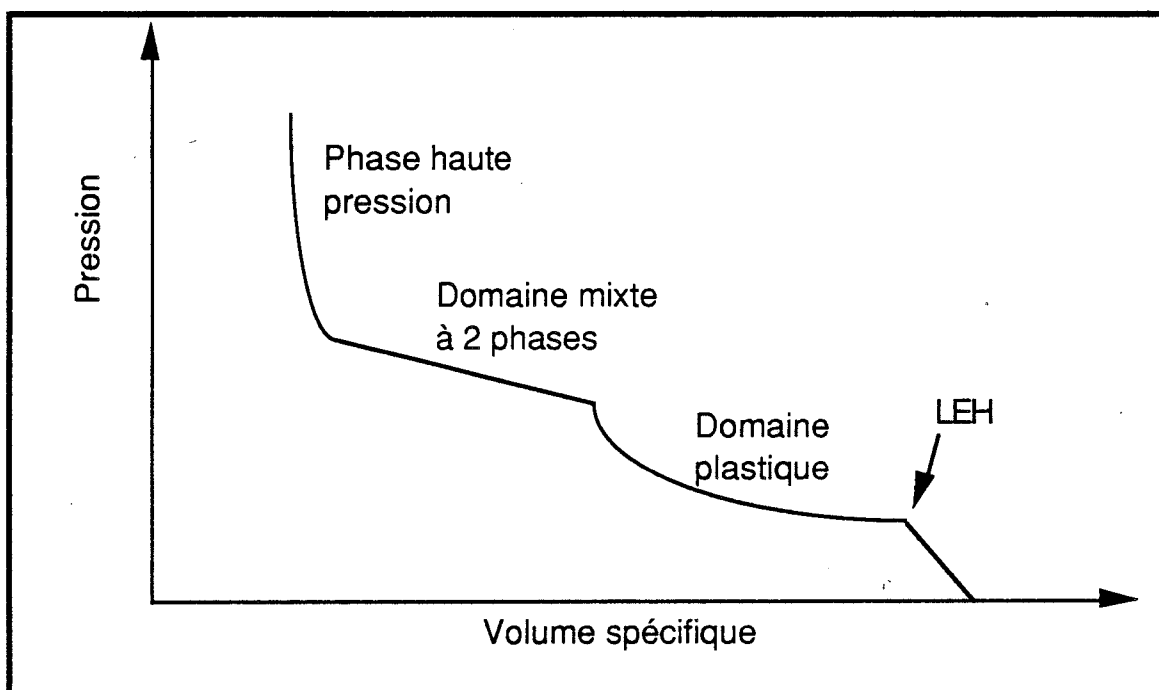
**Figure I-1:** propagation d'une onde élastique dans un solide. a/A un temps  $t_0 = \varepsilon$ . b/ A un temps  $t_1 > t_0$ .



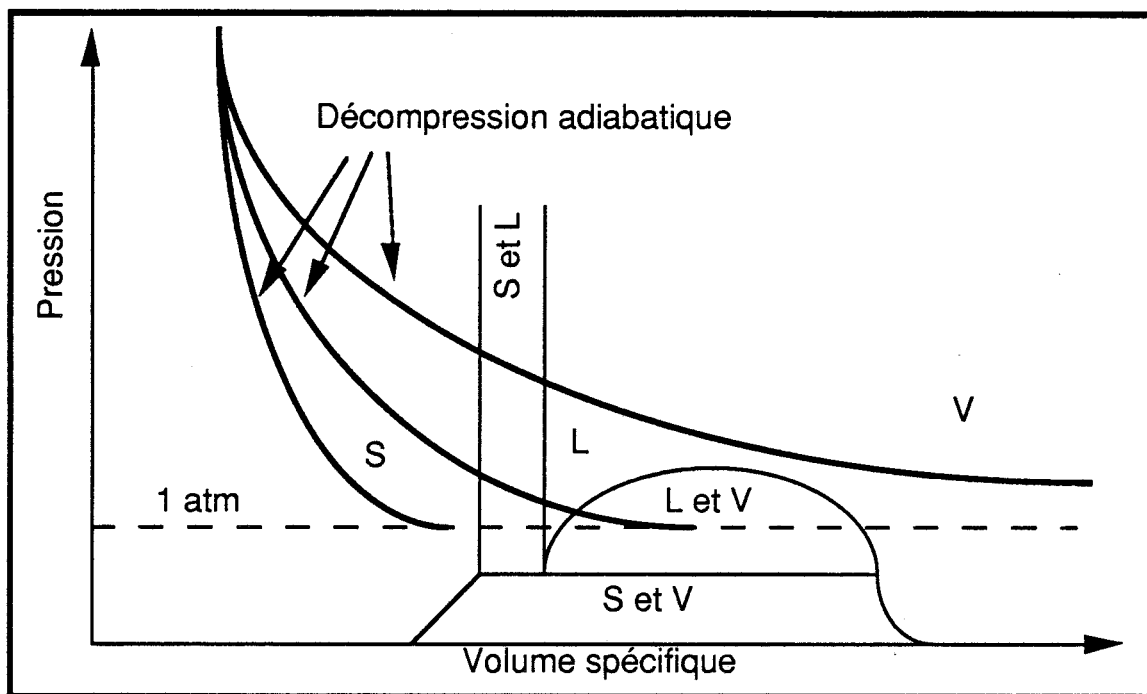
**Figure I-2:** propagation d'une onde de choc dans un solide. a/ A un temps  $t_0 = \epsilon$ . b/ A un temps  $t_1 > t_0$ .

Les résultats des expériences de choc sont généralement analysés en reportant les valeurs des grandeurs thermodynamiques atteintes lors des divers chocs sur un diagramme pression-volume spécifique ou pression-masse spécifique. Ces différentes valeurs se distribuent sur une courbe appelée courbe de Hugoniot. Cette courbe ne décrit pas le chemin thermodynamique suivi durant un choc qui correspond à un changement irréversible non représentable dans un tel diagramme. Par contre, la décompression produite par l'onde de raréfaction est une transformation réversible adiabatique représentable sur le diagramme. Cette décompression aboutit à un état différent de l'état initial à cause de l'irréversibilité de la montée en pression. L'état final ramené à la pression atmosphérique correspond généralement à une température élevée. On distingue souvent plusieurs parties sur la courbe de Hugoniot. Pour des chocs d'intensité modérée, le matériau ne subit pas de déformation plastique irréversible. De telles intensités de choc sont inférieures à la "limite d'élasticité d'Hugoniot" (LEH) qui est généralement différente (plus élevée) de la limite d'élasticité conventionnelle. Au-delà de la LEH, le solide subit une déformation plastique irréversible. Pour des intensités de choc encore plus élevées, la pression de choc peut engendrer des transformations de phase vers des polymorphes de haute pression, ou de la fusion, ou encore des réactions chimiques (décomposition des composés).

Si la pression est suffisamment élevée pour engendrer une transformation polymorphique, l'onde de choc se scinde en deux ondes se propageant à des vitesses différentes. Les transformations polymorphiques peuvent cependant être inhibées même à très haute pression si la cinétique de transformation est lente par rapport à la durée de l'onde de choc. Dans ce cas, le solide gardera sa structure initiale dans des conditions de pression pour lesquelles il n'est plus en équilibre thermodynamique (Ng et al., 1991).



**Figure I-3:** Courbe de Hugoniot d'un solide. On distingue un premier domaine qui correspond à un choc élastique de pression inférieure à la limite d'élasticité d'Hugoniot (LEH), un domaine de déformation plastique, un domaine de transformation de phase et enfin, un domaine de déformation plastique de la phase haute pression.



**Figure I-4:** Après le choc, le solide revient à pression atmosphérique par une décompression adiabatique. Lors de celle-ci, il peut rester dans le domaine d'existence de la phase solide (S) ou entrer dans le domaine d'existence de la phase liquide (L) ou de la phase vapeur (V).

## I-2 : ETUDES ANTERIEURES SUR LES QUARTZ CHOQUES

Depuis leur découverte par Mc Intyre (1962) sur le site de Clearwater Lake au Québec, les quartz choqués ont été détectés et étudiés au microscope optique par un assez grand nombre d'auteurs. De tels quartz choqués ont été observés dans un grand nombre de sites. Parmi ceux-ci, certains sont clairement dus à des impacts météoritiques, comme par exemple Clearwater Lake, Québec (Mc Intyre, 1962), Ries Crater, Allemagne (Engelhardt et Bertsch, 1969) ou La Malbaie, Québec (aussi dénommé Charlevoix; Robertson, 1975); d'autres ont une origine volcanique, comme la caldeira de Toba, Sumatra (Carter et al., 1986). Enfin, d'autres encore ont une origine actuellement très débattue comme le dôme de Vredefort, Afrique du Sud (Fricke et al., 1990; Grieve et al., 1990). Peu d'études ont été réalisées au microscope électronique en transmission sur des quartz choqués naturellement. Il n'y a guère que deux études, celle très détaillée de Kieffer et al. (1976) sur les

quartz de Meteor Crater, Arizona et celle, beaucoup plus courte, de Gratz et al. (1988a) sur les grains de quartz des sédiments associés à la limite K/T à Clear Creek, Colorado. Les études par MET sur des quartz choqués expérimentalement sont un peu plus développées. Les expériences de choc ont généralement été réalisées pour préciser la courbe de Hugoniot de ce matériau (Wackerle, 1962; Ng et al., 1991) et trois articles détaillés d'observations au MET de ce matériel ont été publiés, deux d'entre eux sont l'oeuvre de Gratz (1984, Gratz et al. 1988b) et le troisième est dû à Ashworth et Schneider (1985).

Nous synthétisons d'abord les caractérisations résultant d'observations effectuées à l'aide du microscope optique sur les quartz choqués naturellement. Puis, nous faisons le point sur les caractérisations effectuées sur ces mêmes matériaux par MET. Enfin, dans une troisième section, nous synthétisons les données découlant des investigations effectuées sur des quartz choqués expérimentalement.

#### I-2-a : Etudes au microscope optique de quartz choqués naturellement

Ces études ont essentiellement permis de déterminer les orientations cristallographiques des "planar deformation features" (PDF) grâce à l'utilisation de la platine universelle. Les PDF se présentent sous la forme de fines lignes de contraste rectilignes. Leur épaisseur estimée n'excède pas 1  $\mu\text{m}$ . On peut observer plusieurs familles de PDF par grain, c'est à dire plusieurs orientations différentes. Ces orientations correspondent aux plans de type  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3, 4$  ou au plan de base (0001) (par la suite, par souci d'homogénéité d'écriture, nous considèrerons le plan de base comme étant un plan  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n=\infty$ ). Certains auteurs ont aussi rapporté l'observation de plans de type  $\{22\bar{4}1\}$  (Robertson, 1975; Fricke et al., 1990).

Quelques auteurs ont tenté de calibrer les pressions maximales appliquées au matériau au cours du choc d'après les familles de plans majoritaires de ces PDF, la calibration étant obtenue par comparaison avec des échantillons choqués expérimentalement dont la pression maximale est connue. Il y a en général assez bon accord entre les différents auteurs pour les ordres de grandeur. Aux pressions les plus basses des PDF sont générés dans le seul plan de

base (0001). Ils apparaîtraient à partir de pressions comprises approximativement entre 7 et 10 gigapascals (Engelhardt et Bertsch, 1969; Robertson, 1975; Grieve et al., 1990; Fricke et al., 1990). A partir de pressions au moins égales à 10 à 12 GPa, les PDF se formeraient plutôt parallèlement aux plans de type  $\{10\bar{1}3\}$  (Engelhardt et Bertsch, 1969; Robertson, 1975; Fricke et al., 1990). Ensuite, au-dessus de 15 GPa, ces défauts se produiraient dans  $\{10\bar{1}2\}$  (Engelhardt et Bertsch, 1969; Robertson, 1975; Grieve et al., 1990; Fricke et al., 1990). En outre, d'après Carter et al. (1990) l'apparition de PDF dans des plans  $\{10\bar{1}3\}$  ou  $\{10\bar{1}2\}$  serait également fonction de la température. Ainsi à 440° C, ces auteurs obtiennent majoritairement des PDF dans des plans de type  $\{10\bar{1}3\}$ , alors qu'à température ambiante, ils observent plutôt des PDF dans les plans de type  $\{10\bar{1}2\}$ .

Concernant la microstructure de ces défauts, Chao (1967) rapporte que les fines bandes de contraste observées au microscope sont optiquement isotropes. Il en déduit qu'elles doivent être essentiellement constituées d'une phase amorphe. De même, Engelhardt et Bertsch (1969) ont mesuré la densité et la biréfringence de grains de quartz choqués du site de Ries Crater. Ils trouvent des valeurs plus faibles de ces grandeurs dans les quartz présentant des PDF et en déduisent que les PDF doivent être des lamelles de phase amorphe. Le mécanisme de formation de ces lamelles "amorphes" reste toutefois très discuté. Chao (1967) suggère une transformation directe à l'état solide quartz  $\alpha \rightarrow$  amorphe. Engelhardt et Bertsch (1969) proposent plutôt un modèle de transformation quartz  $\alpha \rightarrow$  stishovite lors de la montée en pression suivie d'une transformation stishovite  $\rightarrow$  phase amorphe lors du retour à pression ambiante. Enfin pour Stöffler (1972) la phase amorphe se formerait aussi par transformation à l'état solide mais à partir d'une phase cristalline de haute pression qui aurait été générée par la compression, mais cet auteur ne précise pas la nature de cette phase cristalline intermédiaire, coesite, stishovite ou autre.

On sait que la propagation d'une onde de choc dans du quartz crée d'autres défauts que ces PDF. En particulier des fractures sont souvent observées et, bien que le quartz soit connu pour ne pas présenter de clivages faciles, celles-ci se propagent préférentiellement dans les plans (0001),  $\{10\bar{1}0\}$  et  $\{10\bar{1}1\}$  (Stöffler, 1972; Engelhardt et Bertsch, 1969). Le choc génère aussi dans le quartz une microstructure spécifique, bien visible au microscope

optique, appelée mosaïcisme. Celle-ci se caractérise par une extinction ondulante en microscopie optique et par un astérisme des taches de diffraction aux rayons X. Ces observations ont été interprétées comme résultant de la rotation de petits blocs cristallins les uns par rapport aux autres; la taille de ces blocs n'excédant pas quelques microns (Stöffler, 1972). La comparaison avec des chocs expérimentaux suggère à Carter et al. (1990) que ce type de défaut apparaîtrait à des pressions supérieures ou égales à 10 GPa.

En résumé, les observations par microscopie optique permettent essentiellement de caractériser les orientations des PDF, c'est à dire de déterminer les indices des plans dans lesquels ils se situent. Il y a accord entre les différents auteurs pour proposer une calibration des pressions minima de formation de ces défauts. Quelques auteurs ont détecté une diminution de la densité et de la biréfringence dans les quartz choqués, et ils interprètent ces résultats en supposant que les PDF sont des lamelles amorphes. Ces études optiques apportent cependant peu d'informations sur la microstructure des PDF et aucune sur le ou les mécanisme de formation de ces défauts. Certaines questions restent non résolues. Tous les PDF observés dans divers plans sont-ils de même nature (ont-ils la même microstructure)? Les PDF générés par des ondes de choc différentes par leur intensité, leur durée, la température de la cible, sont-ils identiques? Quels sont les paramètres importants gouvernant la formation de ces PDF?

#### I-2-b : Observations par MET de quartz choqués naturellement

La première observation par MET de quartz choqués provenant d'un site d'impact est due à Christie et Ardell (1976). Il s'agit en l'occurrence d'un échantillon provenant de Ries Crater, Allemagne. Les défauts observés sont des lamelles de phase amorphe. Tattevin et al. (1990) dans une autre étude très brève de quartz de Ries Crater rapporte aussi l'occurrence du même type de lamelles amorphes. La seule étude approfondie en MET sur des quartz choqués a été publiée par Kieffer et al. (1976). Les quartz observés proviennent du site de Meteor Crater en Arizona. Il s'agit d'échantillons provenant d'un quartzite. Kieffer et al. observent l'occurrence de plusieurs types de phases siliciques : de l'amorphe (qu'ils appellent verre) ainsi que de la coesite et un peu de stishovite. La coesite et la stishovite ont été caractérisées par

leurs clichés de diffraction. Dans les grains modérément à fortement choqués, la proportion de coesite peut représenter 30% du volume total. La proportion de stishovite est très faible (guère plus de 1%). Kieffer et al. distinguent pour cette coesite trois types de sous-structures qui seraient liées à trois mécanismes de formation:

- une coesite polycristalline qui se formerait directement à partir du quartz par transformation à l'état solide,
- des grains de coesite plus gros, partiellement transformés en phase amorphe et,
- une coesite formée à partir d'une phase haute température qui pourrait avoir été de la silice amorphe.

Kieffer et al. trouvent également un peu de stishovite dans les matériaux modérément choqués. D'après ces auteurs cette stishovite se serait formée directement à partir du quartz.

Pour la phase amorphe, les auteurs distinguent également trois sous structures qui proviendraient de trois mécanismes distincts de formation :

- une phase amorphe (qu'ils appellent thétomorphique) qui résulterait de l'amorphisation directe du quartz ou de la coesite lors de la décompression
- une phase amorphe qui résulterait de la fusion (qu'ils appellent léchatéliérite) et
- une phase amorphe qui résulterait de l'interaction de quartz, coesite ou d'amorphe avec de la vapeur d'eau.

Dans le matériau cristallin résiduel, les auteurs ne distinguent pas de variation sensible de la densité de dislocations par rapport à celle du matériel non choqué collecté au voisinage du site d'impact. Cette densité est de l'ordre de  $10^8 \text{ cm}^{-2}$  dans les deux cas et les microstructures de dislocations sont similaires. Les auteurs concluent donc que les ondes de choc dans le quartz ne génèrent pas de dislocations ou de déformation ductile gouvernée par le mouvement de dislocations.

Dans les grains de quartz modérément choqués, Kieffer et al. observent des PDF seulement dans le plan de base et leurs images de contraste "en deux ondes" présentent un contraste de franges parallèles à la surface de la lame mince. Par comparaison avec les observations antérieures de Mc Laren et al. (1967), Kieffer et al. suggèrent que ces PDF sont de fines lamelles de macles du Brésil.



Ils évaluent la pression de formation de ces défauts à des valeurs comprises entre 3 et 13 GPa.

Dans les grains de quartz fortement choqués, Kieffer et al. observent encore des PDF mais ceux-ci se situent parallèlement aux plans de type  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1$  ou  $3$ . Ce sont des lamelles de phase amorphe d'environ 500 Å de large. D'après les auteurs, il s'agit de clivages qui auraient été remplis par un verre de fusion injecté ("jetting"). On peut noter que dans les conditions usuelles, le quartz ne clive pas. Il faut donc supposer que les propriétés mécaniques du quartz sont affectées par la pression et deviennent fortement anisotropes avec un affaiblissement des liaisons fortes et covalentes Si-O dans ces "plans de clivage". Cette injection se produirait lors du choc, par fusion locale due à des frictions entre les différents grains du matériau poreux. Le matériau fondu serait injecté dans les pores entre les grains et dans les clivages intracristallins.

L'étude par MET de Gratz et al (1988a) porte sur des grains de quartz provenant des sédiments de la limite Crétacé/Tertiaire collectés à Raton Basin, Colorado. Ces auteurs ont observé des PDF parallèles aux plans de type  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 2$  ou  $3$ ,  $\{20\bar{2}1\}$  ainsi que  $\{11\bar{2}1\}$ . Dans tous les cas, il s'agit de lamelles de phase amorphe ayant une épaisseur variant de 250 à 1500 Å. Ils suggèrent en outre que le matériel étudié pourrait avoir subi un recuit après le choc qui aurait affecté la structure des PDF. Les indices de ce recuit sont détectés dans l'organisation des dislocations réparties entre les PDF. Celles-ci, qui sont attribuées à la déformation préalable au choc, sont arrangées en sous-joints.

En conclusion, les études en MET de grains de quartz choqués naturellement n'ont été conduites de façon détaillée que sur un seul site d'impact (Meteor Crater) (Kieffer et al. 1976). La microstructure des défauts observés apparaît assez complexe (macles, lamelles de phase amorphe, polymorphes haute pression). Les études concernant les autres sites sont très brèves et ne rapportent l'existence que de lamelles de phase amorphe.

I-2-c : Investigations par MET de quartz choqués expérimentalement

La réponse du quartz à une onde de choc (courbe de Hugoniot) a été étudiée par nombre d'auteurs (Wackerle, 1962; Ahrens et Rosenberg, 1968; Ng et al., 1991). L'ensemble de ces travaux conduit aux résultats suivants : la limite d'élasticité d'Hugoniot se situe entre 5 et 8 GPa. Au-delà de la LEH, le quartz subit une forte variation de volume qui est attribuée à un changement de phase. Au-delà de 38 GPa, la transformation semble être totale, la variation totale de volume est de l'ordre de 40%. C'est sur la transformation mise en jeu que les opinions de ces divers auteurs diffèrent. Wackerle (1962) suggère que le quartz se transforme directement en une phase amorphe. Ahrens et Rosenberg (1968) suggèrent plutôt une transformation en deux étapes. Le quartz se transformerait d'abord en une autre phase cristalline (coesite ou stishovite) puis, dans une seconde étape, cette phase cristalline se transformerait en une phase amorphe. Au delà de 30 GPa, d'après ces auteurs, le quartz se transformerait complètement en stishovite. Lors du retour à pression ambiante, la stishovite se transformerait en un matériau de faible densité qui pourrait être amorphe. Ng et al. (1991) proposent quant à eux une transformation quartz  $\rightarrow$  amorphe  $\rightarrow$  stishovite car la transformation directe quartz  $\rightarrow$  stishovite est très lente.

Enfin, Stöffler (1972) estime qu'à haute pression il se produit une amorphisation en masse conduisant à la formation d'un amorphe appelé verre diaplectique par l'auteur. Stöffler estime également qu'au delà d'une pression-pic de 50 GPa, la température induite dans le matériau par le choc dépasserait la température de fusion du quartz produisant ainsi un verre de fusion différent du verre diaplectique.

Plusieurs études ont été consacrées à l'observation au MET de quartz choqués expérimentalement. L'ensemble de ces observations rapporte la présence de PDF dans les plans de type  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 2, 3$  et  $\infty$ . D'après Ashworth et Schneider (1985), les PDF dans le plan de base pourraient être des macles du Brésil d'origine mécanique. Ce sont les défauts majoritaires à une pression de choc n'excédant pas 12 GPa. Pour la plupart des auteurs (Müller, 1969; Ashworth et Schneider, 1985; Gratz, 1984; Gratz et al., 1988b) les défauts se situant dans les plans  $\{10\bar{1}2\}$  et  $\{10\bar{1}3\}$  sont des lamelles de phase amorphe de 500 à 1000 Å d'épaisseur. Ces défauts sont observés

dans des cristaux de quartz choqués à des pressions de l'ordre de 25 GPa. L'ensemble de ces auteurs s'accorde à dire que la proportion de phase amorphe augmente avec la pression du choc et la température. La formation de la phase amorphe pourrait se produire soit par fusion (Gratz et al., 1988b) soit par amorphisation à l'état solide (Ashworth et Schneider, 1985; Gratz et al., 1992). La présence de stishovite n'a été détectée que par Ashworth et Schneider (1985). La densité de dislocations ne semble pas augmenter lors du choc (Ashworth et Schneider, 1985; Gratz, 1984; Gratz et al., 1988b).

En résumé, l'ensemble de ces travaux semble attribuer une valeur d'environ 8 GPa à la limite d'élasticité de Hugoniot. A pression plus élevée, le quartz s'amorphise le long de lamelles rectilignes dans des plans  $\{10\bar{1}n\}$ . La proportion de phase amorphe augmente avec la pression et la température. Le choc ne génère pas de dislocations. Cependant, le mécanisme d'amorphisation est mal élucidé.

### I-3 : LA LIMITE CRETACE-TERTIAIRE

La limite Crétacé-Tertiaire (ou limite K/T) représente la séparation entre la fin de l'ère secondaire (dont la dernière période est le Crétacé) et le début de l'ère Tertiaire, il y a environ 66 millions d'années. A cette époque, un évènement d'une grande importance s'est produit dans l'histoire de la Terre : une gigantesque catastrophe naturelle a entraîné la disparition brutale et quasi instantanée pour l'échelle de temps géologique d'une grande partie de la vie. On estime que 75% des espèces vivant sur Terre ont disparu à ce moment (voir par exemple Glen, 1990). La Terre a connu au moins cinq extinctions massives et brutales de ce type dans son histoire, la limite Crétacé-Tertiaire en est la plus récente. Actuellement, deux scénarii sont en compétition pour expliquer cette catastrophe.

Le premier scénario a été proposé par Alvarez et al. (1980) qui ont découvert dans les sédiments de la limite K/T, à Gubbio en Italie, un pic de concentration en iridium (environ 100 fois la concentration habituellement mesurée). Ils attribuent une origine extraterrestre à cet excès d'iridium. La concentration en iridium est en effet extrêmement faible à la surface de la Terre car

l'iridium est soluble dans le fer et il a dû se concentrer dans le noyau lors de l'accrétion de la terre. En effet, celle-ci s'est accompagnée d'une fusion suivie d'une solidification fractionnée conduisant à la séparation en noyau, très riche en fer, et manteau, très riche en silicates. La concentration relativement importante en iridium dans la couche de sédiments K/T aurait donc une origine extraterrestre et aurait été apportée par une gigantesque météorite (corps qui contiennent une concentration en iridium dix mille fois supérieure à celle de la croûte terrestre). C'est l'impact d'une telle météorite qui serait responsable de la disparition des espèces vivantes. D'après les estimations des auteurs, la météorite aurait eu un diamètre de 10 kilomètres. L'impact d'un astéroïde de cette taille sur Terre a pour conséquence, outre la création d'un cratère d'environ 200 kilomètres de diamètre, l'émission d'un gigantesque nuage de poussières. Ce nuage doit recouvrir rapidement l'ensemble de la planète, la plongeant dans une nuit semblable (à l'effet des radiations près) à ce qui se passerait en cas de conflit nucléaire mondial (d'où le terme d'hiver nucléaire). Il s'ensuit un abaissement de la température à la surface du globe ainsi qu'un arrêt de la photosynthèse, ce qui brise les chaînes alimentaires. Parmi les autres conséquences de l'impact, on peut aussi noter d'énormes feux de forêts induits par la chaleur dégagée par l'impact, ainsi que de nombreuses pluies acides. On comprend aisément la disparition d'un pourcentage important des espèces vivantes. Ce scénario est corroboré par les observations de Bohor et al. (1984) qui ont observé des marques de choc (PDF) dans des quartz des sédiments de la limite K/T à Brownie Butte, Montana. Les quartz choqués seraient ainsi la preuve d'un impact météoritique à la limite K/T. Cette découverte est considérée par les tenants de l'hypothèse d'un impact météoritique comme un des arguments majeurs en faveur de leur modèle. En 1987, Bohor et al. confirment la présence de quartz choqués dans les sédiments de la limite Crétacé-Tertiaire en de nombreux autres sites à travers le monde (Danemark, Italie, Nouvelle-Zélande).

Le deuxième scénario conçu pour expliquer la catastrophe de la limite K/T a été proposé pour la première fois par Vogt (1972). Il va connaître son véritable développement grâce aux mesures paléomagnétiques de Courtillot et al. (1986). Ces derniers auteurs ont étudié les empilements de laves du Deccan en Inde qui sont les témoins d'un gigantesque volcanisme dont le volume total de lave émise est estimé à deux millions de kilomètres cubes. Les mesures paléomagnétiques effectuées par Courtillot et al. indiquent que

l'ensemble du volcanisme du Deccan n'a pas du durer plus d'un million d'années et se situe dans la séquence 30N/29R/29N des inversions paléomagnétiques; c'est à dire exactement au moment de la limite K/T (qui se situe dans l'intervalle 29R). Ce résultat en fait le volcanisme le plus intense de ces 200 derniers millions d'années et surtout rend cet évènement contemporain de la limite K/T. Les auteurs y voient donc la cause et l'effet. Cet élément constitue un argument décisif pour les défenseurs d'une cause endogène (terrestre) de cette crise à la limite K/T. Les conséquences sur l'écosystème terrestre sont, dans les grandes lignes, identiques à celles d'un impact ("hiver nucléaire", pluies acides,...).

Les tenants de l'origine endogène (volcanisme) de la crise de la limite K/T estiment que l'argument de l'iridium n'est pas une preuve d'impact car on trouve d'importantes quantités d'iridium dans les gaz émis par les volcans de point-chauds (au Kilauea, Zoller et al., 1983; à La Réunion, Toutain et Meyer, 1989). La présence d'iridium pourrait donc s'expliquer par un phénomène volcanique de point-chaud qui remonte des matériaux depuis de très grandes profondeurs, peut-être depuis la couche appelée D" et située à la limite manteau-noyau à 2900 km de profondeur. Tel est sans doute le cas du volcanisme du Deccan. D'autre part, Crocket et al. (1988), ont montré que le pic de concentration en iridium du site de Gubbio est étalé sur une épaisseur correspondant à plusieurs milliers d'années. Ils attribuent cette observation à une effusion progressive de l'iridium, correspondant plutôt à un phénomène volcanique. De plus, Keller (1989) montre que les extinctions d'espèces semblent, elles aussi, s'être étalées sur plusieurs milliers d'années et ne seraient donc pas toutes simultanées comme le voudrait le scénario exogène (impact météoritique).

L'une des difficultés majeures de la thèse volcanique reste l'explication de la présence de grains de quartz choqués dans les sédiments de la limite K/T. En effet, la découverte par Carter et al. (1986) de grains de quartz choqués dans les roches de la caldeira du volcan Toba au Sumatra constituerait une preuve que des PDF peuvent être générés dans le quartz par d'autres causes que des impacts de météorites. Mais, cette observation a été contestée par Izett et Bohor (1987) ainsi que par Sharpton et Schuraytz (1989) qui ne retrouvent pas en microscopie optique ces contrastes si caractéristiques. L'argument "forte explosion volcanique = formation de PDF" dans le quartz est donc loin d'être unanimement

accepté. Seule l'identification en MET de PDF créés par une éruption volcanique permettrait de lever ce doute.

Avant de présenter notre propre étude, rappelons brièvement les résultats et interrogations suscitées par les études antérieures. Les ondes de choc induisent la formation de PDF dans les plans de type  $\{10\bar{1}n\}$  du quartz à partir de pressions d'environ 10 GPa et ceci jusqu'à environ 40 GPa. Il semble que ces défauts soient des lamelles d'une phase amorphe, excepté pour les défauts se situant dans le plan de base. La formation de phases cristallines de haute pression reste peu observée, et est donc discutée, ainsi que le mécanisme conduisant à une phase amorphe sous forme de lamelles. Un seul site d'impact (Meteor Crater) a été étudié en détail au MET. Cependant, il est à noter que l'impact de Meteor Crater est très petit (1,2 km de diamètre) et la roche choquée est un quartzite poreux. En outre, l'impact étant très récent (environ 50 000 ans) le site a subi une érosion très faible. En conséquence, le matériel collecté par Kieffer et al. provient de la surface, près du centre de l'impact où l'onde de choc était très intense. Par contre, les grains de quartz collectés sur des sites d'impact plus anciens, qui ont été érodés, correspondent à du matériel qui était initialement enfoui, loin du centre de l'impact, peut-être à plusieurs kilomètres ou même plusieurs dizaines de kilomètres dans le cas de grands sites d'impact. Ce matériel qui était plus compact et plus chaud que le quartzite poreux de Meteor Crater peut avoir subi une onde de choc plus faible, présentant ainsi une structure différente (composante déviatorique différente, durée et température plus importantes ...).

#### I-4 : CADRE DE NOTRE ETUDE

Un certain nombre d'incertitudes demeure concernant la nature physique des PDF dans les grains de quartz ayant subi un impact. En effet, les observations au microscope optique sont limitées par le pouvoir de résolution de cet instrument et les observations par MET sont très parcellaires. La principale interrogation qui demeure concerne la nature des PDF en termes de défauts cristallins: les PDF sont-ils de même nature quelle que soit leur cause (impact, explosion volcanique,...)? Les PDF observés dans les chocs expérimentaux sont-ils identiques à ceux générés par des chocs naturels dont la durée est plus grande de plusieurs ordres de grandeur? Quelle est la signature des PDF rencontrés dans les

sédiments de la limite K/T? Pour répondre à ces questions, il était nécessaire d'observer directement les PDF à fort grandissement et de caractériser leur microstructure par des visualisations de contraste de diffraction en MET, seule méthode capable de conduire à des identifications non ambiguës.

Afin d'observer une palette représentative et donc relativement large de défauts générés par des ondes de choc dues à des causes naturelles, nous avons sélectionné divers sites de tailles et d'âges différents. Ce sont les sites d'impact de La Malbaie (350 millions d'années, diamètre de la structure environ 30 km); Ries Crater (15 millions d'années, diamètre de la structure environ 25 km), un site dont l'origine reste discuté (Vredefort, 2 milliards d'années, diamètre d'environ 80 km), un site associé à la limite K/T (Raton Basin) et une explosion volcanique (caldeira de Toba, 75000 ans, de forme elliptique de 100 km sur 30).

Un tel choix doit permettre de savoir si le vocable de PDF regroupe ou non différents types de défauts (soit parce que les mécanismes gouvernant leur formation sont différents, soit parce qu'ils auraient évolué après l'évènement responsable de leur formation). En effet, les grains provenant de sites anciens peuvent avoir été affectés par un ou plusieurs épisodes métamorphiques. Dans la suite de ce mémoire, nous désignerons par "métamorphisme" des changements de conditions de pression et de température qui ont pu faire évoluer la microstructure des défauts (un recuit à 500°C pendant plusieurs semaines à pression ambiante rentre dans ce cadre). La comparaison de ces microstructures avec celles des PDF présents dans les grains de quartz de la limite K/T est importante car c'est l'une des voies de recherche prometteuse pour préciser la cause de la catastrophe et mettre fin à la querelle qui entoure son origine. Dans la même optique, le cas de l'explosion volcanique de Toba est intéressant.

Outre l'élucidation de la nature de la ou des microstructure(s) de ces PDF, un autre point important de notre étude est de s'efforcer de comprendre et de modéliser le ou les mécanismes de formation de ces défauts ainsi que la cinétique de cette transformation quartz-> PDF. Nous avons voulu réaliser toute cette étude par microscopie électronique en transmission en utilisant les diverses techniques qui lui sont généralement associées, diffraction, microanalyse X... .

## **Chapitre II**

**Le quartz :**  
**Cristallographie,**  
**Propriétés mécaniques**



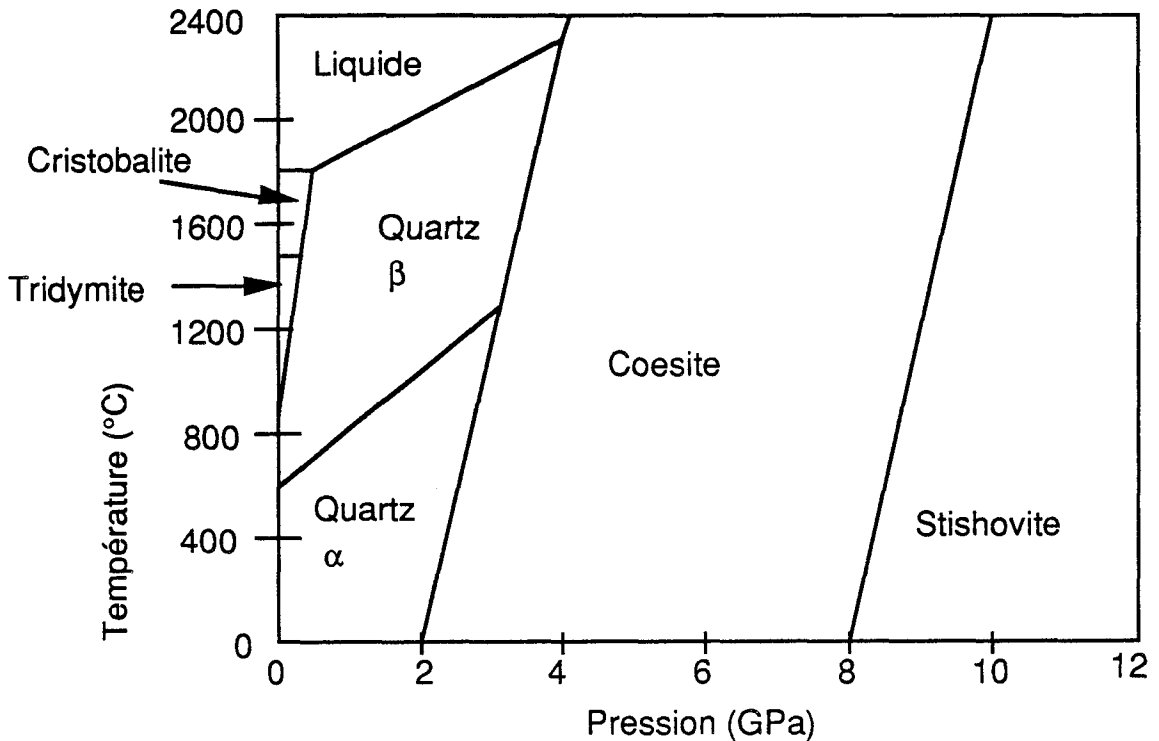


Il est bien connu que les propriétés mécaniques d'un cristal dépendent étroitement de sa structure cristalline et du type de liaisons entre les atomes constituants. Dans ce chapitre, nous présenterons donc tout d'abord la structure cristalline du quartz et de ses principaux défauts de réseau (dislocations et systèmes de glissement, macles). Nous rappellerons ensuite le diagramme de phase d'équilibre du composé  $\text{SiO}_2$  avec les champs de stabilité des différents polymorphes, en particulier ceux de haute pression. Enfin, nous aborderons de façon succincte les propriétés mécaniques du quartz, en particulier le rôle de l'impureté "eau" qui affecte fortement ces propriétés. En effet, l'eau est toujours présente en quantité plus ou moins importante dans les roches de l'écorce terrestre et il a été abondamment démontré expérimentalement que de très faibles quantités d'eau, dissoutes dans le réseau cristallin du quartz, affectent profondément son comportement mécanique.

## II-1 : CRISTALLOGRAPHIE

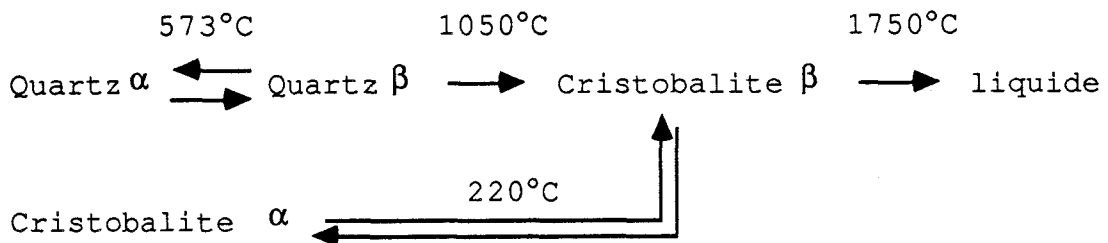
Le quartz  $\alpha$  est la forme cristalline la plus répandue de la silice  $\text{SiO}_2$ : c'est la structure stable à température et pression ambiante. Selon la température et la pression, il existe cependant une grande variété de polymorphes du composé  $\text{SiO}_2$  dont les champs de stabilité sont reportés sur la figure II-1.

A pression modérée, on trouve successivement, en augmentant la température, le quartz (avec ses deux variétés cristallographiquement très proches  $\alpha$  et  $\beta$ ), la tridymite (variétés  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ ), la cristobalite (variétés  $\alpha$  et  $\beta$ ) et enfin le verre (phase liquide). L'ordre des lettres grecques augmente avec la température. Les transformations entre les phase  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  du quartz, de la trydymite ou de la cristobalite sont displacives, c'est-à-dire très rapides et n'impliquant pas de mouvement appréciables des atomes; tandis que les transitions entre l'une des variétés du quartz et l'une des variétés de la tridymite ou de la cristobalite sont reconstructives (c'est-à-dire lentes et impliquant la diffusion des atomes sur des distances supérieures à la dimension de la maille).



**Figure II-1:** diagramme de phase de SiO<sub>2</sub> en fonction de la température et de la pression.

Toutes ces structures sont bâties sur l'arrangement régulier de tétraèdres SiO<sub>4</sub> (arrangement irrégulier dans le cas de la phase fondue). On peut noter en outre que la stabilité de la phase tridymite semble être liée à la présence d'impuretés appelées minéralisateurs (Pascal, 1965). Ce ne serait donc pas une phase stable de la silice pure. A pression ambiante, en augmentant la température, on a donc les transformations suivantes :



**Figure II-2:** Séquence des transformation de phase de SiO<sub>2</sub> à pression ambiante.

Pour des pressions un peu plus élevées, de l'ordre de 2,5 GPa à 500°C, apparaît la coésite qui est plus dense que le quartz mais est encore constituée d'un arrangement régulier de tétraèdres  $\text{SiO}_4$ . Pour des pressions encore plus élevées (8,5 GPa à 500°C) apparaît la stishovite qui, contrairement aux phases précédentes, est bâtie sur un arrangement régulier d'octaèdres  $\text{SiO}_6$  et est donc nettement plus dense que le quartz. Il est très vraisemblable qu'il existe plusieurs autres phases cristallines stables à des pressions encore plus élevées.

### II-1-a : Structure cristalline et cristallographie

Le quartz  $\alpha$  est la phase cristalline de la silice la plus fréquemment rencontrée dans la nature. C'est l'un des constituants majeurs de la lithosphère. Il a la symétrie rhomboédrique et appartient à la classe énantiomorphe 32 (groupe spatial  $P3_121$  ou  $P3_221$  pour les variétés droite ou gauche respectivement). Son réseau de Bravais est hexagonal. Les éléments de symétrie de la structure sont : un axe d'ordre 3 (axe  $c$ ) et trois axes d'ordre 2 (axes  $a_1$ ,  $a_2$  et  $a_3$ ) perpendiculaires à  $c$  et faisant entre eux des angles de  $120^\circ$ . Il n'y a ni plan, ni centre de symétrie. La maille bâtie sur  $a_1$ ,  $a_2$  et  $c$  contient trois atomes de silicium et six atomes d'oxygène. Dans les conditions ambiantes, les valeurs des paramètres sont  $a = 4,912 \text{ \AA}$  et  $c = 5,404 \text{ \AA}$ . En prenant comme axes de référence deux axes d'ordre deux ( $a_1$  et  $a_2$ ) et l'axe d'ordre trois ( $c$ ), les atomes de la maille ont les positions indiquées dans le tableau II-1.

L'entité de base des tectosilicates est le tétraèdre  $\text{SiO}_4$  (les atomes d'oxygène se situent au sommet du tétraèdre et l'atome de silicium est au centre). Dans le quartz, ces tétraèdres partagent leurs sommets et forment ainsi un réseau tridimensionnel très rigide. Les mesures de Jorgensen (1978) ont montré que la compressibilité du quartz résulte bien plus de la rotation de ces tétraèdres autour de leurs sommets communs que de la diminution de volume des tétraèdres eux-mêmes. Cette propriété traduit l'intensité des liaisons fortes dirigées Si-O. Il en résulte que l'angle O-Si-O à l'intérieur d'un tétraèdre varie peu (tétraèdre presque régulier) alors que l'angle Si-O-Si entre tétraèdres adjacents peut varier dans un plus large intervalle.

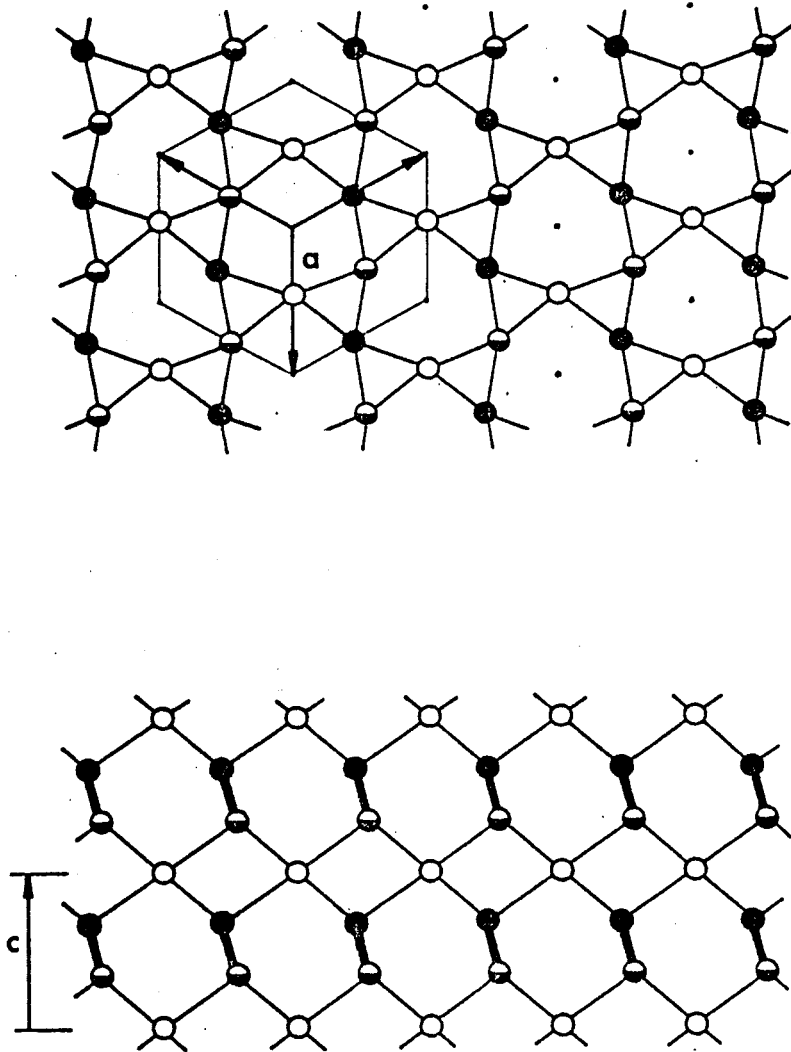
Le quartz  $\beta$  a la symétrie hexagonale et appartient à la classe énantiomorphe 622 (groupe spatial  $P6_222$  ou  $P6_422$  pour les variétés droite ou gauche respectivement). La maille, qui contient trois atomes de silicium et six atomes d'oxygène, a pour paramètres  $a = 4,996 \text{ \AA}$  et  $c = 5,456 \text{ \AA}$  à  $579^\circ\text{C}$ . En prenant comme axes de référence deux axes d'ordre deux et l'axe d'ordre six, les positions des atomes de la maille, pour la variété gauche, sont celles reportées dans le tableau II-2.

Atomes	Quartz gauche	Quartz droit
Si	$u, 0, 0$ $0, u, 2/3$ $-u, -u, 1/3$	$u, u, 0$ $0, -u, 2/3$ $-u, 0, 1/3$
O	$x, y, z$ $y-x, -x, 1/3 +z$ $-y, x-y, 2/3 +z$ $x, y-x, 1/3 -z$ $y, x, 2/3 -z$ $x-y, -y, -z$	$x, x-y, z$ $y-x, y, 1/3 +z$ $-y, -x, 2/3 +z$ $-x, -y, 1/3 -z$ $y, y-x, 2/3 -z$ $x-y, x, z$

**Tableau II-1:** Position des atomes de silicium et d'oxygène dans la maille du quartz  $\alpha$  d'après Frondel (1962) ( $u = 0,465$ ;  $x = 0,416$ ;  $y = 0,272$ ;  $z = 0,120$  à  $27^\circ\text{C}$ ).

3 Si en :	$1/2, 0, 0$	$0, 1/2, 2/3$	$-1/2, -1/2, -1/3$
6 O en :	$x, -x, 5/6$ $-x, -2x, 1/2$	$-x, x, 5/6$ $2x, x, 1/6$	$x, 2x, 1/2$ $-2x, -x, 1/6$

**Tableau II-2:** Position des atomes de silicium et d'oxygène dans le quartz  $\beta$ , variété gauche, d'après Frondel (1962) (avec  $x = 0,197$  à  $579^\circ\text{C}$ ).



**Figure II-3:** Représentation schématique de la structure du quartz  $\alpha$  gauche. a) projection sur le plan de base. Les ronds vides représentent les atomes de Si à la côte  $z = 0$ ; les ronds demi-pleins les atomes Si à la côte  $z = c/3$  et les ronds pleins les atomes de Si à la côte  $z = 2c/3$ . Les atomes d'oxygène ne sont pas représentés mais les liaisons Si-O-Si sont indiquées par des barres reliant les ronds. b) Projection sur le plan prismatique  $(2\bar{1}\bar{1}0)$ .

### II-1-b : Réseau réciproque

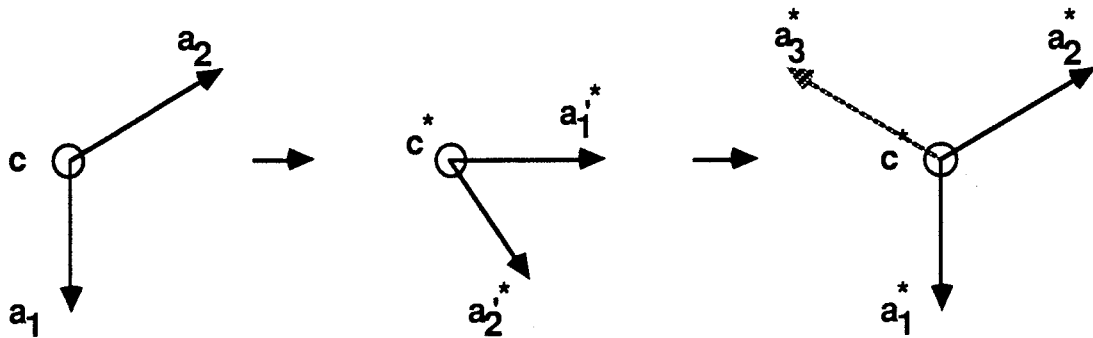
Nous avons utilisé tout au long de notre étude le système à quatre indices de Miller-Bravais pour repérer plans et directions du réseau réciproque. Une telle notation non ambiguë et bâtie sur

quatre indices pour repérer l'espace réciproque a été développée par Franck (1965) et aménagée par Doukhan (1971) pour rendre parallèles les axes du réseau direct et du réseau réciproque. Cette notation est employée depuis plusieurs années au laboratoire (voir par exemple les thèses de Farvacque (1977), Trépied (1984) et Cordier (1989)).

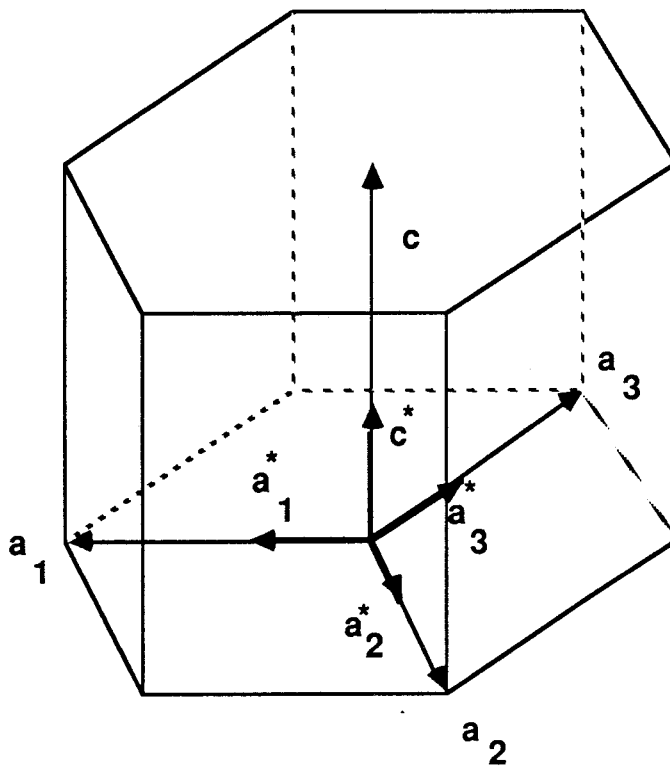
On part donc du réseau direct repéré par quatre axes  $\mathbf{a}_1$ ,  $\mathbf{a}_2$ ,  $\mathbf{a}_3$  et  $\mathbf{c}$ . L'axe  $\mathbf{a}_3$  est redondant mais permet de faire réapparaître les directions et plans équivalents; sous la forme de familles  $\langle hkil \rangle$  ou  $\{uvw\}$ . On a la relation définissant les coordonnées sur cet axe  $\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2 + \mathbf{a}_3 \equiv 0$  ou  $h+k+i \equiv 0$  pour un plan et  $u+v+w \equiv 0$  pour une direction. Un plan du réseau direct est défini par la méthode habituelle par ses intersections avec les axes de référence de sorte que ses indices sont  $(hkil)$  lorsqu'il coupe ces axes en des points  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  et  $C$  tels que  $OA_1 = \mathbf{a}_1/h$ ;  $OA_2 = \mathbf{a}_2/k$ ;  $OA_3 = \mathbf{a}_3/i$  et  $OC = \mathbf{c}/l$  et la condition restrictive  $h+k+i = 0$  est satisfaite. De même, on définit une direction  $OM$ , d'indices  $[uvw]$ , par  $\mathbf{OM} = u\mathbf{a}_1 + v\mathbf{a}_2 + w\mathbf{a}_3 + t\mathbf{c}$  avec la même condition restrictive  $u+v+w = 0$  qui assure l'unicité de la décomposition du vecteur  $\mathbf{OM}$  sur ces quatre axes.

Le réseau réciproque est construit comme suit. Il est d'abord défini de façon classique à partir du réseau direct repéré par les vecteurs  $\mathbf{a}_1$ ,  $\mathbf{a}_2$  et  $\mathbf{c}$ . On obtient ainsi une base du réseau réciproque que l'on notera  $\mathbf{a}'_1$ ,  $\mathbf{a}'_2$ , et  $\mathbf{c}'$ . Les vecteurs  $\mathbf{a}'_1$  et  $\mathbf{a}'_2$  faisant entr'eux un angle de  $120^\circ$ , les vecteurs  $\mathbf{a}'_1$ ,  $\mathbf{a}'_2$  font entr'eux un angle de  $60^\circ$  de sorte que l'on perd la symétrie d'ordre trois autour de l'axe  $\mathbf{c}$  ou  $\mathbf{c}'$ . Pour retrouver cette symétrie on effectue un changement de repère dans le réseau réciproque afin d'obtenir une base composée des vecteurs  $\mathbf{a}^*_1$ ,  $\mathbf{a}^*_2$  respectivement parallèles à  $\mathbf{a}'_1$  et  $\mathbf{a}'_2$ , de longueurs  $2/3|\mathbf{a}'_1|$  et faisant entr'eux un angle de  $120^\circ$ . On y ajoute enfin le vecteur non indépendant  $\mathbf{a}^*_3$  tel que  $\mathbf{a}^*_1 + \mathbf{a}^*_2 + \mathbf{a}^*_3 = 0$ .  $\mathbf{c}'$  n'est pas modifié (mais par souci d'homogénéité, on le notera maintenant  $\mathbf{c}^*$ ). On a ainsi reconstruit une base pour le réseau réciproque qui laisse apparaître les symétries du cristal et qui conserve les indices des plans et directions. En effet, on peut vérifier que le vecteur réciproque  $[hkl]^*$  défini de façon conventionnelle dans la base  $(\mathbf{a}'_1, \mathbf{a}'_2, \mathbf{c}')$  aboutit au même noeud du réseau réciproque que le vecteur  $[hkil]^*$  (avec  $h+k+i = 0$ ) défini dans notre nouvelle base  $(\mathbf{a}^*_1, \mathbf{a}^*_2, \mathbf{a}^*_3, \mathbf{c}^*)$ . En outre, ce vecteur réciproque  $[hkil]^*$  est perpendiculaire au plan du réseau direct

(hkil) et enfin une permutation circulaire des trois indices h, k et i nous donne tous noeuds du réseau réciproque cristallographiquement équivalents.



**Figure II-4:** Définition de la base du réseau réciproque employée.



**Figure II-5:** La maille hexagonale du quartz avec les vecteurs de base du réseau direct et du réseau réciproque redéfini.

Les avantages de cette notation non conventionnelle sont les suivants : la direction du réseau direct [uvw] est perpendiculaire au plan (uvw)\* du réseau réciproque (l'astérisque signifie un plan



ou une direction du réseau réciproque). De même, une direction  $[hkil]^*$  du réseau réciproque est perpendiculaire au plan  $(hkil)$  du réseau direct. La permutation circulaire des trois premiers indices (dont la somme est identiquement nulle) fournit toutes les directions ou tous les plans cristallographiquement équivalents; on peut à nouveau employer la notation  $\{ \}$  et  $\langle \rangle$  pour des familles équivalentes ( $\{uvw\}$  et  $\langle hkil \rangle$ ) aussi bien dans le réseau direct que dans le réseau réciproque (sans ou avec astérisque). Ainsi, les trois vecteurs de base de la maille hexagonale  $\mathbf{a}_1$ ,  $\mathbf{a}_2$  et  $\mathbf{a}_3$  s'écrivent respectivement  $1/3[2\bar{1}\bar{1}0]$ ,  $1/3[\bar{1}2\bar{1}0]$  et  $1/3[\bar{1}\bar{1}20]$  ou de façon générique  $1/3\langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$ . Notons cependant que même avec cette notation "améliorée" une direction du réseau direct  $[hkil]$  n'est en général pas perpendiculaire au plan du réseau direct  $(hkil)$  à cause de la valeur du rapport  $|c|/|a|$  qui n'est pas égal à la valeur idéale que l'on aurait pour un empilement compact d'atomes sphériques (d'ailleurs le quartz n'a pas la structure hexagonale compacte). La seule exception à cette règle correspond au cas particulier où le dernier indice est nul ou infini (plan de base ou axe  $c$ ).

Avec notre notation, le produit scalaire d'un vecteur du réseau direct  $\mathbf{b}$  d'indices  $[hkil]$  par un vecteur du réseau réciproque  $\mathbf{g}^*$  d'indices  $[uvw]$  est  $\mathbf{b} \cdot \mathbf{g}^* = hu + kv + iw + lt$ . La condition nécessaire et suffisante pour que ces deux vecteurs soient orthogonaux est  $hu + kv + iw + lt = 0$ .

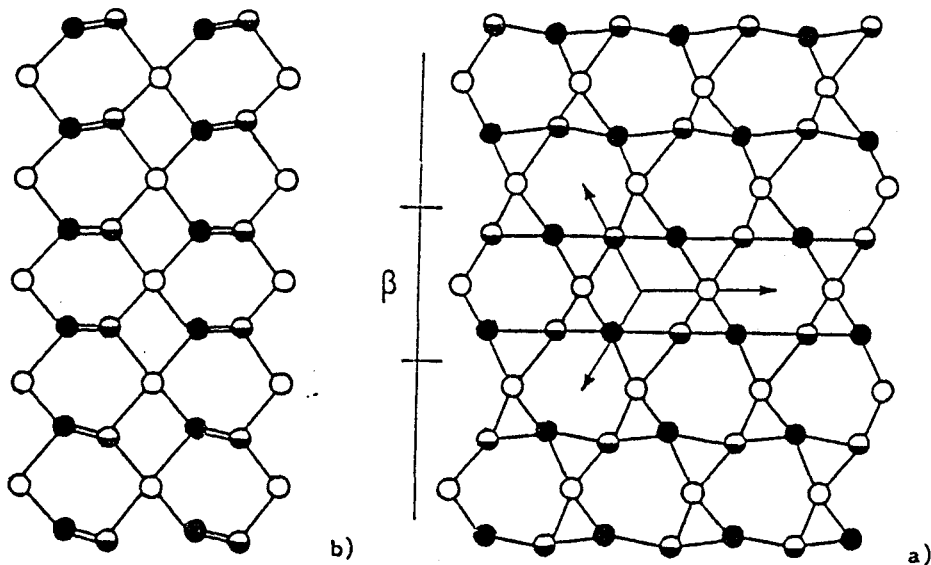
## II-2 : MACLES DANS LA STRUCTURE DU QUARTZ

De nombreuses macles ont été décrites dans le quartz (macle du Dauphiné, du Brésil, du Japon,...). Cependant, nous ne décrivons ici que les macles les plus fréquemment rencontrées qui sont les macles du Dauphiné et du Brésil. Il est à noter que ces macles ne sont pas visibles au microscope optique en lumière naturelle ou polarisée.

### II-2-a : Macle du Dauphiné

Soit  $\alpha_1$  la variété correspondant aux positions  $u\mathbf{a}_1$ ,  $u\mathbf{a}_2 + \mathbf{c}/3$ ,  $u\mathbf{a}_3 + 2\mathbf{c}/3$  pour les trois atomes de silicium de la maille primitive. La variété  $\alpha_2$  est obtenue en changeant  $u$  en  $1-u$  (ce qui ne nécessite

la rupture d'aucune liaison Si-O-Si). Le contact entre les variétés  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  constitue une paroi de macle du Dauphiné, une partie étant la matrice et l'autre la macle. Le réseau de Bravais est inchangé au passage de la paroi de macle. La macle du Dauphiné est donc dite "pénétrative", c'est à dire que son plan d'accolement peut être quelconque, la partie maclée pénétrant dans la matrice dans n'importe quelle direction. En pratique, l'anisotropie de l'énergie de faute associée à la paroi de macle conduit à une orientation préférentielle marquée pour les plans de type  $\{10\bar{1}0\}$ . Dans la phase  $\beta$ , on a  $u=0,5$ , de sorte que le changement de  $u$  en  $1-u$  ne modifie pas les positions des atomes. Il n'y a donc plus de macle du Dauphiné en phase  $\beta$ . Cette macle apparaît souvent au refroidissement lors de la transition  $\beta \rightarrow \alpha$ ; les deux domaines  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  nucléant de façon non corrélée en divers endroits.

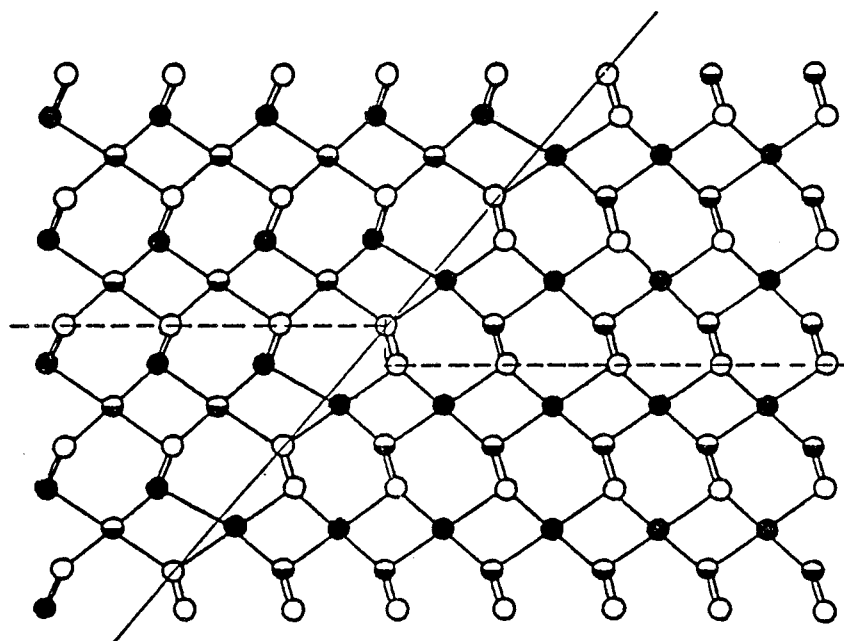


**Figure II-6:** Macle du Dauphiné vue en projection sur les plans a) (0001) et b) (2 $\bar{1}$ 10).

### II-2-b : Macle du Brésil

L'existence de cette macle est directement liée à l'énantiomorphisme. Si la matrice est droite, la macle du Brésil correspond à du quartz gauche et vice versa, de sorte que les deux variétés se correspondent par un miroir de plan  $\{\bar{1}\bar{1}20\}$ . Pour cette loi de maclage également, le réseau de Bravais est identique de

part et d'autre de la paroi de macle, mais contrairement au cas précédent il faut rompre (puis reconstruire) des liaisons Si-O-Si pour fabriquer cette macle qui existe aussi bien en phase  $\alpha$  qu'en phase  $\beta$ . Cette macle est donc difficile à créer mécaniquement et la plupart des macles du Brésil observées sont des macles qui se sont formées lors de la cristallogénèse du cristal. Les parois de ces macles de croissance sont toujours les plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}1\}$ . La macle du Brésil peut également être générée par déformation plastique sous forte contrainte (Mc Laren et al., 1967). Les parois de macles sont alors des plans de base (0001).



**Figure II-7:** Macle du Brésil. Le plan d'accolement est du type  $(10\bar{1}1)$ , plan de la figure  $(11\bar{2}0)$

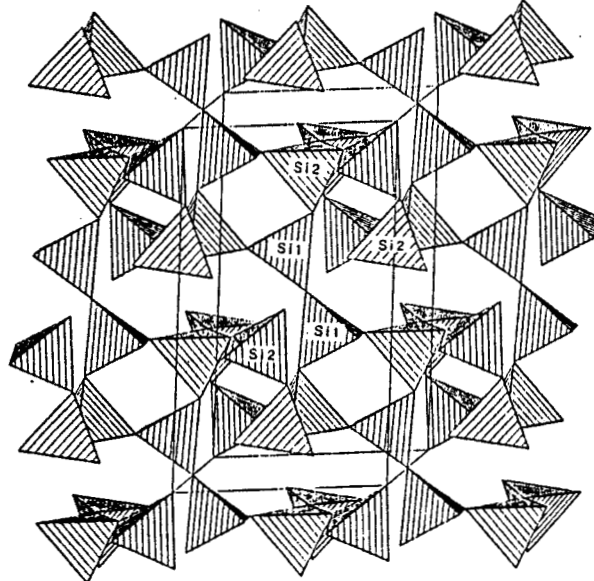
### II-3 : POLYMORPHES DE HAUTE PRESSION

Historiquement, la première phase haute pression de  $\text{SiO}_2$  découverte est la coesite (Coes, 1953). Les travaux de Stishov et Popova (1961) ont ensuite permis de découvrir et de caractériser une phase stable à très haute pression et haute température, la stishovite. Plus récemment, Hemley et al. (1988) ont montré l'existence d'une phase amorphe stable à pression très élevée et à température ambiante.

### II-3-a : Coesite

La coesite est monoclinique et appartient au groupe spatial C2/c. Sa structure peut cependant être décrite comme pseudo-hexagonale car  $a$  et  $c$  ont des longueurs très voisines et l'angle  $\beta$  est très proche de  $120^\circ$ . Les vecteurs de base du réseau sont  $a = 7,135 \text{ \AA}$ ;  $b = 12,372 \text{ \AA}$ ;  $c = 7,174 \text{ \AA}$ ;  $\beta = 120,36^\circ$  (Gibbs et al., 1977). La transformation quartz  $\alpha \rightarrow$  coesite est reconstructive. Le silicium reste tétravalent dans la coesite.

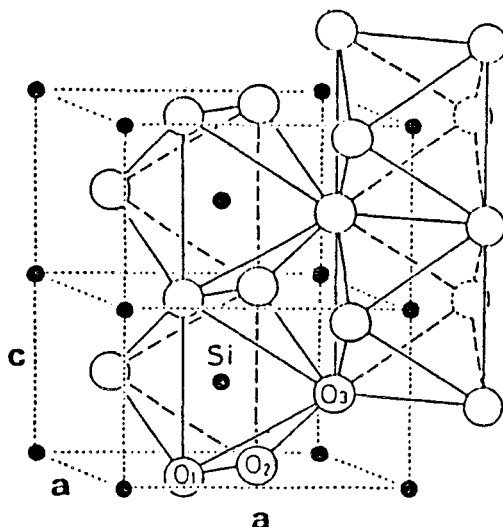
Hobbs (1968) ainsi que Green (1972) ont détecté la présence de coesite dans des échantillons de quartz déformés sous une pression de confinement suffisamment élevée pour que le quartz sorte de son champ de stabilité (sans doute de l'ordre de 2 GPa, mais la contrainte déviatorique semble un facteur important pour la cinétique de nucléation et/ou de croissance de la coésite). Hobbs a observé à  $\approx 900 \text{ }^\circ\text{C}$  des grains de coesite de taille allant jusqu'à 2 mm, ce qui indique que la cinétique de transformation quartz  $\rightarrow$  coesite peut être assez rapide. Green a observé de la coesite dans des conditions T et P qui correspondent au champ de stabilité du quartz de sorte qu'il fait l'hypothèse qu'il est possible de nucléer à partir de quartz de la coesite hors de son champ de stabilité à condition que le quartz soit fortement déformé avec une densité de dislocation importante de l'ordre de  $10^{16} \text{ m}^{-2}$ .



**Figure II-8:** structure de la coesite. Ce sont des chaînes de tétraèdres contenant quatre  $\text{SiO}_4$  (projection selon l'axe  $c$ ) (d'après Smith and Bish, 1988).

### II-3-b : Stishovite

La stishovite cristallise dans la structure type rutile (C4, groupe spatial  $P4_2/mnm$ ). Son réseau est quadratique. Les vecteurs de base sont  $a = 4,17 \text{ \AA}$  et  $c = 2,66 \text{ \AA}$  (Spackmann et al., 1987). Dans cette structure, le silicium est hexacoordonné. On peut donc décrire cette structure par un arrangement régulier d'octaèdres  $\text{SiO}_6$ , toutefois, ces octaèdres ne sont pas réguliers.



**Figure II-9:** Structure de la stishovite (d'après Sugiyama et al.). Les ronds pleins représentent les atomes de silicium, les ronds vides les atomes d'oxygène

### II-3-c : amorphisation sous pression

Hemley et al. (1988) ont analysé par diffraction X in-situ les transformations de cristaux de quartz et de coésite soumis, à température ambiante, à des pressions de confinement atteignant 35 GPa. Les observations rapportées par ces auteurs montrent une amorphisation du quartz détectée à partir de 25 GPa tandis que la coésite devient amorphe à partir de 30 GPa seulement. De plus, lors du retour à pression ambiante, on n'observe pas la transformation inverse qui ramènerait le matériau à sa structure cristalline originale, la phase amorphe subsiste à l'état métastable.

Différentes études ont été réalisées dans le but de comprendre cette amorphisation sous pression. Hemley (1987) a examiné par spectrométrie Raman l'évolution du spectre de phonons du quartz, de la coésite et de la stishovite sous pression. De leur côté,

Chelikowsky et al. (1991) ont modélisé l'amorphisation du quartz en calculant les nouvelles positions d'équilibre des atomes dans le quartz sous pression de confinement. Ces deux études expérimentales et théoriques mettent en évidence une diminution importante de l'angle inter-tétraèdres Si-O-Si. C'est cette variation qui serait responsable de l'effondrement de la structure cristalline. Cependant, Hemley et al. (1988) trouvent expérimentalement que cet effondrement apparaît vers 30 GPa. Chelikowsky et al. (1991) le prédisent vers 15 GPa, pression pour laquelle la distance O-O atteindrait une valeur minimale en dessous de laquelle les atomes d'oxygène n'auraient plus un volume suffisant pour assurer la stabilité de la structure du quartz. Ainsi, le cristal évoluerait vers un nouvel état, conduisant à l'amorphisation du solide. Enfin pour Binggeli et Chelikowsky (1991) l'amorphisation du quartz sous pression serait simplement une étape intermédiaire dans la transformation du sous-réseau d'oxygène en un sous-réseau cubique centré apparaissant à des pressions d'environ 60 GPa et conduisant à la formation de stishovite.

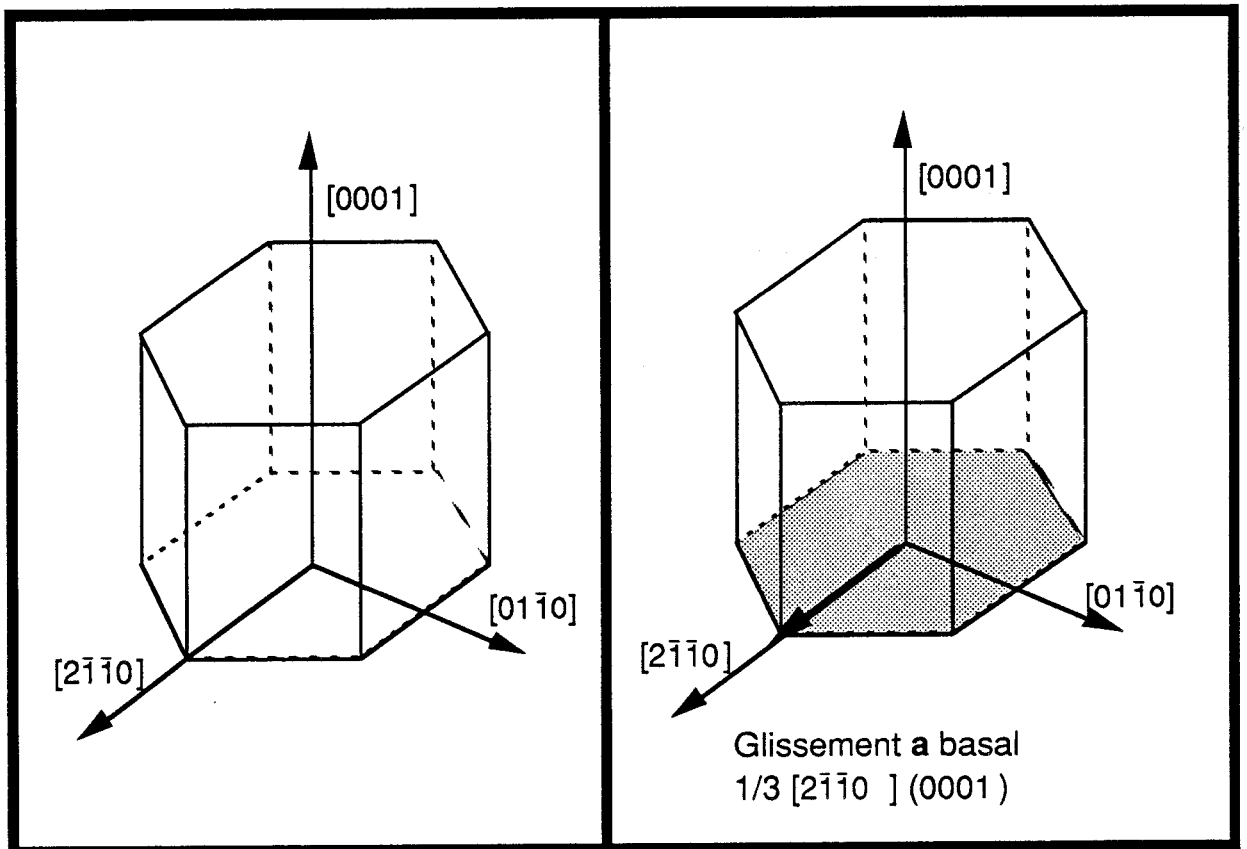
En conclusion, l'amorphisation du quartz sous pression est un phénomène détecté expérimentalement et prédit théoriquement. Les pressions seuil mesurées et calculées sont assez nettement différentes mais il faut bien noter que d'une part les modèles théoriques sont bâtis sur des simplifications, et que d'autre part, pour des raisons de cinétique évidentes, les mesures expérimentales peuvent conduire à une pression seuil nettement plus élevée que celle à laquelle la structure du quartz cesse d'être stable.

## II-4 : PROPRIETES MECANIKES DU QUARTZ

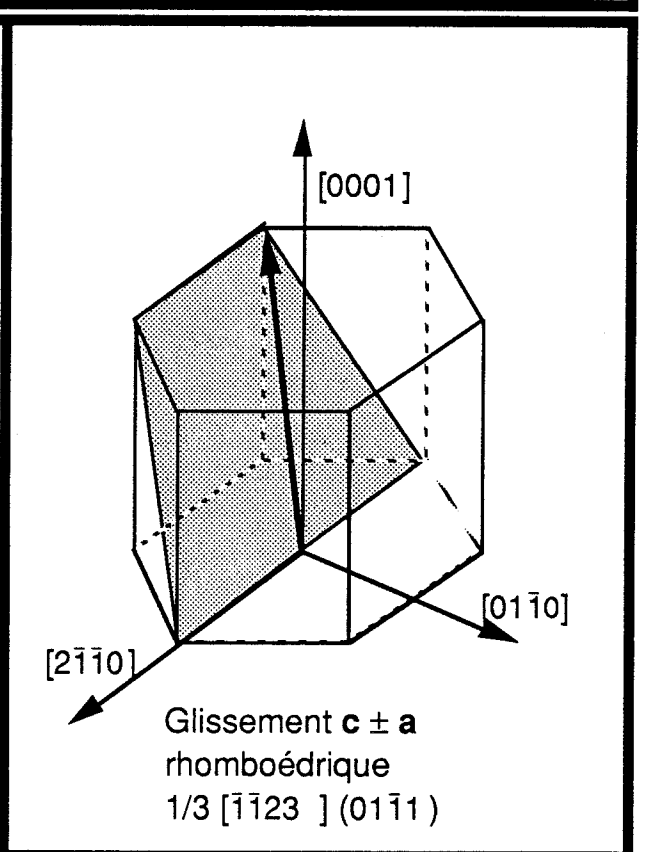
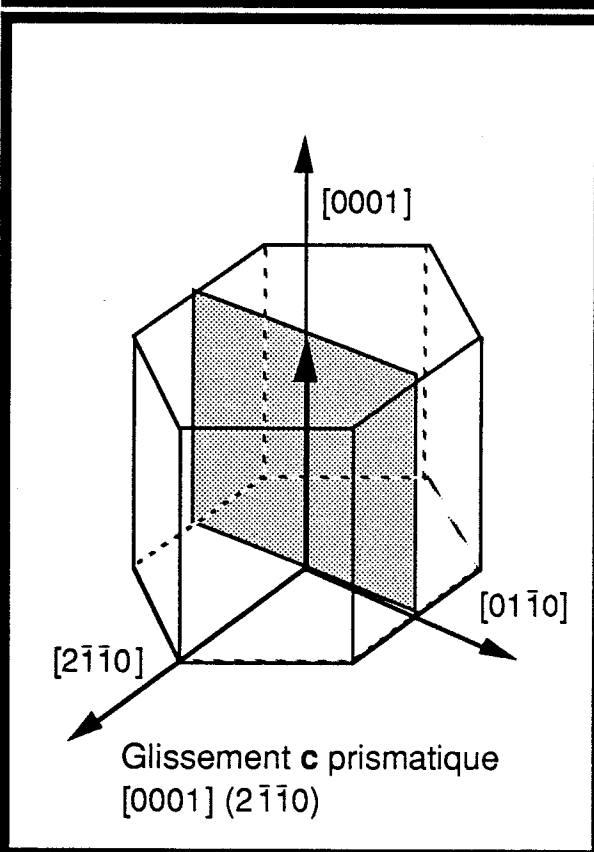
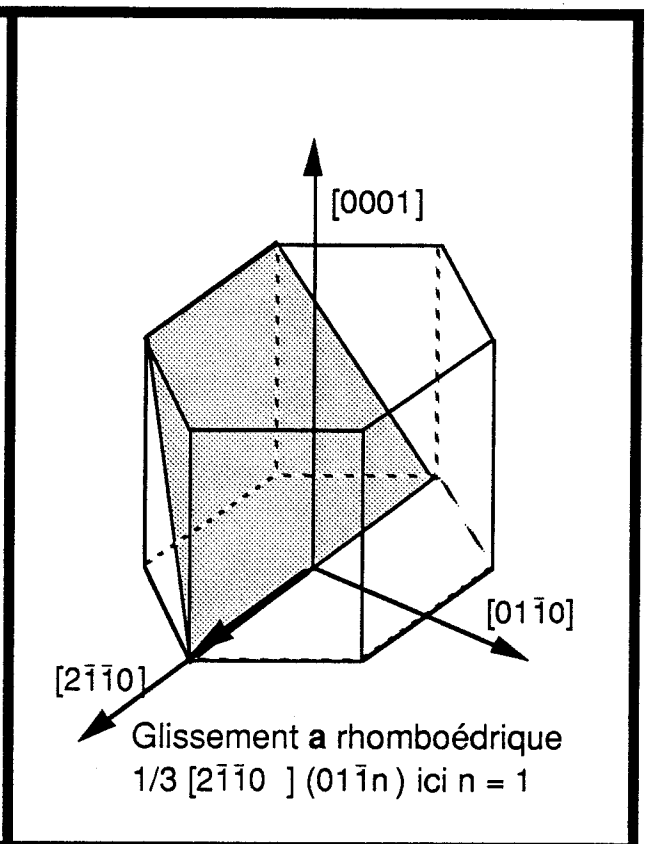
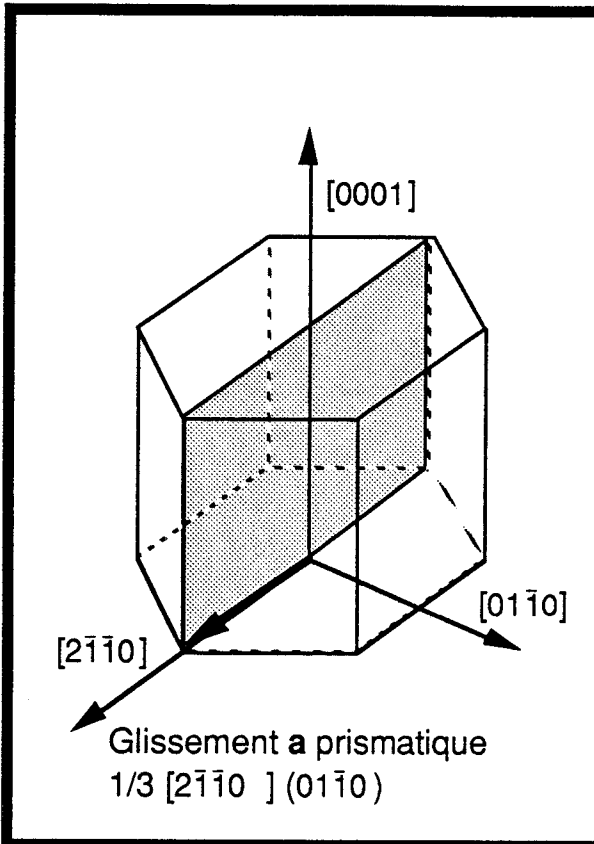
### II-4-a : Systèmes de glissement dans la structure du quartz

Les vecteurs de Bürgers usuels dans un cristal sont les plus petites translations du réseau. Dans le quartz on peut considérer dans l'ordre de longueur croissante **a** (4,9 Å); **c** (5,4 Å) et **a+c** (7,3 Å). Les plans de glissement possibles sont généralement des plans espacés (c'est-à-dire denses) qui contiennent les vecteurs de Bürgers. On peut donc considérer les systèmes de glissement suivants

- glissement basal :  $\mathbf{a}$  dans  $(0001)$
- glissement  $\mathbf{a}$  prismatique :  $\mathbf{a}$  dans  $\{10\bar{1}0\}$
- le glissement  $\mathbf{a}$  dans des plans pyramidaux  $\{10\bar{1}n\}$
- $\mathbf{c}$  dans les plans prismatiques : soit  $\mathbf{c}$  dans les plans  $\{10\bar{1}0\}$ , soit dans les plans  $\{2\bar{1}\bar{1}0\}$
- enfin les glissements  $\langle \mathbf{a} \pm \mathbf{c} \rangle$  dans les plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}1\}$ .



**Figure II-10:** Schémas de la maille du quartz avec les divers systèmes de glissement possibles.





Ceci représente un ensemble de 36 systèmes de glissement. Tous ont été observés dans le quartz humide et nombre d'auteurs ont étudié les propriétés de ces divers systèmes. Leurs résultats sont passablement différents et il y a eu plusieurs tentatives pour essayer de comprendre pourquoi de telles différences apparaissaient entre les mesures effectuées dans un laboratoire ou un autre, dans des expériences de fluage ou de déformation à vitesse imposée, dans une machine de Griggs ou en l'absence de pression de confinement. La dernière étude qui présente également une mise au point du travail effectué est la thèse de L. Trépied (1984). Trépied a bien montré que l'essentiel des différences entre les diverses études provenait du fait que l'état de l'eau (réellement dissoute ou sous forme de microinclusions) n'était pas du tout contrôlé et évoluait au cours des essais de déformation. Le résultat principal de l'ensemble de ces études est donc seulement que ces systèmes de glissement existent et que les glissement les plus faciles sont dans l'ordre décroissant le système de glissement **a** basal, puis **a** prismatique et **a** pyramidal, puis enfin **c** prismatique. Le glissement  $\langle \mathbf{c} \pm \mathbf{a} \rangle$  dans les plans rhomboédriques ne peut être activé qu'à haute température et sous forte contrainte. Cette hiérarchie découle vraisemblablement des structures fines des coeurs des dislocations (dissociations). Pour les dislocations **c** aucune évidence expérimentale ni aucun modèle de dissociation n'ont été publiés. Pour les dislocations **a** les modèles de Trépied et Doukhan (1978) et Doukhan et Trépied (1985) proposent des dissociations en deux partielles dans les plans (0001) et  $\{10\bar{1}0\}$ . Il n'y a pas de confirmation expérimentale directe (observation en MET à haute résolution) de la dissociation zonale dans le plan de base, mais ce modèle est cohérent avec la formation de lamelles de macles du Brésil. Pour les modèles de dissociation des dislocations **a** dans d'autres plans, les récentes observations en MET de Cordier (1992, communication privée) confirment à tout le moins que ces dislocations peuvent se dissocier largement dans certains cas (sous forte contrainte) dans les plans suggérés, ce qui justifie que ces systèmes de glissement correspondants sont observés préférentiellement à d'autres.

#### II-4-b : Déformation plastique

Bien que le quartz soit un minéral nominalelement anhydre, il contient presque toujours de faibles quantités d'eau qui peuvent être soit réellement dissoutes dans son réseau sous forme de défauts ponctuels (dont la structure n'est pas complètement élucidée à ce jour) soit incluses sous forme de microinclusions fluides. Quelle que soit la forme sous laquelle cette "eau" est incorporée dans le quartz, elle affecte très fortement ses propriétés rhéologiques. Un quartz "humide" est plus ductile qu'un quartz "sec", c'est le phénomène d'adoucissement hydrolitique (hydrolitic weakening) découvert par Griggs et Blacic à la fin des années soixante.

Le modèle actuellement le plus largement accepté pour les défauts ponctuels associés à l'eau est un défaut substitutionnel noté  $(4H)_Si$ . Quatre protons se substitueraient à un atome de silicium. Il est équivalent de dire que deux molécules d'eau  $2 H_2O$  se substituent à une "molécule"  $SiO_2$ . Ce défaut peut être détecté par spectroscopie d'absorption infra-rouge et sa solubilité a été déterminée par Cordier (1989); à une température de  $700^\circ C$  et une pression de 0,8 GPa, elle est d'environ 100 ppm atomiques pour le rapport H/Si. Pour des pressions plus faibles cette solubilité diminue rapidement et tombe à des valeurs extrêmement faibles qui ne sont plus détectables directement. Seule leur influence sur les propriétés rhéologiques du matériau permettent de comparer qualitativement des quartz très faiblement humides.

Pour des contenus en eau supérieurs à la solubilité des défauts ponctuels, l'eau dans le quartz apparaît sous forme de microinclusions d'eau moléculaire. En modifiant la pression et/ou la température, on peut placer le quartz dans des conditions où les défauts ponctuels sont en sursaturation. Ils précipitent alors pour former des microinclusions d'eau moléculaire qui sont aisément détectées par microscopie électronique. La cinétique de précipitation dépend des taux de nucléation et de croissance (qui dépendent à leur tour des conditions de température et de pression). Un recuit à pression ambiante et à température modérée ( $400^\circ C$ , une semaine) conduit à un fort taux de nucléation de bulles et une faible croissance de celles-ci; de sorte que l'on a précipitation de gouttes d'eau très petites (diamètre de l'ordre de 10 nm) et en grande densité alors qu'à plus haute température ( $800^\circ C$ , quelques minutes), les précipités seront moins nombreux mais de plus grande

taille (500 nm). Si l'on poursuit le recuit, la densité de bulles diminue encore et leur taille croît. C'est le phénomène de maturation d'Ostwald.

Le régime de déformation du quartz (limite élastique, taux de durcissement, ...) dépend du contenu initial en eau et de son état de saturation dans le cristal. Si le contenu en eau est inférieur à la saturation dans les conditions T et P imposées, seul le glissement des dislocations peut être activé (il est fortement assisté par la présence des défauts ponctuels qui augmentent la mobilité des dislocations). Dans ce cas, le glissement des dislocations est contrôlé par la friction de réseau (régime de Peierls). Les dislocations glissent lentement dans le cristal via un mécanisme de nucléation et migration de doubles décrochements. Les deux étapes nucléation et migration de ces doubles décrochements sont activées par la présence d'un défaut ponctuel de sorte que le glissement des dislocations est contrôlé par la migration des défauts ponctuels "eau" (Doukhan et Trépied, 1985; Cordier et Doukhan, 1989).

Si, au contraire, le cristal est sursaturé en eau (présence de microinclusions d'eau moléculaire), le mûrissement d'Ostwald est le processus dominant. Il s'accomplit par la migration de défauts ponctuels "eau" depuis les sources (petites bulles) vers les puits (grosses bulles), mais pour relaxer la pression d'eau dans les bulles qui grossissent, de la matière  $\text{SiO}_2$  doit en être retirée continuellement. Ceci se fait par migration des atomes Si et O depuis la surface de ces bulles (sources) vers les puits que sont les dislocations. En conséquence les dislocations montent, produisant la déformation plastique. La sous-structure de dislocations est donc très différente. On observe des sous-joints assez bien organisés, il y a restauration, le quartz humide sursaturé apparaît ductile et assez mou. Bien sûr, il y a aussi un glissement des dislocations assisté par la présence des défauts ponctuels mais l'essentiel du phénomène est gouverné par le mûrissement d'Ostwald des petites bulles d'eau. C'est sans doute ce dernier mécanisme qui est responsable des déformations naturelles à température modérée (400 à 600 °C) des grains de quartz des roches de l'écorce terrestre aux vitesses de déformation très lentes et sous des contraintes déviatoriques faibles.

#### II-4-c : Déformation par maclage mécanique

La déformation par maclage est généralement produite par des conditions de déformation rapide, sous forte contrainte à température modérée. Elle a été observée pour la première fois dans le quartz par McLaren et al. (1967) dans des monocristaux de quartz sec, lors d'essais de déformation à des températures comprises entre 500°C et 700°C, sous une pression de confinement de l'ordre de 2 GPa et une contrainte déviatorique élevée (probablement de l'ordre de 4 GPa). Ces auteurs ont observé en MET une grande densité de très fines lamelles de macles du Brésil dans le plan de base (0001). Dans les conditions de déformation indiquées, le maclage mécanique semble bien être le processus de déformation majoritaire, donc le plus facile. Les auteurs interprètent ce résultat en supposant que les macles sont produites par le glissement de dislocations partielles de vecteur de Burgers  $a/2$  dissociées dans le plan de base. Trépiéd et Doukhan (1978) ont affiné ce modèle en suggérant une dissociation zonale de ces dislocations mais aucun auteur n'a pu mettre en évidence ces dislocations dissociées. Il semble que dès leur dissociation, elles glisseraient très rapidement et sortiraient du cristal laissant derrière elles une lamelle élémentaire de macle du Brésil.

#### II-4-d : Restauration et recristallisation

La restauration et la recristallisation du quartz ont été largement étudiées par Hobbs (1968). Ces deux phénomènes dépendent fortement du contenu en eau du cristal. En effet, on a rappelé ci-dessus que la présence d'eau favorisait la montée des dislocations. Or, la restauration se caractérise par la polygonisation, c'est à dire l'arrangement des dislocations en sous-joints, ce qui conduit à une configuration des défauts énergétiquement plus favorable. La montée des dislocations étant indispensable à la restauration, un quartz sec dans un environnement sec ne pourrait pas se restaurer. Il en va de même de la recristallisation qui est gouvernée par la diffusion des atomes Si et O. Cette diffusion n'est efficace aux conditions usuelles régnant dans l'écorce terrestre qu'en présence d'eau.



## **Chapitre III**

### **Techniques expérimentales**



Le travail présenté dans ce mémoire est essentiellement un travail d'investigation par microscopie électronique en transmission (MET) d'échantillons de quartz. Différentes techniques ont été utilisées pour la préparation des échantillons. Elles seront détaillées dans ce chapitre ainsi que les techniques d'observation au microscope électronique utilisées pour éviter les phénomènes gênants d'irradiation de l'échantillon par le faisceau d'électrons. Cette irradiation peut en effet entraîner une amorphisation rapide de la zone étudiée.

### III-1 : PREPARATION DES ECHANTILLONS

La plupart des échantillons étudiés proviennent de roches collectées sur des lieux d'impacts météoritiques. Ces roches ayant subi l'onde de choc sont souvent très fissurées et donc parfois très friables. Par conséquent leur manipulation est délicate et la préparation de lames minces (épaisseur de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$  ou même moins) pour l'observation en MET particulièrement difficile. Les grains de quartz provenant des sédiments de la limite K/T sont des grains individuels qu'il a fallu parfois trier au sein d'une poudre ou une boue; la taille de ces grains n'atteint pas 500  $\mu\text{m}$  pour les plus gros. Il était nécessaire de mettre au point des méthodes de préparation des lames minces permettant de s'affranchir de ces contraintes.

Nous présentons ici les techniques de préparation des échantillons utilisées en suivant l'ordre de préparation : tout d'abord l'enrobage des échantillons (roche fissurée ou grains individuels) puis amincissement et polissage mécanique et enfin l'amincissement final (ionique). Nous examinons enfin les limitations et restrictions dues à l'échantillonnage.

#### III-1-a : Enrobage des échantillons

Dans le but d'observer les échantillons difficilement manipulables, nous avons utilisé trois types d'enrobages différents.



Les grains de quartz provenant de la limite K/T (site de Raton Basin, Colorado) nous ont été gracieusement fournis par Neville Carter. Il s'agissait d'un concentré de grains de quartz déjà trié (c'est-à-dire qu'en principe il n'y avait plus que du quartz, mais tous les grains de quartz présents n'avaient pas nécessairement été choqués puisque ces sédiments sont un mélange de matière locale détritique et de poussières retombée après le choc). Cette matière se présentait sous forme d'une poussière de grains séparés dont la taille des plus gros n'atteignait pas 500  $\mu\text{m}$ . Nous avons testé plusieurs enrobages, le but étant d'obtenir à la fin du polissage mécanique une petite rondelle de 3 mm de diamètre et 30  $\mu\text{m}$  d'épaisseur dont les divers composants (grains de quartz et matière d'enrobage) présenteraient des vitesses d'amincissement similaires au cours de l'amincissement final à l'amincisseur ionique. Le premier matériau d'enrobage testé était une poudre de verre au plomb (borosilicate de plomb et de zinc, code 7575, commercialisé par la société Corning) qui présente une température de transition vitreuse très basse de l'ordre de 380°C. On espérait que ce verre riche en silice présenterait une vitesse d'amincissement ionique comparable à celle du quartz. Il suffisait donc de placer les grains de quartz de la limite K/T au fond d'un moule (une fine feuille d'aluminium), de les recouvrir de la poudre de verre et de faire fondre le verre pendant une heure à 450°C (température recommandée par le fabricant). Le verre liquide et bien fluide devait s'écouler entre les grains et les lier. Afin de nous assurer que cette étape de chauffage ne produisait pas d'évolution de la microstructure de défauts dans les grains de quartz choqués (précipitation d'eau par exemple) nous avons d'abord effectué des essais sur un quartz humide qui avait été déformé en machine de Griggs (pour y introduire des dislocations dont une grande densité accélère la précipitation de l'eau grâce à la grande densité de sites de nucléation que représentent ces dislocations). Aucune précipitation d'eau n'a été observée dans ce premier test et ces résultats nous ont permis d'appliquer la méthode au matériau de la limite K/T.

Nous avons par la suite mis au point une deuxième méthode de préparation qui supprimait le recuit à température relativement élevée. Nous avons utilisé pour cela une résine acrylique (résine LR White Hard grade, London Resin Company, commercialisée en France par Link analytical). Les grains de quartz sont placés dans des moules en plastique, puis la résine est versée dessus. L'ensemble est placé dans une étuve à 100°C sous pression atmosphérique

pendant trois heures. Au bout des trois heures, le système de chauffage est coupé de façon à revenir doucement à la température ambiante. Cette méthode est particulièrement intéressante avec les grains déjà triés de Raton Basin.

La méthode utilisée pour rendre manipulables les roches provenant du site de Ries Crater, qui sont très friables, est la suivante. Un morceau de la roche est déposé dans un moule (diamètre  $\approx 25$  mm) qui est placé dans une enceinte sous vide. La résine qui est introduite dans l'enceinte est versée sur ces grains. La mise sous vide permet à la résine de s'écouler le mieux possible dans les fissures afin de conférer à la roche une bonne cohésion. Ensuite, la pastille ainsi réalisée est placée dans une étuve pendant 2 heures à  $70^{\circ}\text{C}$  pour permettre le durcissement de la résine. La résine utilisée est une résine époxy (résine et durcisseur Epofix, commercialisés par Struers).

### III-1-b : Polissage mécanique

Dans tous les échantillons étudiés (enrobés lorsque c'était nécessaire), nous avons découpé des lames d'épaisseur  $\approx 500$   $\mu\text{m}$  à l'aide d'une scie diamantée fine et nous avons poli les deux faces mécaniquement en diminuant l'épaisseur jusqu'à  $30$   $\mu\text{m}$  environ. L'abrasion a été réalisée à l'aide de carbure de silicium de granulométrie décroissante (jusqu'au grade 4000 qui correspond à des grains d'abrasif d'environ  $1$   $\mu\text{m}$ ). L'étape de polissage mécanique final a été réalisée sur drap avec une poudre d'oxyde de cérium ( $\text{CeO}_2$ ) qui donne un excellent poli optique. Les lames ainsi obtenues ont été systématiquement observées au microscope optique afin de sélectionner les grains à amincir ioniquement pour observation subséquente en MET.

### III-1-c : Amincissement final (ionique)

L'amincissement ionique consiste à bombarder l'échantillon par un faisceau d'ions d'argon accélérés à une tension de  $4,5$  à  $5$  kV. L'érosion progressive de l'échantillon permet de faire un trou en son centre, dont les bords très minces sont transparents aux électrons et permettent l'observation en MET (soit une épaisseur d'environ  $0,1$  à  $0,5$   $\mu\text{m}$ ). Pour obtenir une zone observable la plus grande possible, on incline le faisceau d'un angle faible par rapport à la surface de

l'échantillon (incidence assez rasante avec un angle initial de  $\approx 13^\circ$  puis  $11^\circ$  pour la fin de l'opération pendant la dernière demi-heure). Le courant ionique est de l'ordre de 0,5 mA par canon et la durée totale de l'opération amincissement ionique varie de quelques heures à une journée pour un échantillon.

Le quartz étant un isolant électrique, il est nécessaire de déposer sur la surface de l'échantillon à observer en MET un film extrêmement fin de carbone d'environ 500 Å pour éviter qu'il ne se charge électriquement dans le microscope, ce qui conduirait à des déflexions du faisceau et donc à de l'astigmatisme ou pire, à l'impossibilité d'obtenir une image. Ce film est déposé par évaporation sous vide d'atomes de carbone formés par un arc électrique passant entre deux électrodes de carbone pur.

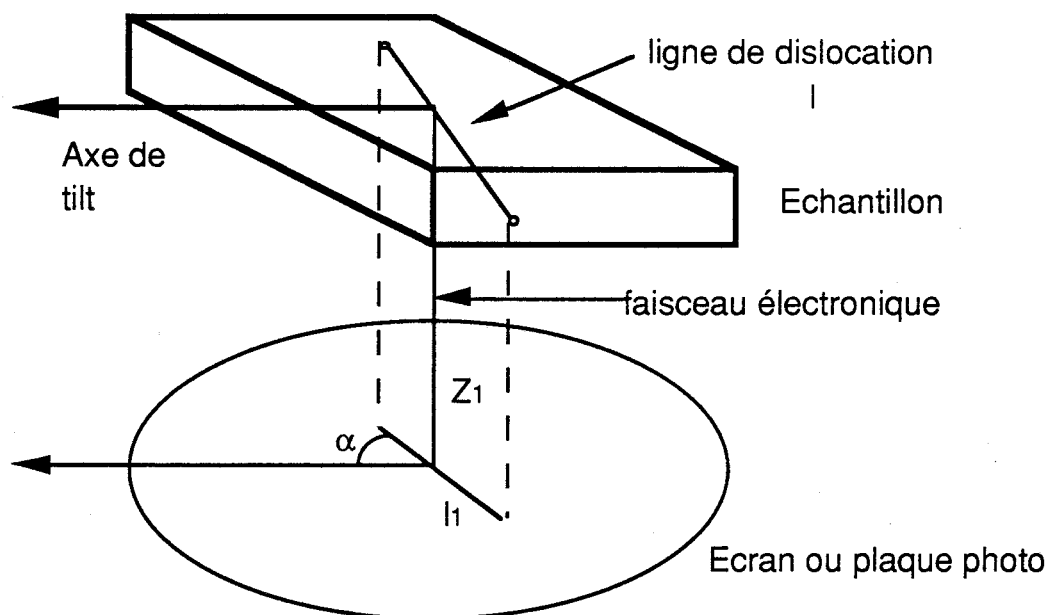
### III-2 : CONDITIONS D'OBSERVATION EN MET

L'irradiation par le faisceau électronique est bien sûr nécessaire pour permettre l'observation des lames minces de quartz en MET. Le principal inconvénient de la méthode est l'extrême sensibilité du quartz aux électrons qui induisent en quelques secondes des défauts ponctuels conduisant à une amorphisation progressive qui devient totale en quelques minutes. Il faut donc travailler avec des doses minimales, ce qui impose des conditions d'observation peu confortables (faible luminosité, nécessité de travailler très rapidement,...). Le risque existe toujours que les observations et caractérisations soient incomplètes à la fin de la session de travail, surtout dans le cas où ces caractérisations exigent toute une série de micrographies sous des inclinaisons différentes pour déterminer l'orientation des défauts étendus tels que des défauts plans ou des dislocations rectilignes. Les méthodes d'analyse stéréographique utilisées dans cette étude sont les méthodes standards, mais appliquées avec le souci d'une irradiation minimum. Nous rappelons brièvement ci-dessous ces méthodes d'analyse stéréographique.

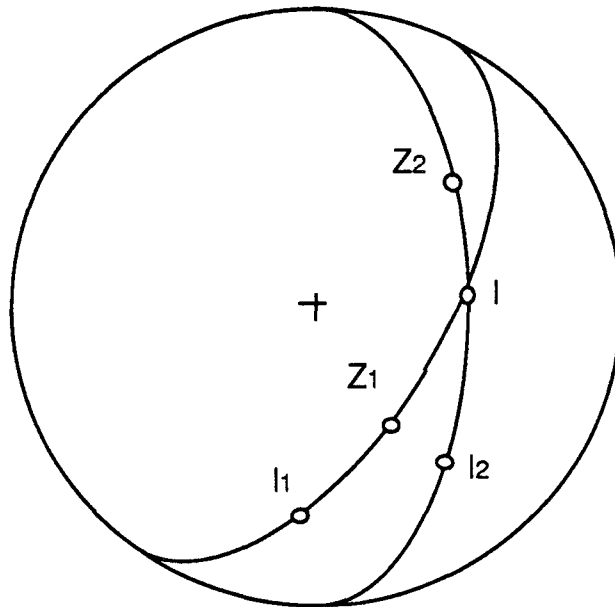
#### III-2-a : Détermination de l'orientation d'une ligne de dislocation

Ce que l'on observe en MET est en fait la projection sur un plan (l'écran) d'un objet (ligne de dislocation) qui a une certaine

orientation dans l'espace. La projection se fait parallèlement au faisceau électronique, perpendiculairement à l'écran qui est aussi le lieu d'enregistrement de la micrographie électronique. La ligne de dislocation dont on veut déterminer l'orientation se trouve donc dans un plan défini par sa projection (la droite observée sur l'écran ou la plaque photo, repérée  $l_1$ ) et la direction de projection (faisceau électronique)(repéré  $Z_1$ ). Il s'agit donc de déterminer ce plan et le reporter sur une projection stéréographique, puis de recommencer l'opération pour d'autres conditions d'observation (en changeant l'inclinaison de l'objet grâce à la platine goniométrique). On réalise donc plusieurs clichés sous des angles d'inclinaison de la lame mince différents et on obtient plusieurs plans dans lesquels se trouve la dislocation. La ligne de dislocation (repérée  $l$ ) est située à l'intersection de ces plans.



**Figure III-1:** Projection d'une ligne de dislocation "l" sur l'écran.



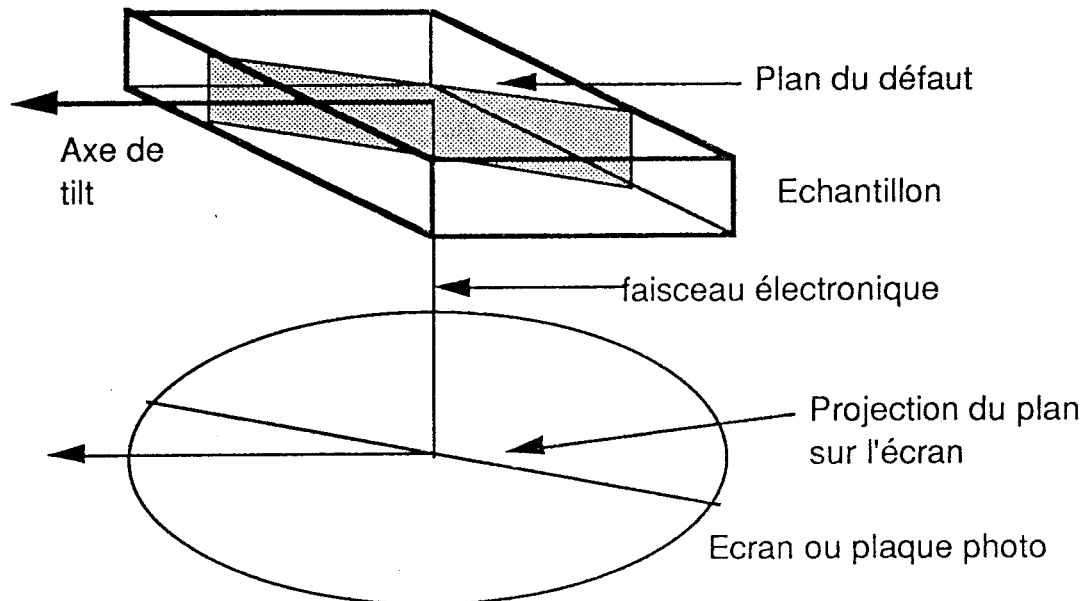
**Figure III-2:** Projection stéréographique permettant l'orientation de la ligne de dislocation. L'orientation de la ligne de dislocation "I" est donnée par l'intersection du plan défini par "Z<sub>1</sub>" (faisceau électronique) et "I<sub>1</sub>" (projection de la ligne de dislocation) et du plan défini par "Z<sub>2</sub>" et "I<sub>2</sub>".

### III-2-b : Indexation d'un plan de défaut

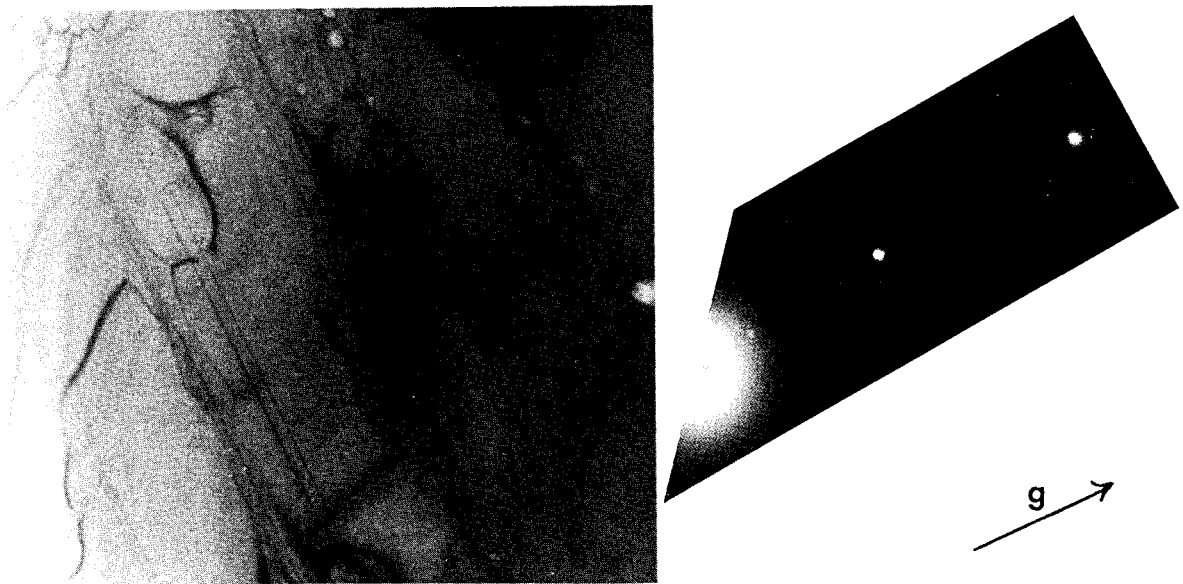
Il y a pour cela plusieurs solutions. Si le plan dont on veut caractériser l'orientation contient deux directions visualisées par des dislocations, il suffit d'indexer les directions de ces deux dislocations par la méthode décrite ci-dessus.

Si cela n'est pas possible, on utilise une autre méthode qui est applicable si le plan en question a des indices cristallographiques simples, (par exemple (0001), (10 $\bar{1}$ 0) ou (11 $\bar{2}$ 0)). Cette deuxième solution consiste à incliner l'échantillon de façon à mettre le défaut "de bout". Dans ce cas, le défaut est vu comme une ligne très fine et son plan est parallèle au faisceau électronique. De plus, sur le cliché de diffraction correspondant on observe la direction du réseau réciproque qui est perpendiculaire au défaut et a donc les mêmes indices que ceux du plan du défaut. On obtient ainsi un couple : le plan du réseau observé dans le réseau direct (image en "deux ondes") et d'indices dans ce réseau direct (hkil) d'une part; et, d'autre part, la direction du réseau réciproque qui lui est

perpendiculaire observée dans l'espace réciproque (condition d'observation : diffraction électronique) et qui a pour indices  $[hkl]^*$ . Cette méthode permet une indexation univoque du plan du défaut.



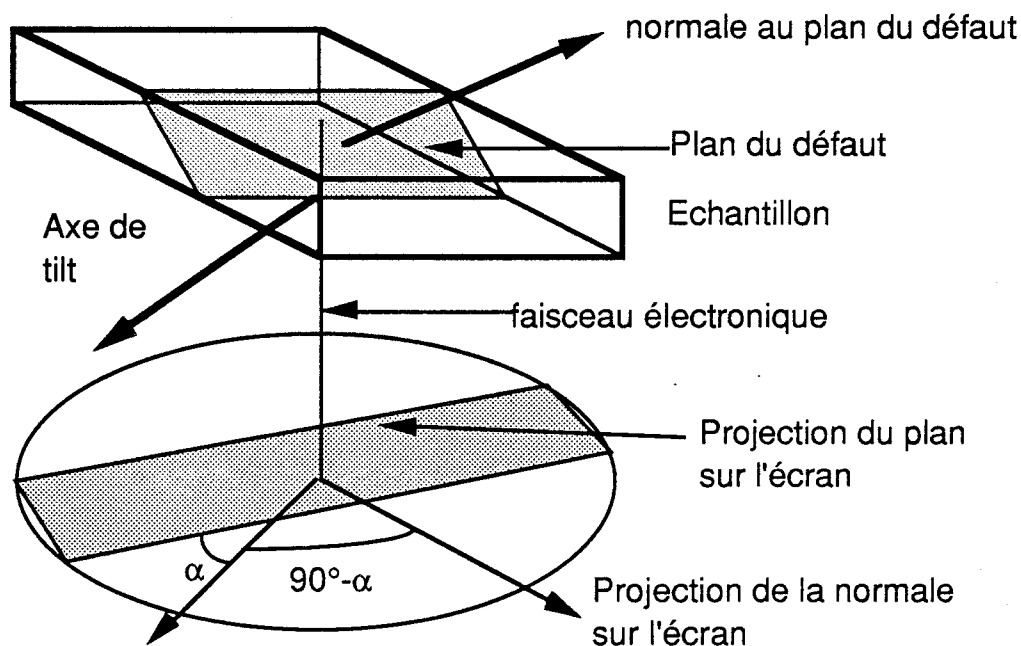
**Figure III-3:** Projection sur l'écran d'un plan de défaut mis "de bout".



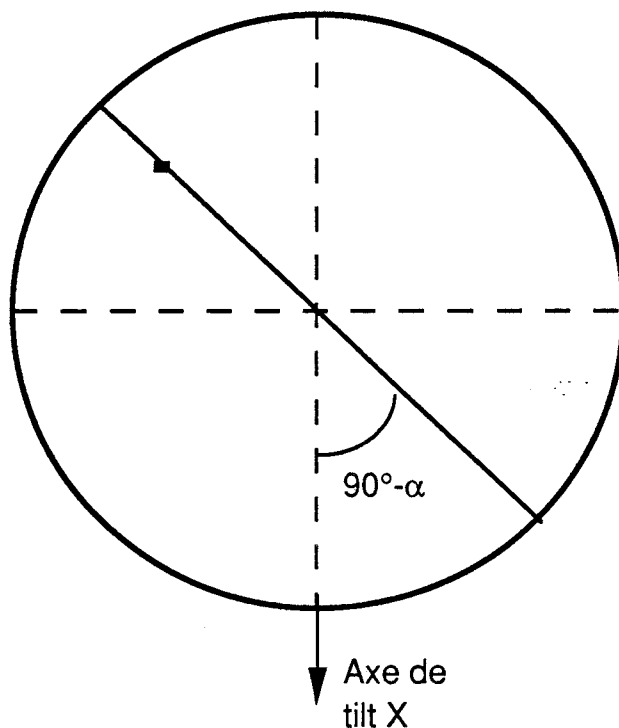
**Figure III-4:** Photo d'un défaut situé dans le plan de base et vu "de bout" (barre d'échelle  $1\mu\text{m}$ ). Le vecteur de diffraction  $\mathbf{g}=[0003]$  est perpendiculaire au plan du défaut.

Cependant, il n'est pas toujours possible d'utiliser cette méthode. En effet, les angles d'inclinaison de l'échantillon sont limités à environ  $\pm 45^\circ$ ; cela implique que, pour un plan très incliné, il sera impossible de le mettre "de bout". D'autre part, il existe certaines limitations dues au quartz lui-même. En effet, pour des plans d'indices élevés, il n'est pas toujours possible d'apprécier l'inclinaison pour laquelle le défaut est "de bout" (épaisseur minimum). En particulier, si le plan du défaut a pour indices  $\{10\bar{1}3\}$  ou  $\{10\bar{1}4\}$ . Ceci est dû au fait que les facteurs de structure du quartz ne permettent d'avoir un bon contraste d'images en deux ondes qu'avec les vecteurs de diffraction  $\{10\bar{1}1\}$ . Les vecteurs de diffraction  $\{10\bar{1}0\}$  et  $\{10\bar{1}2\}$  permettent encore, malgré un contraste très moyen, d'obtenir des images présentant un contraste suffisant pour déterminer si le défaut est "de bout" ou non. Pour des défauts situés par exemple soit dans  $\{10\bar{1}3\}$  soit dans  $\{10\bar{1}4\}$ , on note que l'angle entre ces deux plans est seulement de  $5^\circ$ ; de sorte que la caractérisation peut en être incertaine.

La dernière méthode utilisée n'est pas toujours très précise, mais elle permet néanmoins en la recoupant éventuellement avec les précédentes d'indexer les plans de défauts qui ne sont pas déterminables correctement autrement. Cette méthode consiste à évaluer sur micrographie l'angle  $\alpha$  entre l'axe d'inclinaison de la platine goniométrique (axe OX) et la projection d'une direction du plan du défaut (cette direction est le plus souvent l'intersection du plan de défaut avec la surface de la lame mince). Le défaut n'étant pas "de bout", la normale au plan n'est pas dans le plan de la micrographie. Par contre, cette normale se trouve dans un plan dont l'intersection avec le plan de la micrographie fait un angle  $\alpha+90^\circ$  ou  $90^\circ-\alpha$  avec l'axe OX. Le plan contenant la normale au plan du défaut est représenté par une droite sur la projection stéréographique (parce que l'échantillon n'est pas incliné lorsque l'on mesure l'angle  $\alpha$ ). En mesurant la largeur du défaut sur la micrographie et en connaissant l'épaisseur de l'échantillon à cet endroit (on peut la mesurer par la méthode des taches de contamination), on en déduit la position de la normale sur la projection stéréographique. Cette méthode n'est valable que si la micrographie est prise à inclinaison nulle.



**Figure III-5:** Projection sur l'écran d'un plan incliné. La projection de la normale au plan fait un angle  $90^\circ - \alpha$  avec la projection de l'axe de tilt OX.



**Figure III-6:** Projection stéréographique correspondante. La normale au plan se trouve sur une droite faisant l'angle  $90^\circ - \alpha$  avec l'axe de tilt. On repère la position de la normale sur la projection grâce à la mesure de la largeur du défaut et à l'épaisseur de la lame au même endroit.

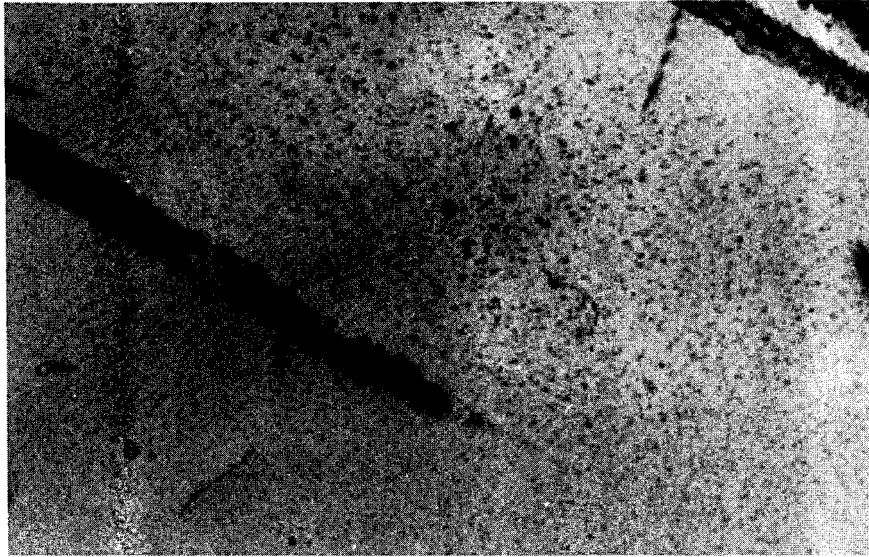


### III-2-c : Limitations

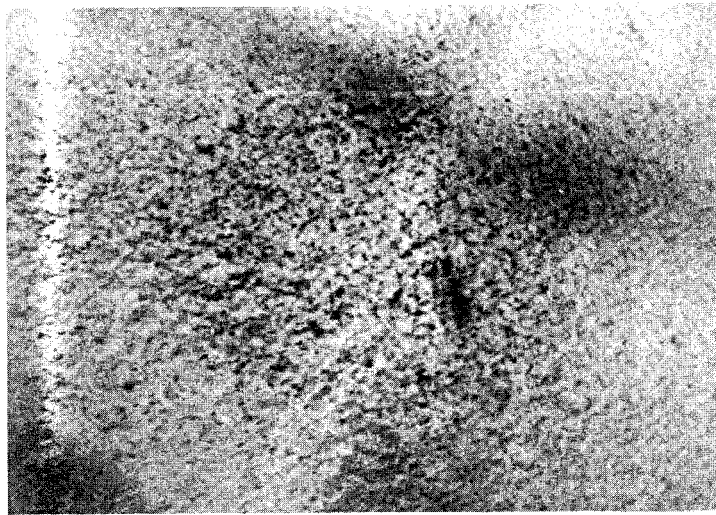
La première limitation est liée au fort grossissement du MET (minimum  $\approx x10\ 000$ ) qui interdit l'observation de vastes régions pourtant fort utiles si l'on veut comparer les observations de MET à celles réalisées optiquement. C'est donc la représentativité de la MET qui est en cause. On ne peut cependant discuter ce problème de représentativité qu'en précisant en même temps le choix des sujets à étudier et le choix des objets sélectionnés pour l'étude. Cela revient à dire que le microscope électronique n'est pas une "super-loupe" et que son champ d'application n'est en aucun cas superposable à (ou l'extension de) celui du microscope optique polarisant usuel extensivement utilisé par les géologues par exemple. En effet, la taille des sites d'impact considérés (quelques dizaines de kilomètres carrés) n'autorise pas une généralisation à partir d'une ou deux lames de microscopie électronique. C'est pour cela que nous nous sommes efforcés de multiplier les observations sur une même roche jusqu'à obtenir une reproductibilité satisfaisante des observations. Par contre la possibilité de réaliser des images à fort grossissement en MET ( $x100\ 000$  par exemple) est un énorme avantage pour caractériser des défauts submicroniques et nous avons largement utilisé cet avantage au cours de cette étude. Nous avons également essayé tout au long de notre travail de répondre à des questions concernant les mécanismes de formation des défauts de choc plutôt que de tenter une description statistiquement représentative des densités de tel ou tel défaut autour d'un site d'impact.

La seconde limitation à notre étude par MET est liée au matériau lui même. En effet, on a dit plus haut que le quartz est très sensible à l'irradiation électronique. Ceci interdit toute une gamme de techniques telles que la haute résolution par exemple surtout lorsque l'un des problèmes à résoudre est l'observation d'une transition cristal-amorphe qui est justement celle induite par le faisceau électronique. Nous avons porté une attention particulière à ce problème et, en règle générale, les micrographies électroniques présentées ne portent pas (sauf indication contraire) de trace d'irradiation. Cette limitation peut en partie être surmontée en utilisant la technique appelée "faisceaux faiblement excités" ce qui ne signifie pas que l'on irradie peu. En bref, il s'agit d'une technique de champ sombre où ne sont imagées que les zones cristallines présentant une orientation assez proche de celle de la réflexion de

Bragg. Les zones amorphes ou amorphisées par le faisceau électronique sont donc peu visibles et la technique, malgré quelques inconvénients (faible contraste en particulier), a été largement utilisée.



**Figure III-7:** Photo montrant une zone faiblement irradiée.(barre d'échelle 0,5 $\mu$ m)



**Figure III-8:** Zone fortement irradiée (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



## **Chapitre IV**

### **Observations**



Nous présentons dans ce chapitre nos observations et les caractérisations que nous avons effectuées par microscopie électronique sur les échantillons de quartz choqués provenant des divers sites étudiés. Le but de cette étude était d'aboutir à une caractérisation aussi complète que possible des défauts engendrés dans le matériau quartz par les ondes de choc. Nous voulions répondre ainsi à un certain nombre de questions telles que: les microstructures de ces PDF sont-elles toutes identiques ou varient-elles avec les paramètres de l'onde de choc tels que son intensité ou sa durée? Un métamorphisme post-choc affecte-t-il ces microstructures? Si oui, comment? Et que peut-on alors "retrouver" sous ces modifications?

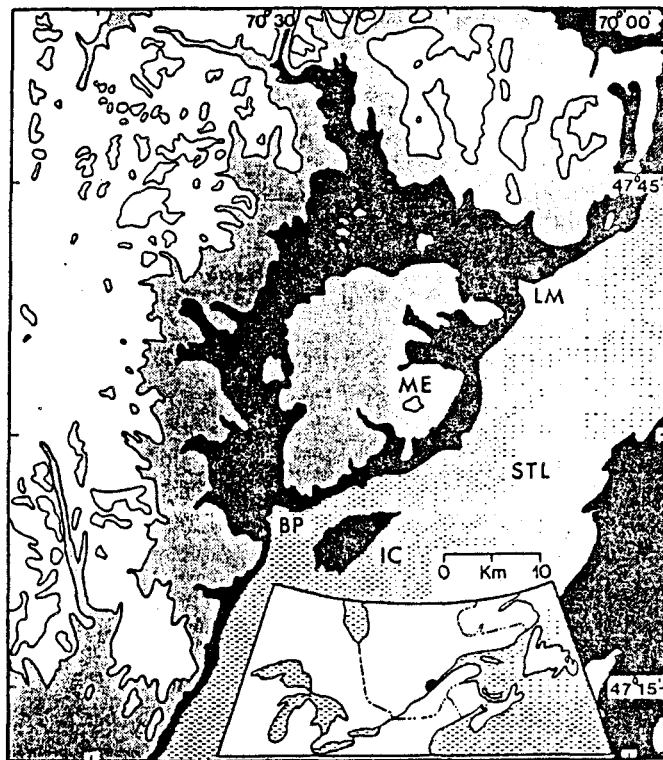
L'ensemble de nos observations par MET confirme complètement le fait saillant des observations optiques, à savoir que les PDF sont des bandes ou lamelles rectilignes et étroites parallèles aux plans d'indices  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3, 4$  ou  $\infty$ . Par contre, la densité de PDF détectés électroniquement est nettement plus élevée que celle observée optiquement. Il est assez vraisemblable que ce que l'on détecte optiquement est constitué de "paquets" de PDF plutôt que de PDF individuels. Ceci explique le fait que nous avons dans plusieurs cas détecté en MET des PDF dans des grains de quartz qui paraissaient vierges de tels défauts en microscopie optique. Au delà de cette relative convergence entre MET et microscopie optique, nos résultats laissent apparaître de grandes différences d'un site à l'autre avec des microstructures de défauts différentes et ceci justifie a posteriori cette étude. Nous présentons nos investigations site après site, puis nous comparons nos résultats et tentons une première synthèse.

#### IV-1 : SITES DE LA MALBAIE ET SLATE ISLANDS

##### IV-1-a : Contexte géologique

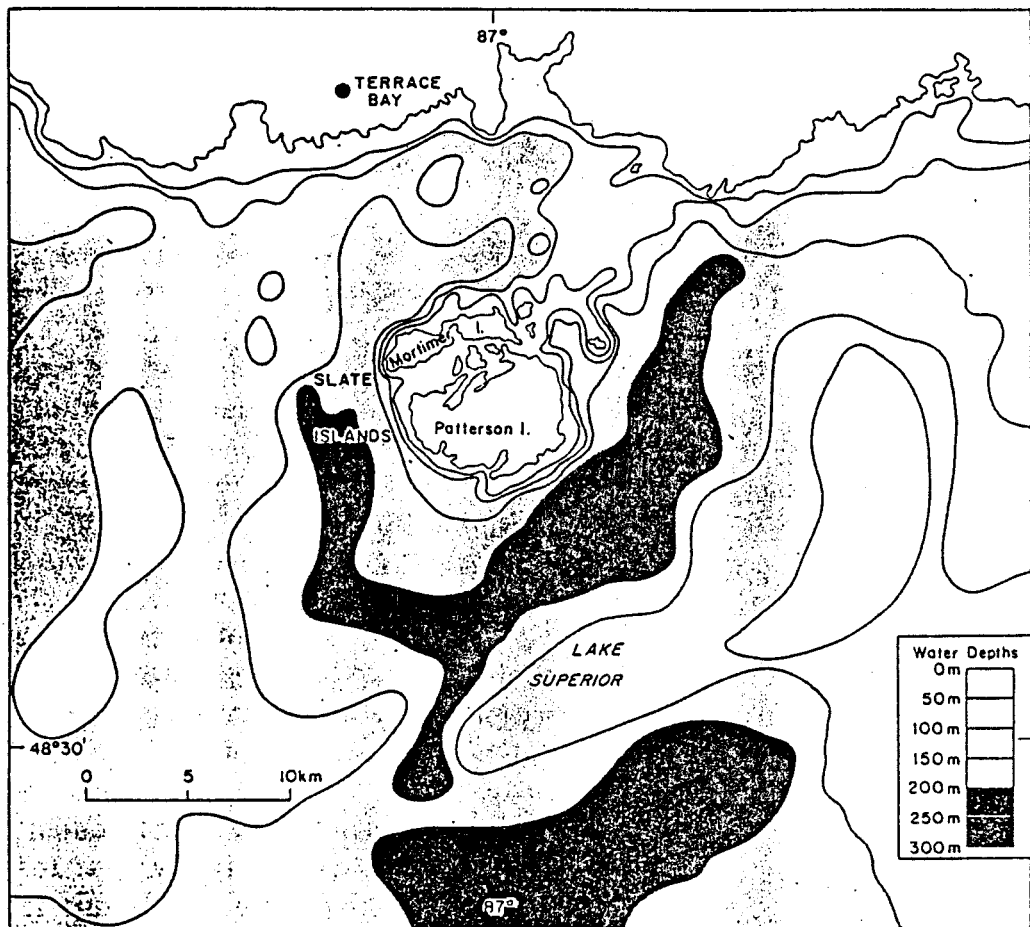
Le site de La Malbaie, également dénommé Charlevoix, est un site d'impact météoritique vieux d'environ 350 millions d'années situé au Québec. Il se présente aujourd'hui sous la forme d'une dépression d'environ 35 kilomètres de diamètre (Robertson, 1975).

La structure du cratère d'impact est complexe, car sa partie centrale a été relevée lors de l'impact. De nombreux indices de choc ont été retrouvés sur ce site et son origine d'impact météoritique semble bien établie et unanimement reconnue (Robertson, 1975; Pagel et Poty, 1975). Les échantillons que nous avons observés ont été collectés par French en 1968. Il s'agit d'un granite provenant du côté nord-est du Mont des Eboulements (correspondant à la partie centrale) et d'un gneiss charnockitique provenant du pic central. Ils nous ont été gracieusement fournis par J. B. Lyons (Dartmouth College, Hanover, New Hampshire) via C.B. Officer (Dartmouth College, Hanover, New Hampshire).



**Carte IV-1:** Site de La Malbaie, Québec (d'après Robertson, 1975). Les zones ombrées sombres correspondent au niveau de la mer. Plus l'altitude augmente, plus les zones sont en clair. LM = La Malbaie, ME = Mont des Eboulements (centre), BP = Baie St Paul, IC = Ile aux Coudres, STL = Saint Laurent.

Le site de Slate Islands est également situé au Québec. Il regroupe 17 îles sur une surface d'environ 40 km<sup>2</sup> dans la partie nord-est du Lac Supérieur. Dans ce site également, de nombreux indices de choc ont été découverts. Cependant, l'origine de cette structure est encore débattue (impact météoritique pour Halls et Grieve, 1976; explosion souterraine pour Sage, 1978 ainsi que pour Officer et Carter, 1991). L'âge de l'évènement est estimé à 350 millions d'années comme pour le site voisin de La Malbaie. Les échantillons que nous avons étudiés proviennent du champs de brèches formés lors de l'évènement qui a produit cette structure. Ces échantillons ont été collectés par S. B. Lumbers (Royal Ontario Museum, Toronto). Ils nous ont également été fournis via C.B. Officer (Dartmouth College, Hanover, New Hampshire).



**Carte IV-2:** Structure de Slate Islands, Lac Supérieur. C'est un cratère complexe érodé avec une élévation centrale (d'après Grieve et Robertson, 1976).



#### IV-1-b : Observations communes aux deux sites

Nous avons délibérément regroupé dans notre présentation ces deux sites d'âges sensiblement identiques car ils présentent en microscopie électronique une grande similitude. Nous avons réalisé sur ce matériel de nombreuses observations, et étudié un grand nombre de grains de quartz (nombre grand tout au moins pour les standards de la microscopie électronique). La quinzaine de grains que nous avons ainsi étudiés présente des structures de défauts tout à fait semblables. Celles-ci doivent donc être représentatives des PDF générés dans ces sites ou tout au moins de ce qu'ils sont devenus après l'épisode de métamorphisme post-choc qui a eu lieu dans cette région.

Dans les deux cas, les observations préliminaires en microscopie optique montrent une forte proportion de grains de quartz contenant des PDF. On détecte jusque trois familles sécantes de PDF dans certains grains (figure IV-1) ce qui correspondrait à une intensité de choc importante. Nous nous sommes efforcés de toujours étudier en MET des grains préalablement examinés optiquement. Pour faire le lien entre les deux techniques, nous avons effectué un suivi systématique par microscopie optique au cours des étapes d'amincissement (mécanique puis ionique). Les micrographies optiques IV-2 à IV-4 montrent ainsi le même grain de quartz avant et après amincissement ainsi que l'allure générale qu'il présente en MET à un faible grandissement pour cette technique. De même pour les figures IV-5 à IV-8.

Les caractérisations effectuées au MET sur les grains de quartz de ces deux sites canadiens nous ont permis tout d'abord de déterminer les plans dans lesquels se trouvent les PDF. Ce sont bien les plans  $\{10\bar{1}n\}$ , avec principalement  $n = 3, 4$  et  $\infty$  (plan de base). En outre, nous avons déterminé plusieurs microstructures différentes pour ces PDF. En particulier, les PDF situés dans le plan de base diffèrent nettement des autres.

Lorsqu'on fait une image en deux ondes des PDF du plan de base, on observe un contraste de franges parallèles qui est typique de celui d'une macle du Brésil. Avec un vecteur de diffraction  $\mathbf{g} = \{10\bar{1}1\}$ , les contours d'extinction sont continus, il n'y a pas de changement de contraste à la traversée de la paroi de macle. Les franges sont symétriques en champ clair et assymétriques en

champ noir (franges de type  $\alpha$ ) (Mc Laren et Phakey, 1966). La figure IV-9 montre de tels PDF "macles du Brésil" dans un échantillon provenant du site de La Malbaie. On détecte des dislocations avec une orientation préférentielle dans ces PDF, elles sont parallèles à la direction  $a$ . Les largeurs de ces lamelles de macle ainsi que leur espacement sont aisément évalués en inclinant l'échantillon de façon à mettre les défauts "de bout". On mesure alors des épaisseurs toujours inférieures à 100 nm (figure IV-10) et un espacement moyen inférieur à 1  $\mu\text{m}$ . Nous avons également observé l'intersection de ces macles avec d'autres défauts qui peuvent alors servir de marqueurs. Ainsi, la figure IV-11 montre l'intersection de plusieurs de ces macles du Brésil avec une macle du Dauphiné. La macle du Dauphiné est cisailée d'un angle voisin de  $\text{Arctan}(c/a)$  (environ  $47^\circ$ ) qui montre que ces fines lamelles de macle du Brésil sont bien d'origine mécanique. Il est donc clair que la macle du Dauphiné existait avant le choc. On peut en déduire que lors du choc la cible (ce grain de quartz et donc son environnement aussi) était à une température inférieure à la température de transition  $\alpha \leftrightarrow \beta$  puisqu'il n'y a plus de macle du Dauphiné au delà de cette température ( $573^\circ\text{C}$  à pression atmosphérique plus  $\approx 25^\circ\text{C}/\text{kbar}$  sous pression de confinement).

Les PDF observés dans les autres plans de type  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3$  ou  $4$  présentent plusieurs microstructures différentes. Certaines sont des bandes de dislocations très serrées. Leur densité est telle (de l'ordre de  $10^7 \text{ m}^{-1}$ ) que les contrastes individuels ne sont généralement pas séparés, même en conditions de faisceau faible. La figure IV-12 présente ces PDF en forme de bandes de dislocations empilées dans des plans  $\{10\bar{1}4\}$ . Dans ce cas, une densité moins élevée permet de discerner les directions préférentielles des lignes parallèles à deux directions  $\langle 2a \pm c \rangle$ . Ces directions sont connues pour être parmi les directions préférentielles des dislocations de vecteur de Burgers  $a$  engendrées par déformation plastique à faible vitesse. Il faut noter que ces PDF ne s'étendent pas à travers tout le cristal. Nous avons pu observer l'extrémité de l'une de ces bandes de dislocations, elle se termine par un grand nombre de petites boucles de dislocations (voir figure IV-13). On note aussi qu'en certains endroits le long des bandes, des dislocations ont manifestement dévié hors de la bande (cross-slip) (figure IV-14) sans que l'on puisse préciser si un tel glissement dévié est contemporain ou postérieur au passage de l'onde de choc. Dans d'autres grains, des PDF semblent avoir presque

totale­ment disparu. La bande de dislocation est interrompue en plusieurs endroits (voir figure IV-15). Certains de ces PDF dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  pré­sentent un contraste encore différent, ils semblent être constitués par un chapelet de petites bulles (figure IV-16). Ces diverses observations suggèrent fortement que, au moins ces dernières structures, résultent d'un recuit post choc (métamorphisme). Cette étape a conduit à une guérison partielle de certains PDF et pour d'autres à de la précipitation d'eau sous forme de petites bulles. On observe d'ailleurs assez fréquemment la présence de nombreuses bulles d'eau le long des PDF (voir figure IV-17).

Les évidences de recuit post choc se retrouvent de façon encore plus manifeste dans les grains de quartz provenant du site de Slate Islands. En effet, on y détecte de très nombreuses petites bulles d'eau le long des dislocations des PDF et de celles des sous joints dus à la déformation tectonique (voir figure IV-18, on remarque en outre quelques minuscules précipités solides à l'intérieur des bulles). Ce métamorphisme a dû être plus modéré puisque les bulles sont plus petites, mais elles sont, par voie de conséquence, plus nombreuses, mettant bien en évidence cet épisode de recuit.

En conclusion, on retrouve de nombreux grains de quartz choqués dans ces sites. Les PDF observés sont, pour les PDF dans le plan de base, des fines lamelles de macles du Brésil d'origine mécanique; et pour les PDF dans les autres plans, des bandes de dislocations très serrées souvent décorées de petites bulles d'eau provenant manifestement de la précipitation au cours d'une étape de recuit post choc. Les PDF dans le plan de base représentent une grande proportion ( $\approx 30\%$ ) et il est clair que de tels défauts ne peuvent être produits que par une contrainte déviatorique sans doute au moins égale à  $\approx 4$  GPa. Ces grains proviennent donc d'une zone du site d'impact où l'onde de choc possédait une composante déviatorique de ce niveau. Il est possible que, lors de sa propagation dans la roche, l'onde, initialement sphérique avec un faible déviateur, se soit progressivement modifiée. Les grains de quartz examinés proviendraient donc d'une région relativement éloignée du point d'impact (quelques kilomètres?), ce qui implique que le choc a dû être extrêmement intense puisqu'à plusieurs km de distance l'intensité de l'onde était encore assez forte pour générer des PDF dans les divers plans  $\{10\bar{1}n\}$ . Cette conclusion est en accord avec la grande dimension des sites en question. Enfin, les évidences de métamorphisme qui ont affecté de façon importante les PDF

dans les plans autres que le plan de base sont cohérentes avec l'âge très ancien de ces deux sites. C'est le contraire qui aurait été étonnant (pas d'épisode métamorphique durant 350 millions d'années). Ce métamorphisme s'est produit en présence d'eau qui en a amplifié les effets (dans le quartz l'eau accélère tous les processus physico-chimiques, en particulier déformation, restauration, recristallisation ...). Cet épisode métamorphique post-choc a affecté la structure des PDF. Celle que nous observons maintenant est peut-être pour certains d'entr'eux très éloignée de la structure originale.



MICROGRAPHIES DES SITES DE LA MALBAIE ET SLATE ISLANDS

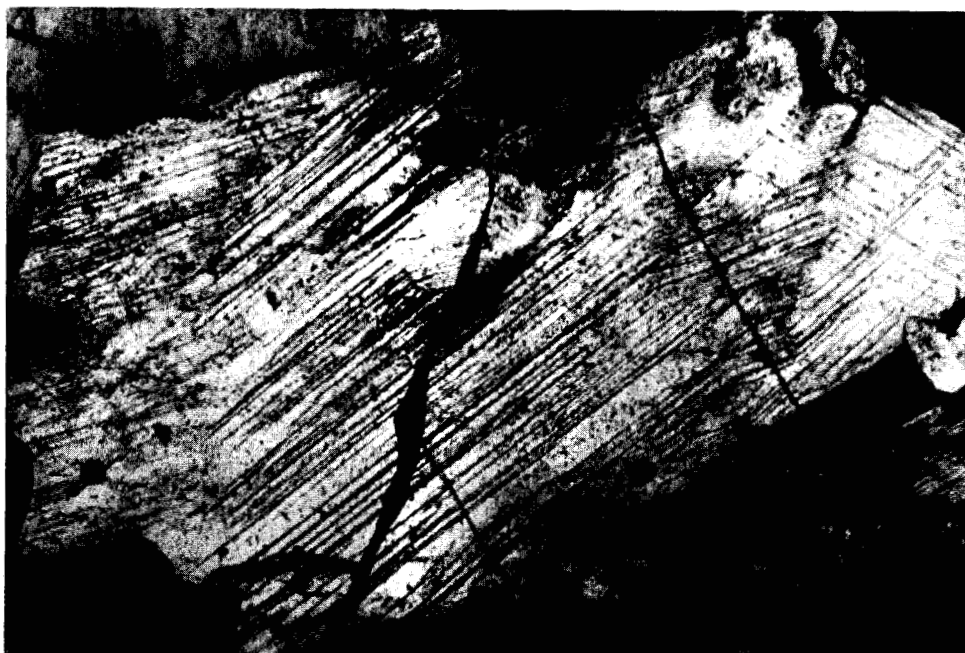


Figure IV-1: micrographie optique en lumière polarisée d'un grain de La Malbaie (barre d'échelle 100 $\mu$ m).



Figure IV-2: micrographie optique en lumière polarisée d'un autre grain de La Malbaie avant amincissement (barre d'échelle 100 $\mu$ m).



---

**Figure IV-3:** micrographie optique en lumière naturelle du même grain que IV-2 après amincissement (barre d'échelle 100 $\mu$ m).



---

**Figure IV-4:** vue générale en MET (champ clair) du même grain que ci-dessus. On observe un grand nombre de macles mécaniques (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



**Figure IV-5:** micrographie optique en lumière polarisée d'un grain de La Malbaie ramassé à un autre endroit (barre d'échelle 100 $\mu$ m).



**Figure IV-6:** même grain monté sur la "grille" pour l'observation en MET (barre d'échelle 100 $\mu$ m).





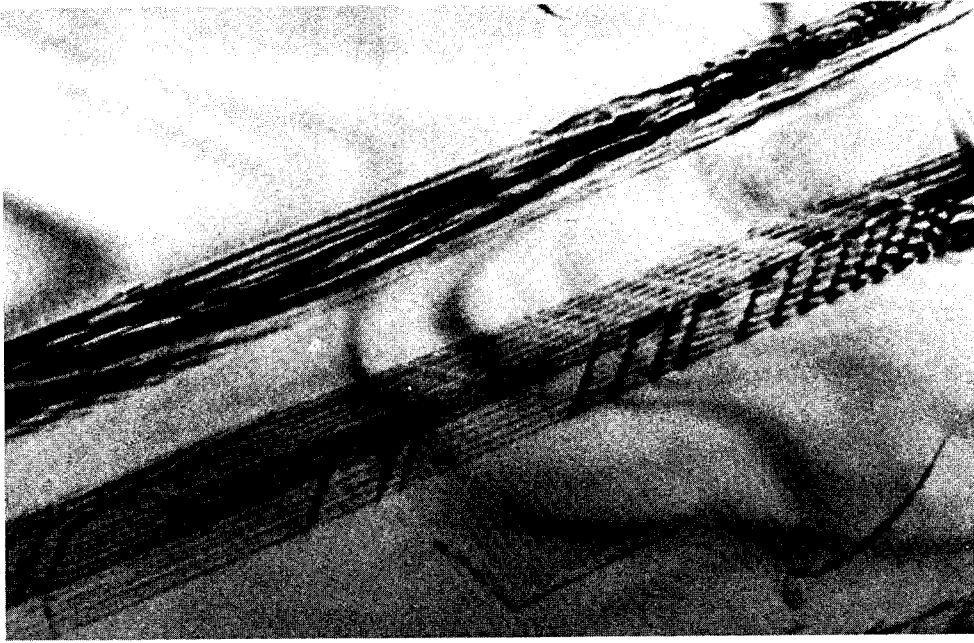
---

**Figure IV-7:** même grain que précédemment après amincissement ionique (barre d'échelle 100 $\mu$ m).

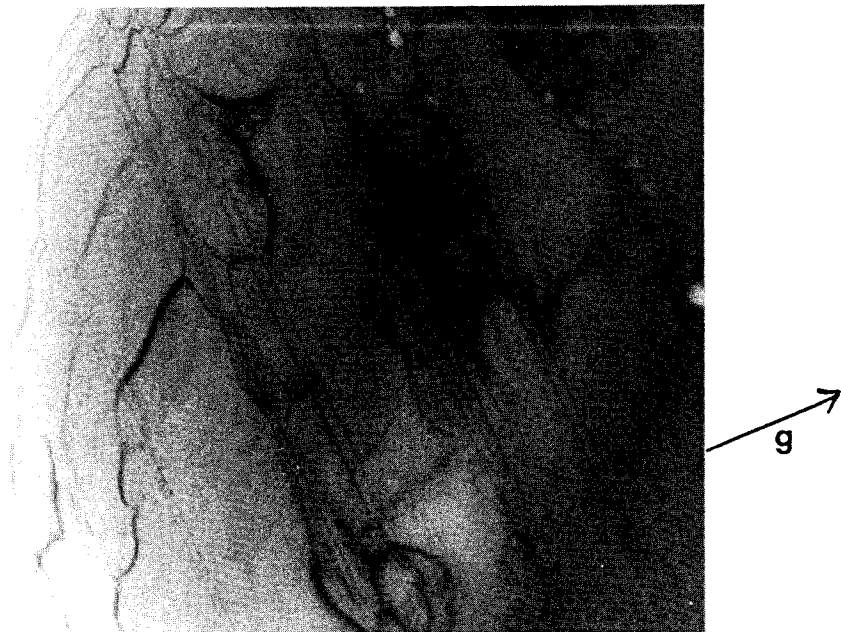


---

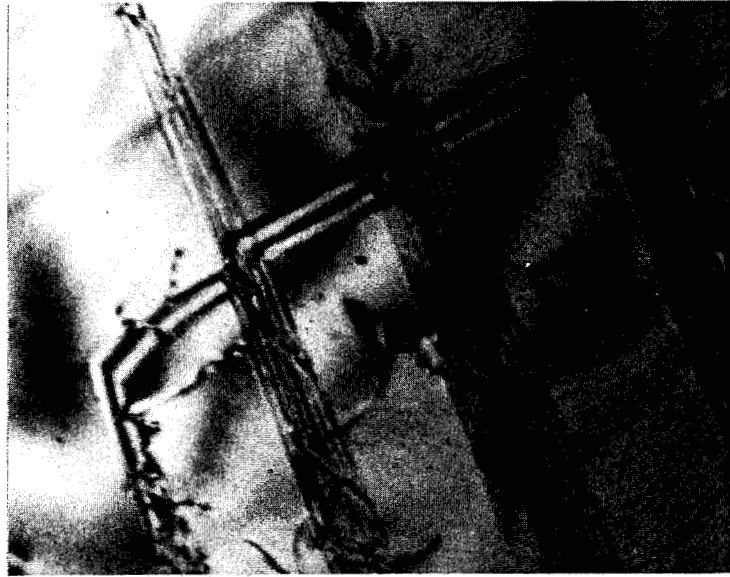
**Figure IV-8:** micrographie électronique en champ clair du même grain. On observe des PDF ainsi que quelques bulles (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



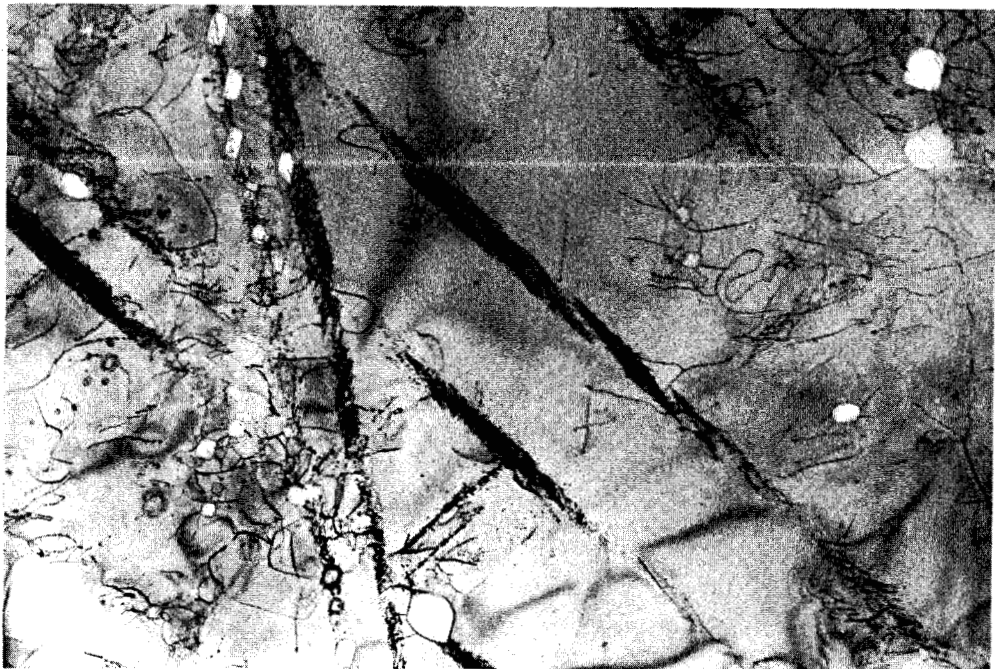
**Figure IV-9:** micrographie électronique montrant une macle du Bésil mécanique. Quelques dislocations sont présentes dans la macle (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



**Figure IV-10:** macles mécaniques vues "de bout". Le vecteur de diffraction est  $g = [0003]$  (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



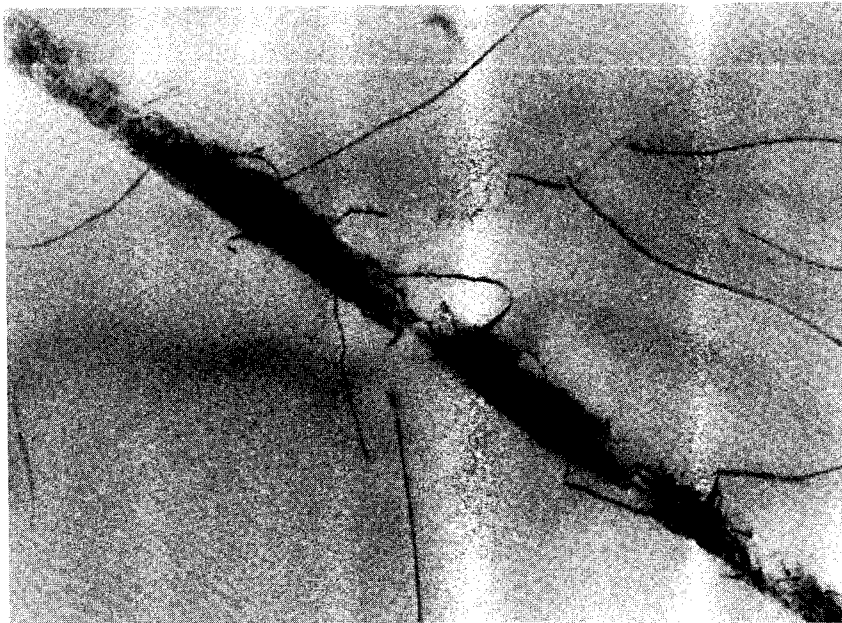
**Figure IV-11:** macles du Brésil mécaniques cisillant une macle du Dauphiné d'un angle  $\text{Arctan}(c/a)$  (barre d'échelle  $0,5\mu\text{m}$ ).



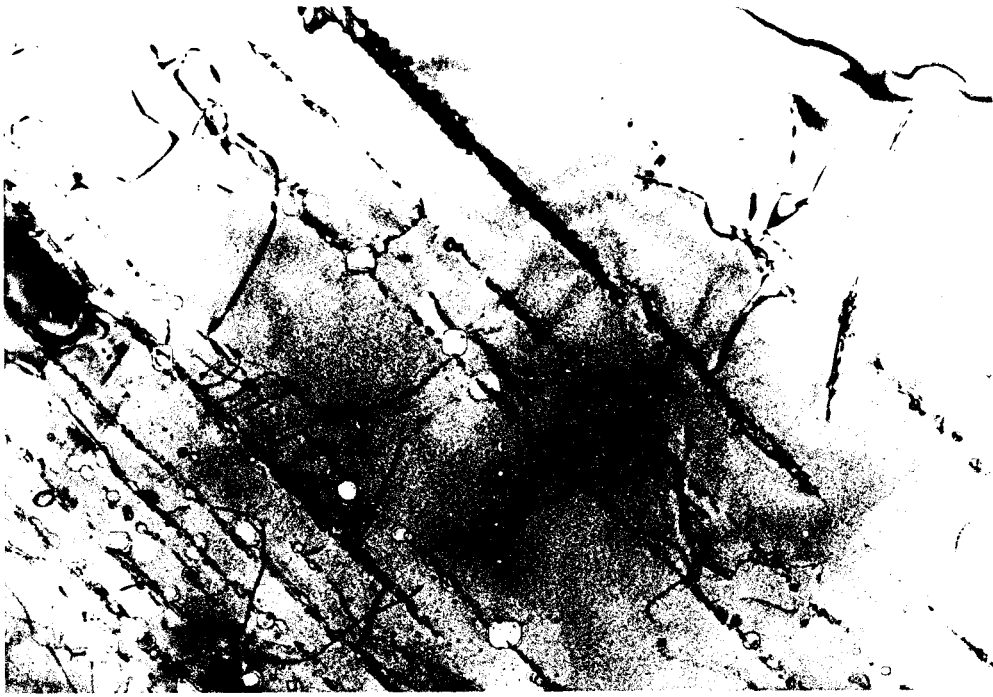
**Figure IV-12:** PDF parallèles à deux types de plans d'indices  $\{10\bar{1}4\}$ . Ils contiennent une grande densité de dislocations. Certaines sont alignées selon les directions préférentielles  $\langle 2a+c \rangle$  (barre d'échelle  $1\mu\text{m}$ ).



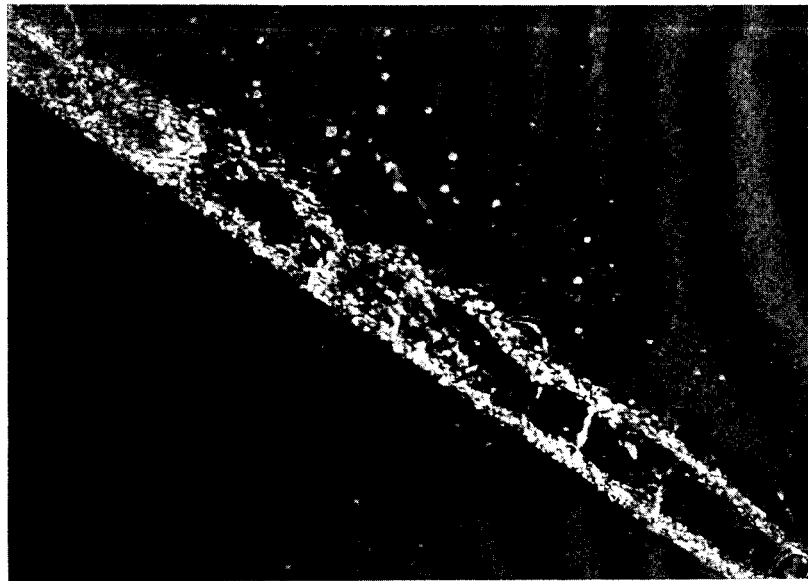
**Figure IV-13:** agrandissement d'une extrémité d'un des défauts de la micrographie précédente. De petites boucles de dislocations sont visibles (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



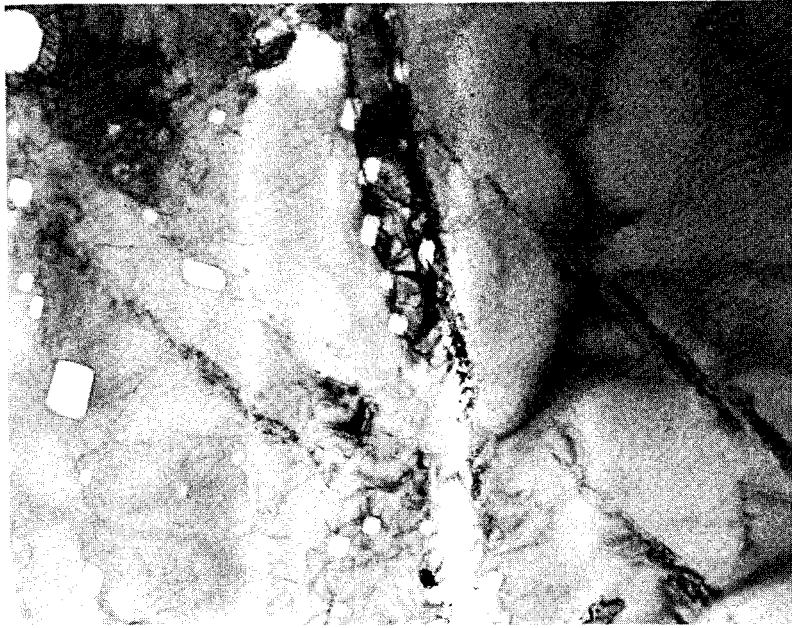
**Figure IV-14:** Dislocation ayant dévié ("cross-slip") d'une bande de dislocations (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



**Figure IV-15:** PDF ayant évolué sous l'effet du métamorphisme post-choc. Les PDF s'interrompent souvent et de nombreuses bulles ont précipité (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



**Figure IV-16:** image en champ noir d'un PDF. Il semble n'être constitué que de petits défauts (petites boucles de dislocation, petites bulles, ...) (barre d'échelle 0,2 $\mu$ m).



**Figure IV-17:** champ clair présentant des PDF le long desquels de nombreuses bulles ont précipité. Ces bulles doivent être à l'origine du contraste des PDF au microscope optique (barre d'échelle  $1\mu\text{m}$ ).



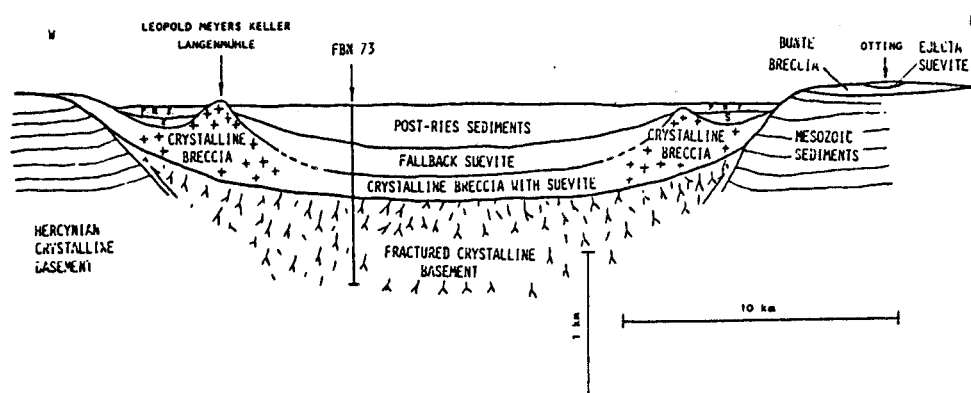
**Figure IV-18:** sous-joint et PDF décorés de très petites bulles. Dans ces bulles, une phase solide a précipité (points noirs) (barre d'échelle  $0,5\mu\text{m}$ ).



## IV-2 : SITE DE RIES CRATER

### IV-2-a : Contexte géologique

L'impact météoritique du site de Ries Crater en Allemagne s'est produit il y a "seulement" 15 millions d'années. La structure d'impact a un diamètre d'environ 25 kilomètres. Les roches que nous avons observées proviennent de suévites de la localité d'Otting (située à environ 16 kilomètres du centre du cratère d'impact, c'est à dire à 4 kilomètres environ du bord du cratère)(voir carte IV-3). Ces roches ont été éjectées lors de l'impact et se sont ensuite redéposées à l'extérieur du cratère d'impact formant ce que l'on appelle l'éjecta de l'impact. L'épaisseur de cette couche est de 15 à 20 mètres à Otting. La température de cette matière lorsqu'elle s'est déposée est estimée à  $\approx 450^{\circ}\text{C}$  (Staudacher et al., 1982). La couche supérieure ainsi que la couche inférieure, en contact avec l'air ou la roche sous-jacente, se sont refroidies rapidement, trempant ainsi la structure des défauts formés par l'onde de choc. La partie centrale du dépôt s'est refroidie plus lentement, ce qui a peut-être conduit à une évolution de la structure des défauts de choc, comme l'évolution induite par le métamorphisme post-choc des sites de La Malbaie ou Slate Islands. Le matériau que nous avons étudié a été collecté dans une couche refroidie rapidement (Stöffler, communication personnelle). Ces échantillons nous ont été gracieusement fournis par Von Engelhardt (Tübingen, Allemagne).



**Carte IV-3:** coupe schématique de la structure de Ries. Les échantillons proviennent de la localité d'Otting (d'après G. Wagner, non publié).



#### IV-2-b : Observations

En microscopie optique, on observe un grand nombre de grains de quartz choqués. Ceux-ci présentent une ou plusieurs familles de PDF par grain. Le contraste de ces PDF diffère légèrement de celui détecté dans les quartz de La Malbaie ou Slate Islands. Dans le cas de La Malbaie ou Slate Islands, les PDF apparaissent en lumière polarisée (et analysée) sous forme de lignes parallèles sombres plus contrastées que dans le cas de Ries Crater où les PDF apparaissent plutôt sous forme de lignes claires (voir figure IV-20). Nous pensons que cette différence de contraste peut provenir de l'histoire thermique post choc qui est différente dans les deux cas comparés. En effet, le recuit post choc qu'ont subi les grains de quartz de La Malbaie et Slate Islands a provoqué une intense précipitation de petites bulles d'eau le long des PDF. La taille de ces petites bulles (diamètre  $\leq 1 \mu\text{m}$ ) en fait des diffuseurs efficaces de la lumière du microscope optique et les PDF correspondants apparaissent sombres. Si aucune précipitation d'eau ne s'est produite sur les PDF des quartz de l'éjecta de Ries Crater, l'absence de centres diffuseurs optiques explique qu'ils paraissent moins sombres.

Comme précédemment, nous nous sommes efforcés de prolonger les observations optiques par les caractérisations en MET sur les mêmes grains. Les figures IV-19 à IV-23 montrent l'allure d'un grain au microscope optique avant et après amincissement puis les observations au MET qui concernent la même région. Le premier fait saillant qui ressort des observations en MET est que, contrairement aux cas de La Malbaie et Slate Islands, la densité de PDF dans le plan de base est très faible. L'immense majorité des PDF sont dans des plans  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3$  et  $4$ . Leur densité varie d'une zone à l'autre de sorte que leur espacement moyen varie de  $0,5$  à  $1 \mu\text{m}$  (figure IV-23). La plupart de ces PDF apparaissent en MET dans les conditions d'observation standard à deux ondes sous la forme de fines bandes de contraste. Pour résoudre ces contrastes en contrastes de défauts individuels, il a fallu utiliser la technique des faisceaux faibles. On a pu montrer de cette façon que les PDF dans ces plans  $\{10\bar{1}n\}$  sont essentiellement constitués d'un mélange d'une phase amorphe et de cristallites dont la taille est de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres (figure IV-24). Ce sont ces cristallites qui, en diffractant, produisent les nombreux petits points clairs sur ces images en champ noir (figure IV-25). Il faut en effet se rappeler que, si une famille de plans réticulaires d'un

crystal infini correspond à un point de l'espace réciproque, pour un cristallite de petites dimensions la même famille de plans réticulaires devient dans l'espace réciproque un bâtonnet qui a de grandes chances d'intersecter la sphère d'Ewald, même pour des conditions d'inclinaison assez différentes de l'angle de Bragg. Les cristallites sont donc en conditions de Bragg donnant ainsi lieu à de la diffraction.

Les proportions relatives de phase amorphe et de cristallites peuvent varier d'un PDF à l'autre et même le long d'un PDF donné qui peut évoluer vers une lamelle complètement amorphe (voir figure IV-26). Il est important de noter que lorsque ces PDF intersectent d'autres défauts préexistant avant le choc, comme par exemple des sous joints produits lors de la déformation tectonique antérieure au choc, on n'observe aucun déplacement relatif d'un bord par rapport à l'autre, c'est-à-dire que ces PDF ne s'accompagnent d'aucun cisaillement (figure IV-27).

On détecte également dans les échantillons de Ries Crater des veines de phase amorphe. Ces veines se distinguent des PDF décrits ci-dessus par plusieurs de leurs caractéristiques. Elles sont toujours complètement amorphes contrairement aux PDF. Elles peuvent être assez épaisses (plusieurs microns) et elles ne sont pas particulièrement rectilignes contrairement aux PDF qui sont fins ( $\approx 0,1 \mu\text{m}$ ) et rectilignes. Les interfaces veine-cristal sont abruptes comme en témoignent les franges de coin de matière cristalline imagées par la technique du "weak beam" (figure IV-28). Enfin, nous avons déterminé par microanalyse la composition chimique de la phase amorphe dans ces veines. Contrairement au cas des PDF qui sont de la silice pure, la phase amorphe de ces veines est un mélange certes riche en silice (plus de 60%) mais contenant divers "fondants" comme du sodium et de l'aluminium (voir figure IV-29). Cette matière amorphe résulte donc très vraisemblablement d'injection d'un mélange liquide dans des fractures. Le liquide provenant de la fusion de minéraux peu réfractaires comme les micas par exemple.

Nous avons observé dans le matériel de Ries Crater un troisième type de défauts présentant des orientations cristallines marquées. Ces défauts ayant l'aspect de bandes relativement étroites et parallèles aux plans  $\{10\bar{1}n\}$ , il convient sans doute également de les appeler PDF. Les PDF présentant cette nouvelle microstructure sont en faible densité, nous n'en avons observé que quelques uns au cours

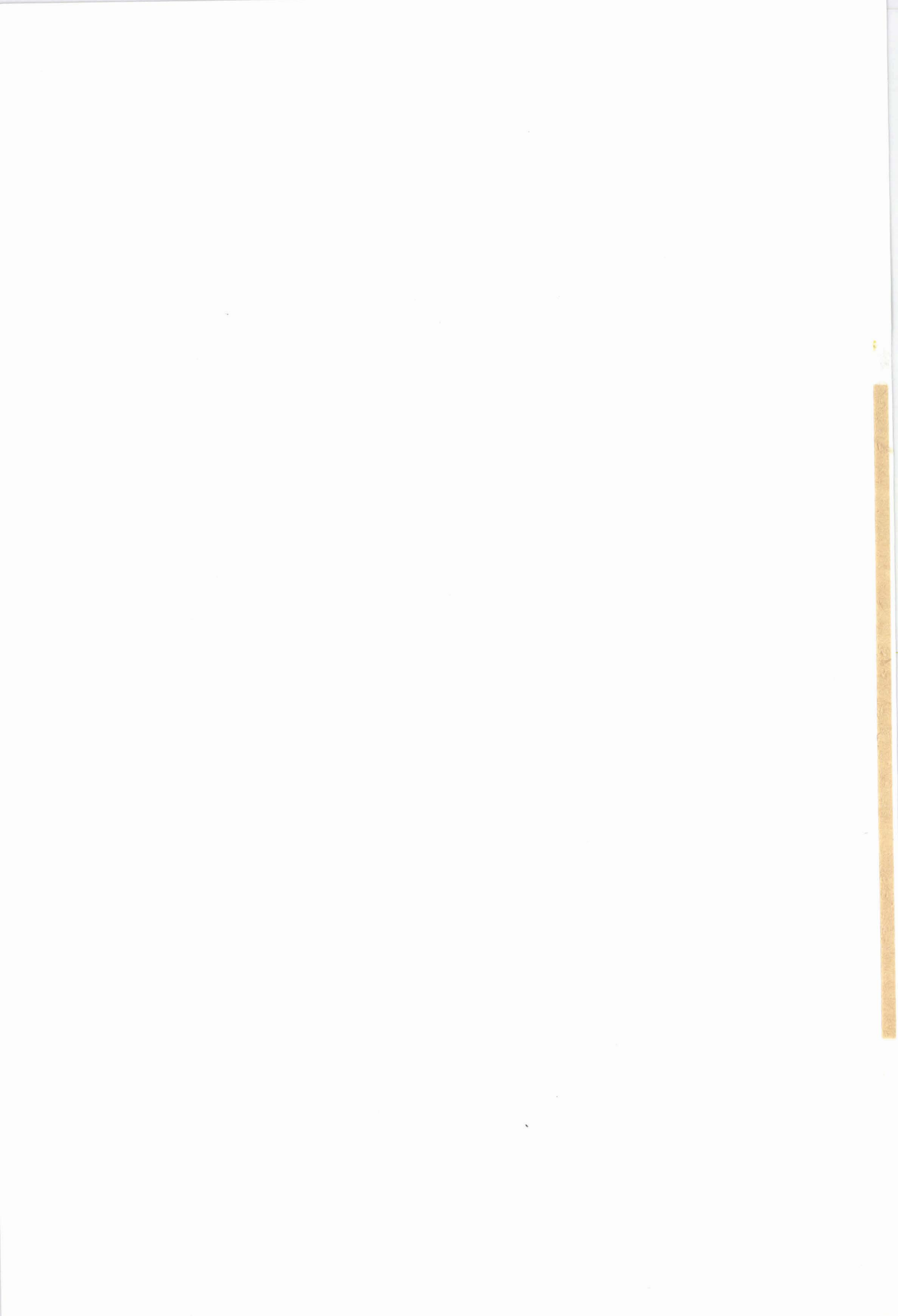
de nos investigations systématiques de nombreux grains de quartz. Ces PDF ont une structure assez particulière "en échelon". A faible grandissement, ils semblent constitués de dislocations rectilignes alignées selon une direction préférentielle et en densité modérée (voir figure IV-30). Le contraste de ces lignes ne varie cependant pas comme celui de dislocations "normales" lorsqu'on change les conditions de diffraction. En outre à plus fort grandissement (voir figure IV-31 à 33), le coeur de ces "pseudo-dislocations" présente un contraste qui nous semble être celui d'un précipité lamellaire, peut-être amorphe (figure IV-32). On n'observe en effet aucune tache de diffraction supplémentaire. Nous n'avons pas su élucider complètement la nature ou l'origine de ce contraste. Clairement, en l'état actuel, ces défauts ne sont plus des dislocations standards, même si leur champ de déformation à grande distance est similaire à celui de dislocations usuelles. Leur coeur (c'est-à-dire le contraste ou le champ de déformation à courte distance) est différent de celui d'une dislocation. Ces objets ont peut-être été des dislocations sur lesquelles une nouvelle phase a précipité le long du coeur. Inversement ces objets peuvent avoir été des précipités d'une nouvelle phase qui se sont presque complètement retransformés en quartz, ne laissant que ces très fines lamelles qui induisent un champ de contrainte à grande distance similaire à celui d'une dislocation. Il n'est pas impossible que ces "PDF" soient des reliques de stishovite qui aurait été produite par l'onde de choc puis se serait presque complètement retransformée en quartz, soit dès le passage de l'onde de raréfaction, soit plus tard.

Enfin, nous avons observé quelques rares PDF dans le plan de base qui sont toujours des macles du Brésil d'origine mécanique.

En conclusion, les microstructures de PDF dans les grains de quartz de Ries Crater sont bien de fines lamelles dans les mêmes plans cristallographiques  $\{10\bar{1}n\}$  que ceux observés optiquement dans ce matériau ou dans celui de La Malbaie et Slate Islands. Mais, les microstructures sont différentes, sauf pour les PDF dans le plan de base. Le fait que le matériel de Ries a dû subir un recuit nettement moins fort que le matériel des anciens impacts Nord Américains nous suggère fortement que, dans la mesure où tous les PDF générés par des ondes de choc auraient une microstructure initiale unique, celle caractérisée ici doit être beaucoup plus proche de cette structure initiale que ce que l'on observait dans le matériel de La Malbaie et Slate Islands. Cette structure initiale

serait constituée de fines lamelles d'un mélange de phase amorphe de composition  $\text{SiO}_2$  et de cristallites de quartz.

En outre, on trouve dans le quartz de Ries Crater des veines d'une phase amorphe qui n'est liée que de façon indirecte au choc. Il s'agit de matériel fondu et injecté dans des fissures. Enfin, on observe des structures "en échelon" dont l'origine n'est pas élucidée et qui pourraient être des reliques de phases de haute pression. Ce sont jusqu'à présent les seules indications que de telles phases ont pu être générées par l'onde de choc. Le matériel du site de Ries Crater est plus récent et moins affecté thermiquement après le choc, il est donc mieux adapté que les précédents pour la détermination de ces microstructure de PDF. Notons finalement que certains PDF de La Malbaie et Slate Islands dont nous n'avions pas pu élucider la microstructure paraissent assez semblables à ces lamelles de mélange "amorphe plus cristallites"= observés dans le matériel de Ries. Il est tout à fait possible que ces structures représentent une étape moins avancée de la modification apportée par le métamorphisme post choc. Ceci soulignerait alors la grande hétérogénéité des effets de ce métamorphisme, c'est-à-dire de l'influence de la phase fluide qui a dû circuler à travers ces roches. Tout près des fissures où l'eau a circulé, les transformations liées au métamorphisme dans le quartz sont très importantes, elles peuvent aller jusqu'à l'effacement quasi total des PDF. Au contraire, plus loin de ces fissures (à mi distance entre deux fissures) les microstructures de PDF seraient nettement moins affectées.



MICROGRAPHIES DU SITE DE RIES CRATER



Figure IV-19 : vue générale en microscopie optique en lumière polarisée d'un grain de quartz de Ries Crater (barre d'échelle 200 $\mu$ m).

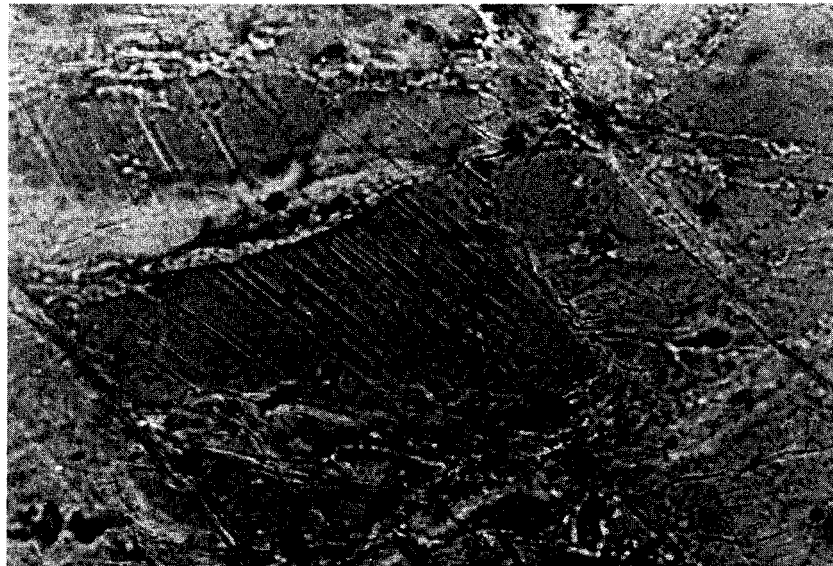
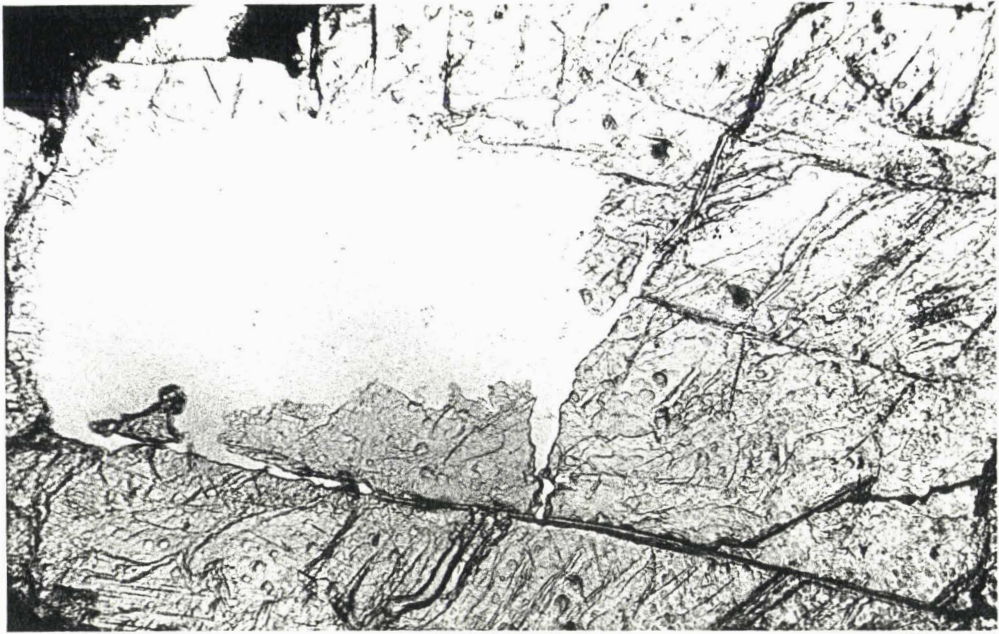
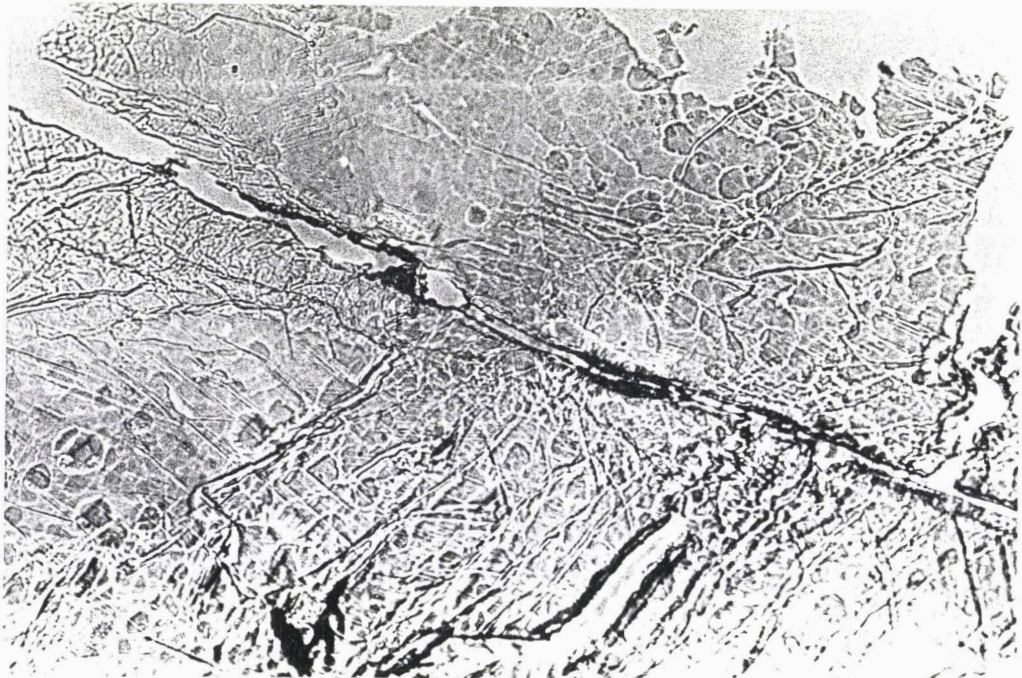


Figure IV-20: région centrale du même grain à plus fort grossissement, en lumière polarisée. On observe de fines lignes claires au centre (PDF) (barre d'échelle 50 $\mu$ m).



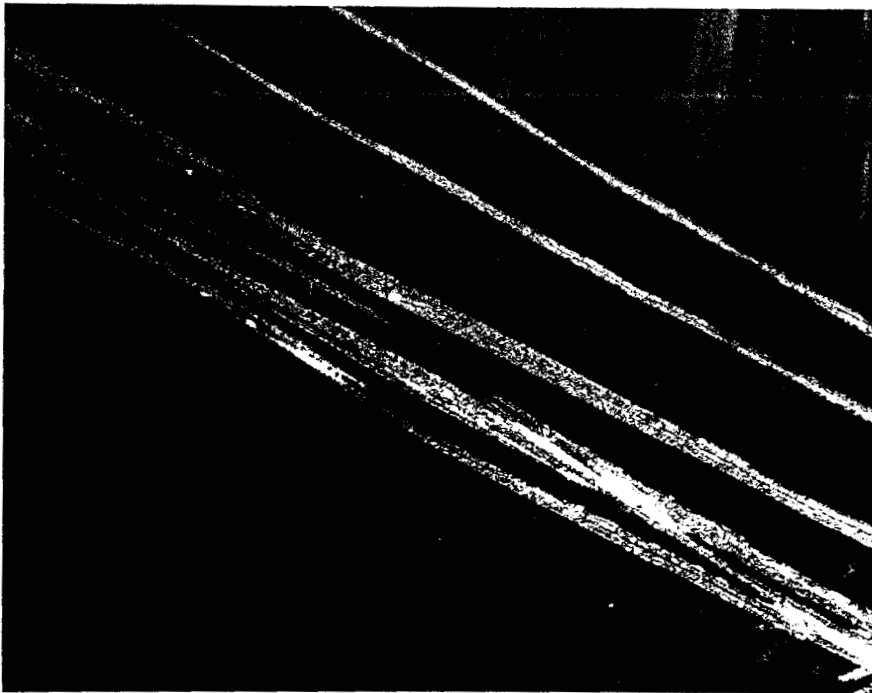
**Figure IV-21:** même grain après amincissement ionique, vu en lumière naturelle (barre d'échelle 150 $\mu$ m).



**Figure IV-22:** vue à plus fort grossissement du bord du trou. Les PDF sont toujours visibles (barre d'échelle 50 $\mu$ m).

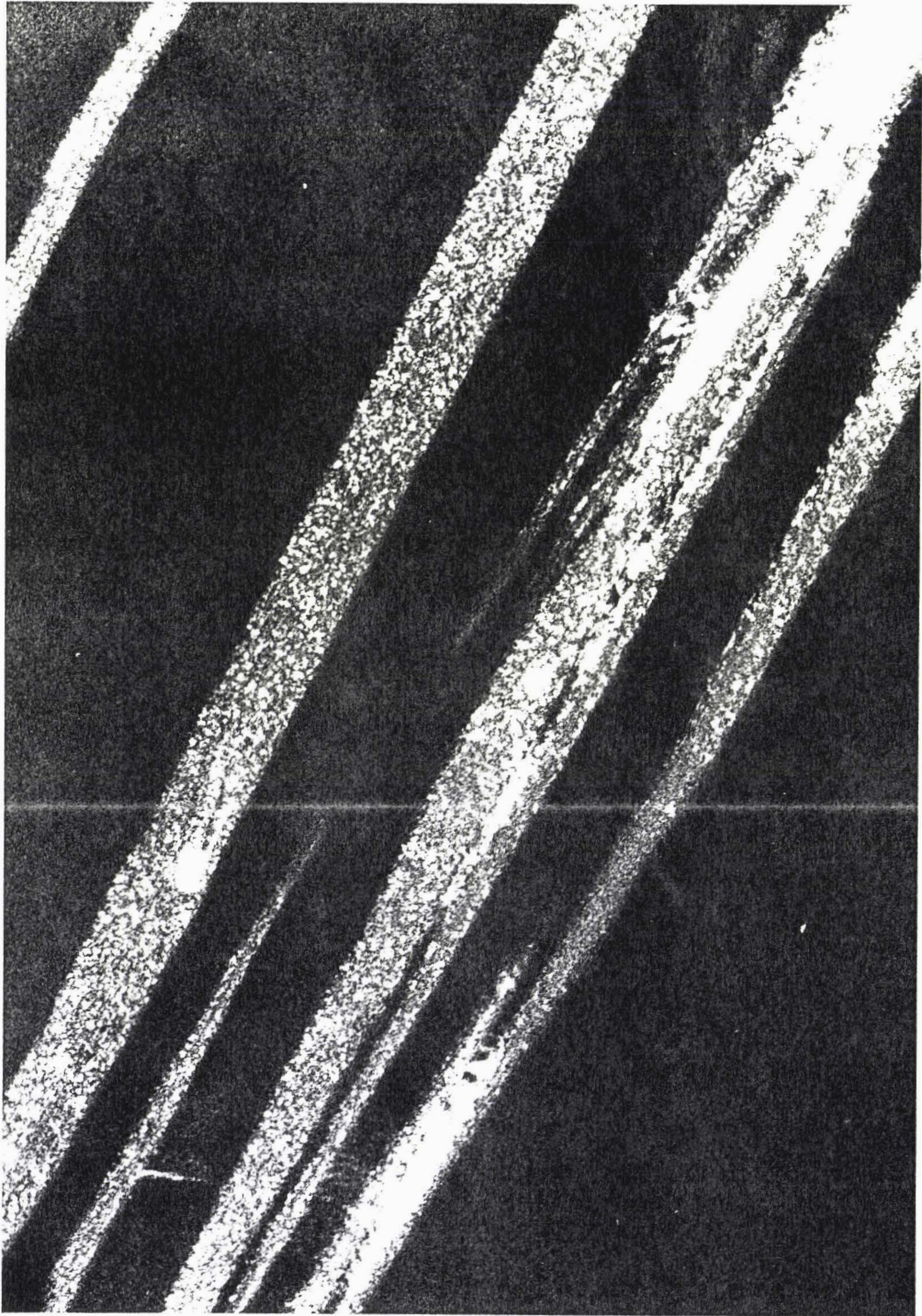


**Figure IV-23:** micrographie électronique (champ clair) de la même zone. On observe une grande densité de PDF. Ils sont "de bout" (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



**Figure IV-24:** image en champ noir sur ces défauts. Les PDF sont constitués de petits points clairs (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).





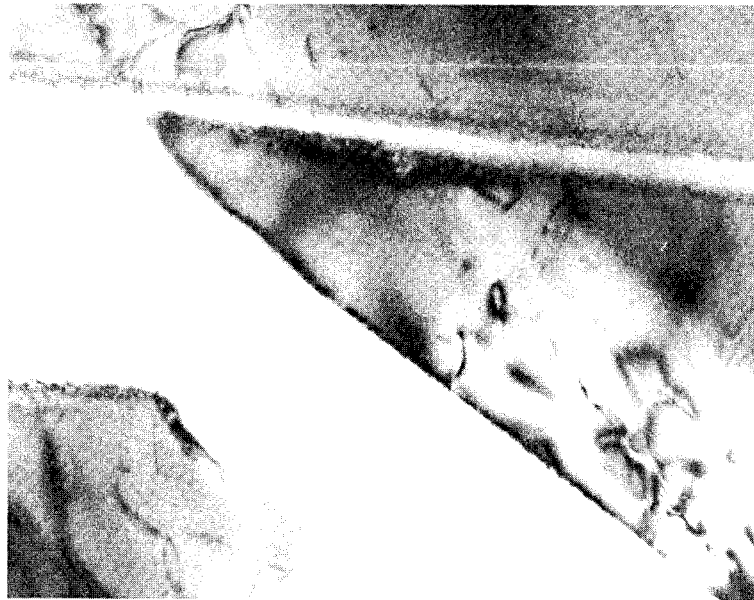
**Figure IV-25:** vue agrandie de la micrographie précédente. Les points clairs, qui sont des cristallites, ont une taille d'environ 10 nm (barre d'échelle 0,1 $\mu$ m).



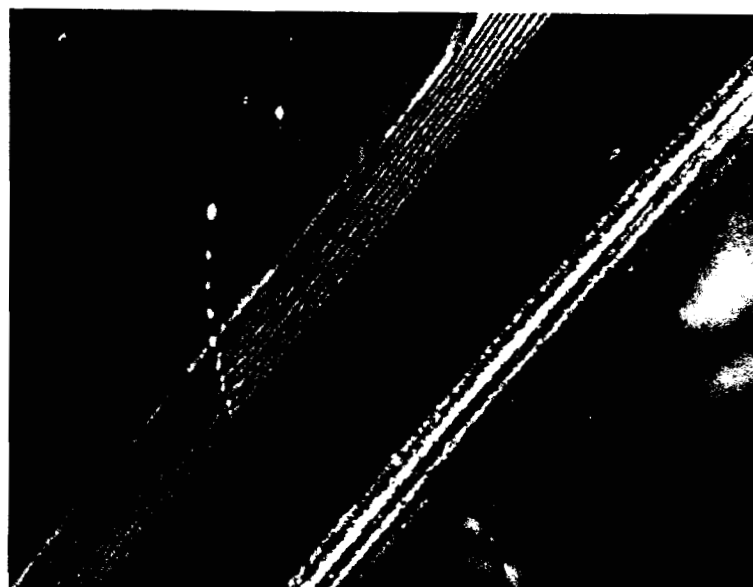
**Figure IV-26:** A certains endroits, il n'y a plus de petits points diffractant dans le défaut. Le PDF est totalement amorphe (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



**Figure IV-27:** l'intersection de l'un de ces PDF avec un sous-joint montre qu'il n'y a pas de cisaillement induit par le PDF (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



**Figure IV-28:** image en champ clair d'une veine de phase amorphe. Cette partie amorphe ne présente aucun contraste (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



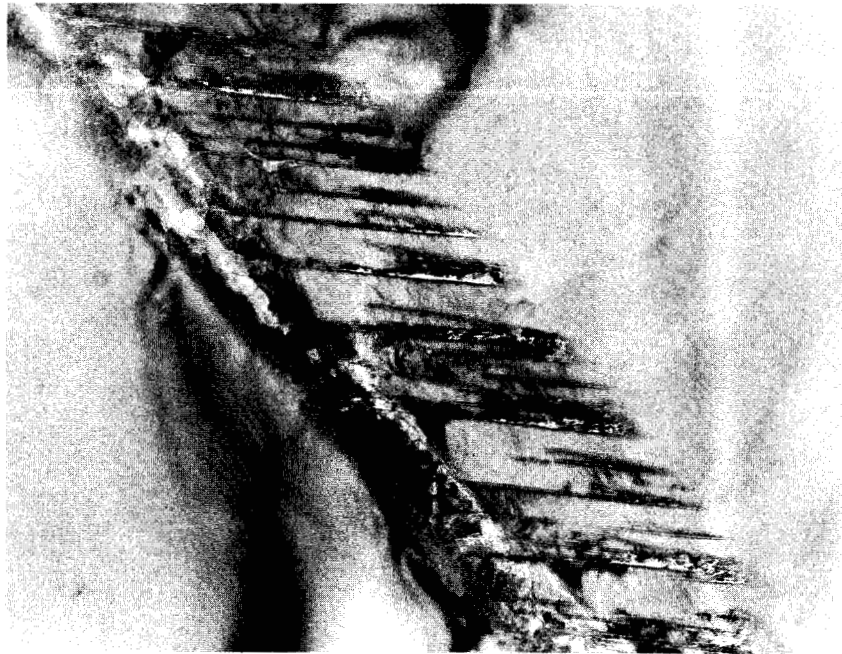
**Figure IV-29:** image en champ noir de l'une de ces veines. L'interface cristal/amorphe est abrupte (on observe un système de franges), une dislocation s'arrête à l'interface (barre d'échelle 0,2 $\mu$ m).



**Figure IV-30:** microanalyse sur une veine amorphe. Outre le silicium et l'oxygène, on détecte des atomes qui proviennent d'autres minéraux. Le pic du cuivre est un artéfact dû à la grille utilisée comme support de la lame mince.



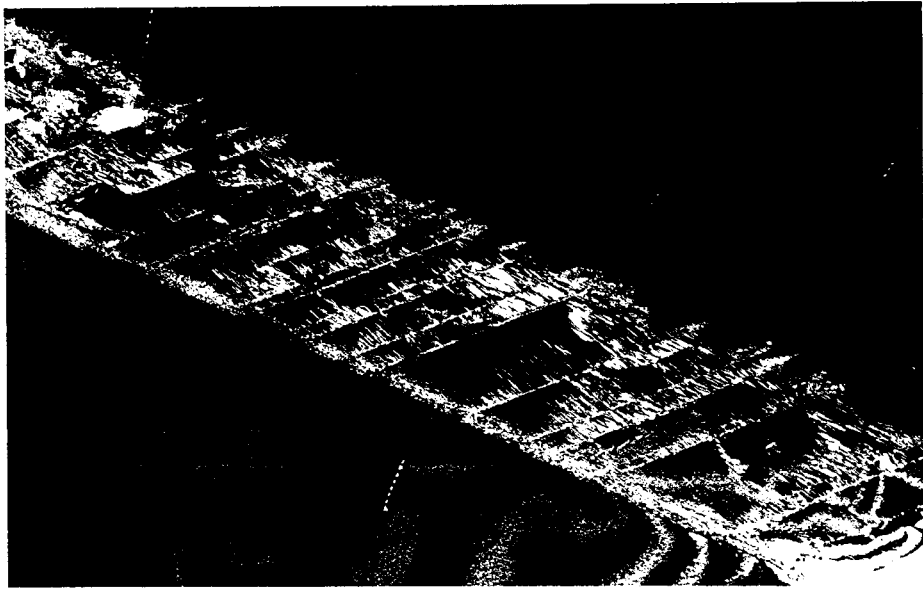
**Figure IV-31:** défaut "en échelon" vu en champ clair (barre d'échelle  $1\mu\text{m}$ ).



**Figure IV-32:** autre défaut "en échelon" à plus fort grossissement. Le contraste des objets ne ressemble pas à un contraste de dislocation (barre d'échelle  $0,5\mu\text{m}$ ).



**Figure IV-33:** même défaut à plus fort grossissement. Il peut s'agir de fissures ou d'une phase haute pression devenue amorphe (barre d'échelle 0,2 $\mu$ m).



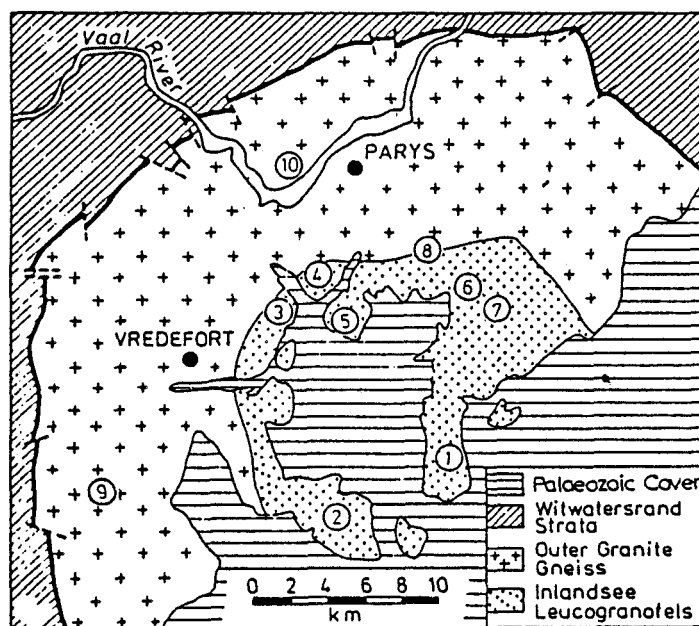
**Figure IV-34:** Même défaut en champ noir (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).

### IV-3 : DOME DE VREDEFORT

#### IV-3-a : Contexte géologique

Le dome de Vredefort, en Afrique du Sud, est l'un des sites les plus discutés quant à son origine. Cette structure complexe a un diamètre d'environ 150 kilomètres et un âge estimé à 2 milliards d'années. La discussion concernant l'origine du dome de Vredefort est basée sur l'étude du métamorphisme très intense que semble avoir subi la structure après l'évènement qui lui a donné naissance. Ce métamorphisme ayant effacé un grand nombre d'indices, l'interprétation est difficile (Fricke et al., 1990).

Les échantillons que nous avons étudiés par MET ont été collectés par Schreyer (échantillon 12945: gneiss granitique, provenant du centre de la structure; Fricke et al, 1990) qui nous les a envoyés. Ces échantillons, provenant du centre de la structure, devaient, pensions-nous, présenter une grande densité de PDF. Les autres échantillons (échantillon MA-1) ont été envoyés par W. U. Reimold (Johannesburg, Afrique du Sud) et proviennent de roches observées par Martini, qui y a détecté des phases haute pression (Martini, 1991).



**Carte IV-4:** Structure de Vredefort. Les échantillons référencés 12945 proviennent du site numéro 1 (d'après Fricke et al, 1990).



### IV-3-b : Observations

En microscopie optique, les grains de quartz de la zone centrale du dome de Vredefort (échantillon 12945) présentent de fines lignes de contraste bien visibles à faible grandissement. A plus fort grandissement, on s'aperçoit que ces lignes sont en fait constituées d'un alignement de petites bulles dont la taille moyenne doit être de l'ordre du micron. Nous n'avons détecté en MET aucun PDF dans ces échantillons (en entendant par PDF des défauts rectilignes, étroits et continus). Nous ne détectons que ces alignements de bulles.

Les échantillons de gneiss granitique 12945 ne présentent comme défauts cristallins que des dislocations, des sous joints ... provenant selon toute vraisemblance de la déformation tectonique à vitesse très lente. Ces défauts sont illustrés par les clichés IV-34 à IV-36 qui montrent une même région en microscopie optique et électronique. En MET, ces échantillons présentent quelques zones très déformées dans lesquelles on observe un grand nombre de dislocations en configuration de montée (figure IV-37). Certaines dislocations sont décorées par des petits précipités (figure IV-36). On retrouve également de place en place des bulles dont la taille peut atteindre 5  $\mu\text{m}$  de diamètre (diamètre moyen  $\approx 1 \mu\text{m}$ ). La plupart de ces bulles contiennent des petits précipités solides dont nous avons évalué qualitativement la composition par microanalyse X; nous avons également analysé qualitativement le fluide contenu dans la bulle. Etant donné que bulles et précipités sont enrobés dans la matrice de quartz, les analyses superposent la composition  $\text{SiO}_2$  de cette matrice à la composition du précipité ou du fluide, rendant impossible toute analyse quantitative (voir figure IV-35 et analyse correspondante IV-38). Les résultats indiquent qu'il s'agit vraisemblablement, comme le suggère la forme de ces précipités, de petites plaquettes de micas dans un fluide aqueux enrichi en sels (dont NaCl).

Les échantillons MA-1 montrent très peu de ces alignements de bulles en microscopie optique. Par contre, on y détecte des zones fortement déformées parfois appelées pseudotachylites. Ce sont des veines constituées de grains fortement déformés au sein d'une roche mère à gros grains. Les grains de quartz de ces veines présentent une extinction ondulante et on observe souvent de très petits grains qui ont dû croître à l'intérieur de l'un de ces grains. Les figure IV-39 à IV-43 montrent un tel grain au microscope

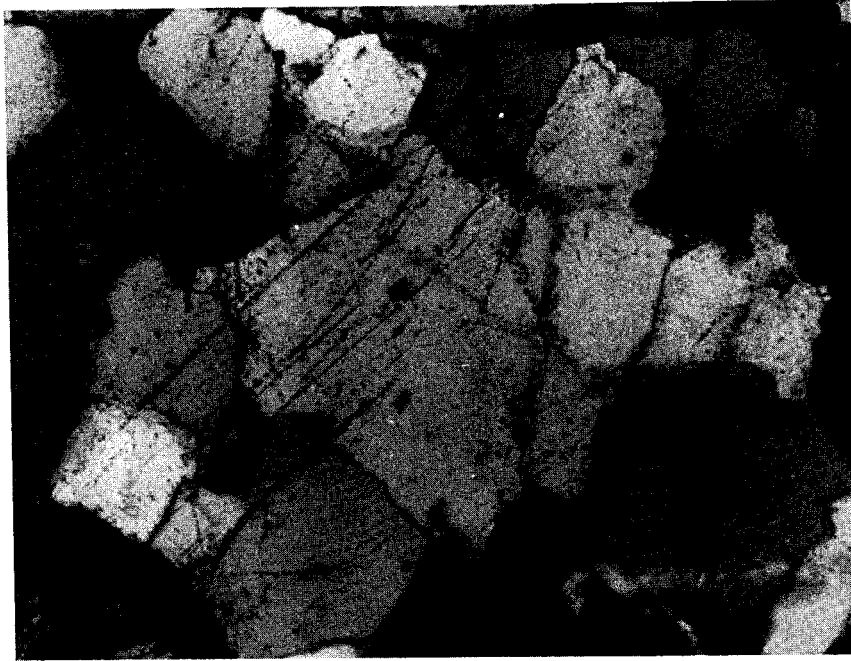
optique avant et après l'amincissement ionique ainsi que son aspect au MET.

Dans les quartz des roches référencées MA-1, on observe parfois des microcristaux au MET (figure IV-43). Ces microcristaux sont encore du quartz comme le montre leur diffraction (voir figure IV-44) et non un de ses polymorphes de haute pression, comme nous l'avions supposé un moment. Ces cristallites sont fortement désorientés les uns par rapport aux autres et paraissent étrangers au sein des grains de quartz (voir figure IV-45 et cliché de diffraction correspondant IV-46). Il ne nous paraît pas impossible que ces veines résultent de la réversion de grains d'un polymorphe de haute pression (coesite par exemple) redevenus du quartz. A part cela, on ne détecte aucune trace de PDF.

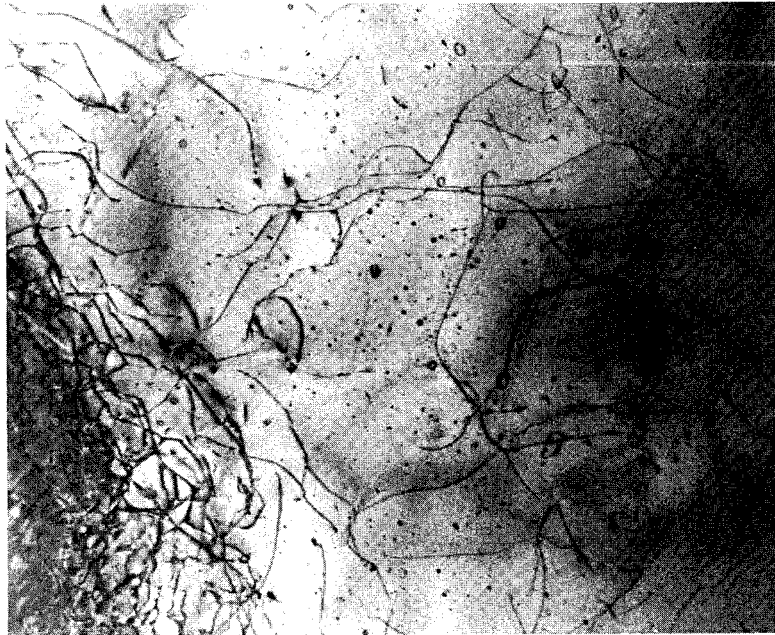
En conclusion, les grains de quartz collectés au voisinage du dome de Vredefort présentent au microscope optique des lignes de contraste qui ne sont en fait que des alignements de bulles. Les observations de MET montrent des configurations de dislocations représentatives d'une déformation ductile ainsi que quelques veines polycristallines à grains très fins dont l'origine n'est pas claire et enfin de nombreuses bulles emplies d'un fluide aqueux. L'ensemble de ces observations est en bon accord avec les nombreuses autres observations (paragénèses) indiquant que ce site a été le siège d'un métamorphisme intense. Cependant, s'il y a eu choc, il n'en reste pas d'évidence autre que ces alignements de bulles, ce qui représente un indice de choc très évanescent. Il est tout à fait possible que cet épisode métamorphique ait totalement guéri les PDF initialement générés dans les grains de quartz par un choc. Des observations réalisées sur d'autres échantillons par P. Joreau ont permis de mettre en évidence des lamelles de macles du Brésil dans le plan de base dont l'origine mécanique est très vraisemblable. Ce sont les seules reliques d'un choc possible, leur densité est faible et hétérogène. La microscopie électronique n'apporte aucune preuve de l'occurrence d'un choc. Martini apportait comme preuve de choc en ce site du Vredefort la présence d'une faible quantité de stishovite détectée par rayons X sur des poudres. Bien qu'ayant conduit notre investigation en MET sur les mêmes roches que lui, nous n'avons pas détecté un seul grain de stishovite, ce qui ne signifie pas nécessairement qu'il n'y en a pas. Cette stishovite peut être peu abondante et distribuée de façon très hétérogène, rendant son observation au MET difficile.



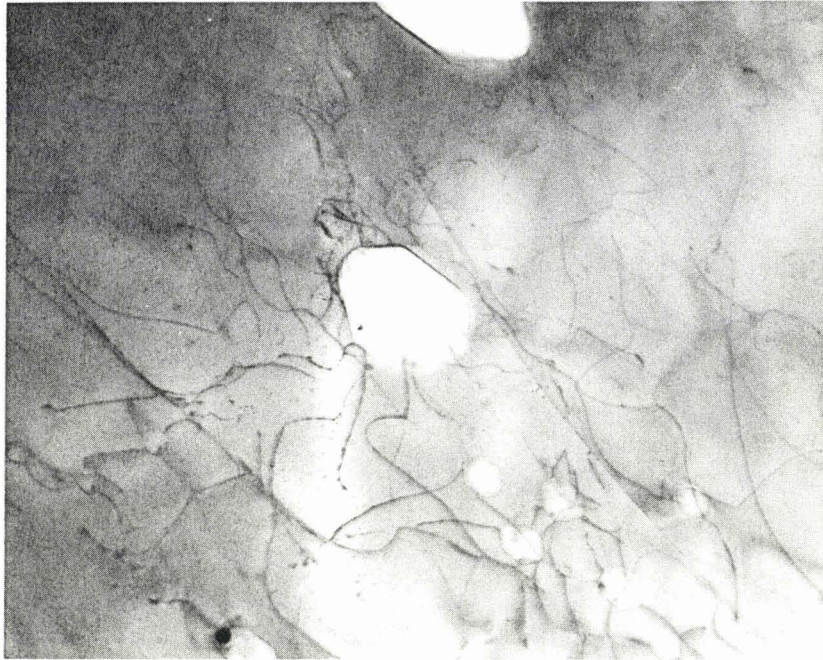
MICROGRAPHIES DU SITE DE VREDEFORT



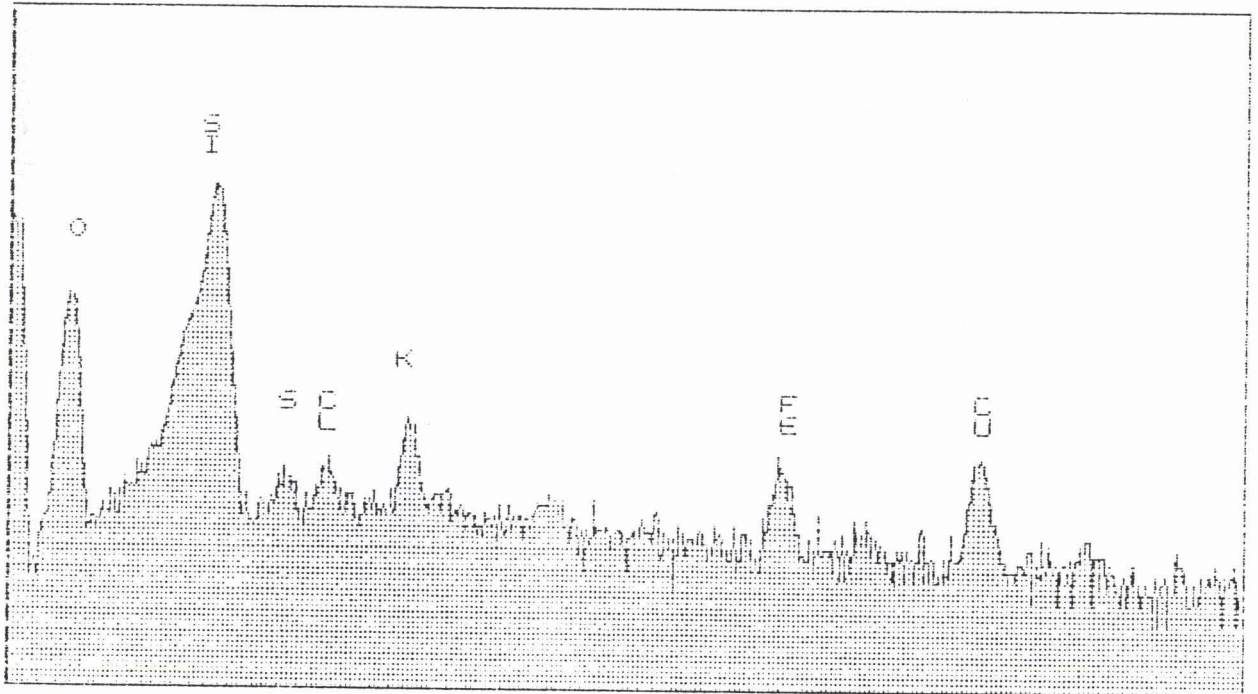
**Figure IV-35:** micrographie de grains de quartz de la roche 12945 en lumière polarisée. On observe lignes de contraste qui sont en fait des alignements de bulles (barre d'échelle 100 $\mu$ m).



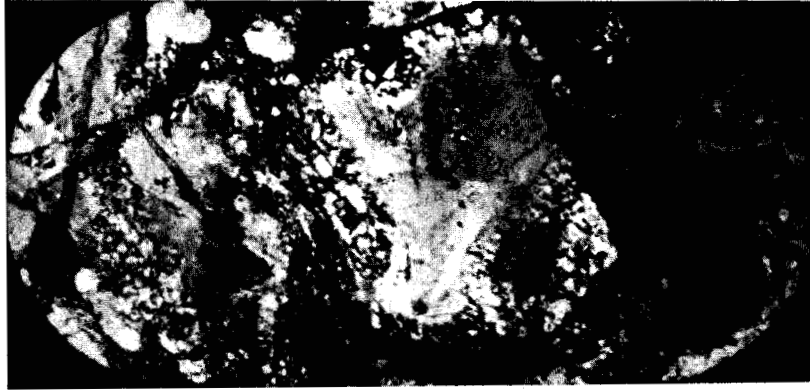
**Figure IV-36:** Au MET, de nombreuses dislocations en configuration de montée sont observées ainsi que de petits précipités solides (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



**Figure IV-37:** Par endroits, de grosses bulles sont observées (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



**Figure IV-38:** microanalyse réalisée sur un précipité solide dans l'une de ces bulles. Le pic du cuivre est un artéfact dû à la grille servant de support à la lame mince.



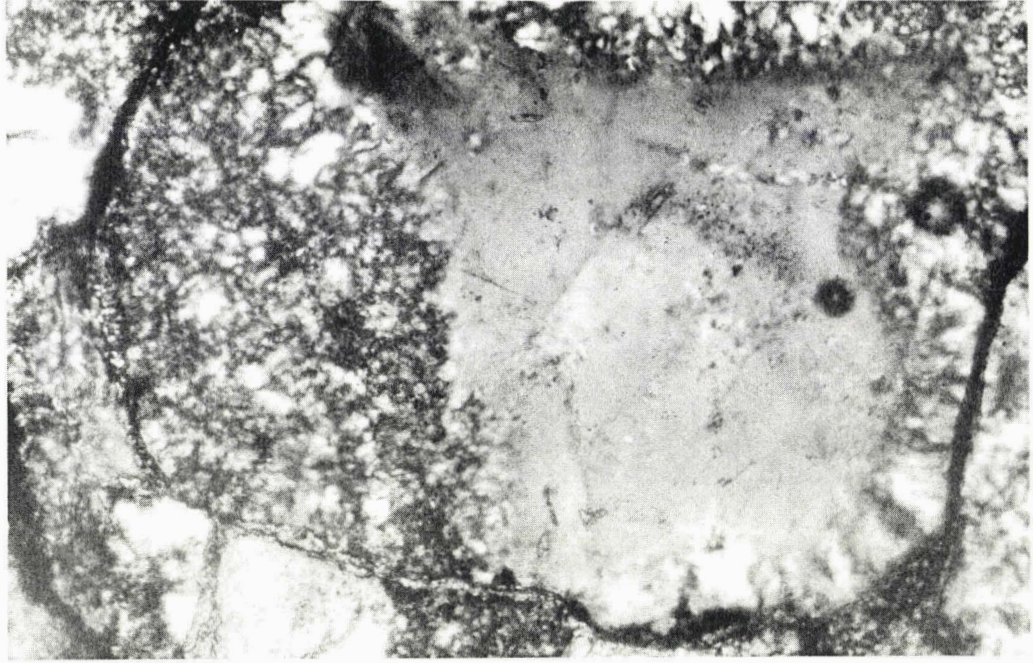
---

**Figure IV-39:** micrographie optique en lumière polarisée d'un grain de la roche référencée MA-1 (barre d'échelle 200 $\mu$ m).

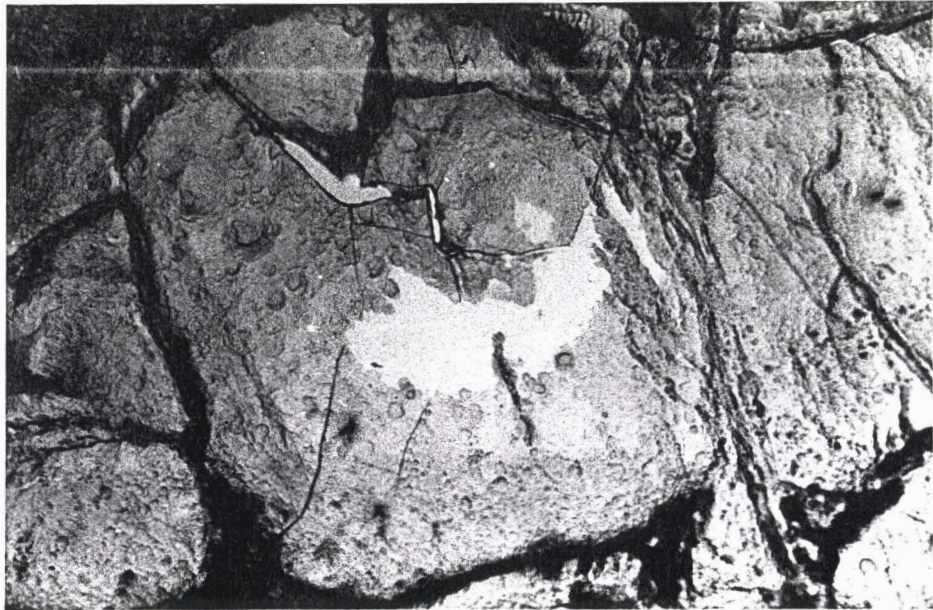


---

**Figure IV-40:** même grain que précédemment à plus fort grossissement. Le grain de quartz contient de tout petits grains dont il ne nous est pas possible de déterminer la nature (coésite, stishovite?) (barre d'échelle 100 $\mu$ m).



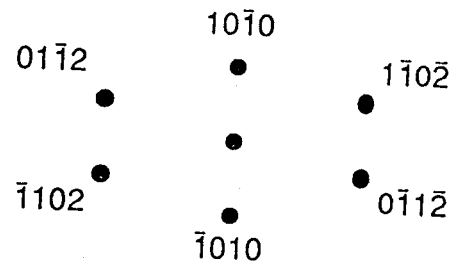
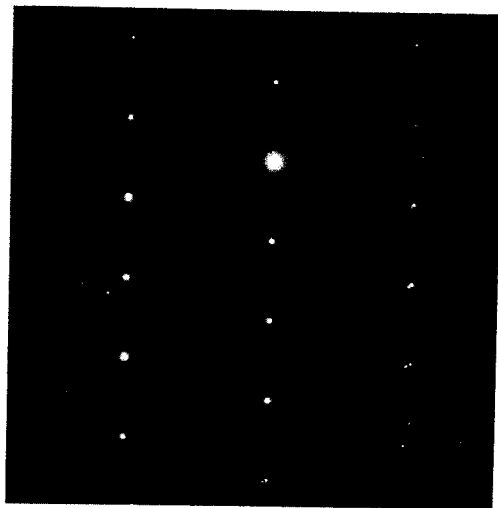
**Figure IV-41:** même grain à plus fort grossissement (barre d'échelle 50 $\mu$ m).



**Figure IV-42:** même grain en lumière naturelle après amincissement ionique (barre d'échelle 150 $\mu$ m).



**Figure IV-43:** Au MET, on détecte des grains de taille moyenne ( $\approx 1\mu\text{m}$ ) (barre d'échelle  $1\mu\text{m}$ ).



**Figure IV-44:** Le cliché de diffraction réalisé sur l'un de ces grains montre qu'il s'agit de quartz.





**Figure IV-45:** Zone polycristalline du même grain (barre d'échelle  $1\mu\text{m}$ ).



**Figure IV-46:** Diagramme de poudre correspondant, effectué sur ces petits grains. Les distances mesurées sont celles du quartz.

#### IV-4 : SITE DE RATON BASIN

##### IV-4-a : Contexte géologique

Le site de "Clear Creek North" à Raton Basin est à la frontière entre le Colorado et le Nouveau Mexique, aux Etats-Unis. Il présente une coupe de sédiments qui ont été peu affectés thermiquement dans laquelle on retrouve les sédiments déposés à l'époque de la limite Crétacé/Tertiaire. En outre, les grains de quartz des sédiments associés à la limite K/T présentent optiquement des PDF. Ces grains doivent donc provenir de la roche qui a subi l'impact météoritique, si telle est la cause de cette catastrophe biologique, ou bien avoir été émis par l'explosion volcanique dans l'autre scénario pour cette même catastrophe. Dans tous les cas, ces grains choqués ont dus être envoyés dans la stratosphère, puis se redéposer un peu partout sur la surface de la Terre. La série sédimentaire de Raton Basin bien préservée contient des grains de quartz choqués assez gros (taille maximum  $\approx 600 \mu\text{m}$  d'après Bohor). Les échantillons que nous avons examinés nous ont été fournis par G. Izett (U.S. Geological Survey, Denver), soit directement, soit via N. Carter (Center for Tectonophysics, Houston), et enfin par B. Bohor (U.S. Geological Survey, Denver) via A. Gratz (Lawrence Livermore National Laboratory). Dans tous les cas, il s'agissait de "concentrés" c'est à dire de seuls grains de quartz qui avaient été triés et sélectionnés au sein de l'assemblage de minéraux divers que constituent ces sédiments. Ce travail de tri est particulièrement long et implique l'utilisation de techniques et d'équipements (colonne de densité) dont nous n'avons pas l'expérience au laboratoire. Sans ce travail préalable de sélection, nous n'aurions sans doute pas été à même d'étudier les grains de quartz associés à la limite K/T.

##### IV-4-b : Observations

Dans les quartz fournis par Izett (directement ou via Carter), on détecte optiquement peu de grains présentant des PDF. Par contre, les quatre gros grains que nous a fournis Bohor présentaient optiquement une grande densité de PDF (voir figure IV-54 et 55). Nous distinguons donc ci-dessous ces deux types de matériel.

Nous avons examiné par MET un assez grand nombre de grains fournis par Izett, en nous efforçant de sélectionner optiquement les grains choqués. Comme nous détectons optiquement peu de grains indubitablement choqués, nous avons sélectionné les grains à observer en MET de façon assez arbitraire. En règle générale, nous avons détecté des PDF en MET dans la plupart de ces grains, mais leur densité y est assez faible. Ceci peut tout simplement signifier que notre habilité à détecter optiquement des PDF est moins bonne que celle de Izett, ou plus simplement et plus probablement, que celui-ci a extrait des grains de quartz des sédiments de Raton Basin sans se préoccuper de savoir s'ils étaient choqués ou non. Dans ce cas, nos observations en MET indiqueraient que des grains de quartz contenant une faible densité de PDF peuvent ne pas être reconnus optiquement pour des grains choqués. Par contre, Bohor, qui voulait résoudre avec nous un problème spécifique, a sélectionné pour nous des grains fortement choqués.

Comme dans les autres quartz choqués, nos investigations en MET dans le matériel fourni par Izett confirment que les PDF se situent dans des plans  $\{10\bar{1}n\}$  avec les mêmes valeurs de  $n = 1, 2, 3, 4$  et  $\infty$ . Dans le plan de base, ce sont encore des fines lamelles de macles du Brésil (figure IV-47). Dans ce cas également, nous les avons mise "de bout" en inclinant la lame mince dans le microscope afin de mesurer précisément leur épaisseur et leur espacement moyen (figure IV-48). Ces lamelles sont toujours fines ( $\leq 0,1 \mu\text{m}$ ). Il est plus difficile de préciser leur espacement moyen car ces défauts sont répartis de façon très hétérogène, la plupart des grains paraissant vierges de tels défauts. En fait, un seul grain contenait une densité appréciable de fines lamelles de macles du Brésil.

Les PDF contenus dans les plans rhomboédriques ( $n = 1, 2, 3$  ou  $4$ ) présentent souvent un contraste difficile à interpréter car une précipitation importante de petites bulles d'eau s'est produite préférentiellement sur ces PDF (voir la figure IV-49). Ces bulles sont en règle générale plus petites que celles observées dans le matériel de La Malbaie ou Slate Islands, mais on observe toute une palette de tailles allant de  $\approx 100$  à plus de  $3000 \text{ \AA}$  de diamètre. Cette dispersion s'observe d'un grain à l'autre et même à l'intérieur d'un seul grain. Par contre, comme dans les cas de La Malbaie et Slate Islands, les lamelles de macles du Brésil dans le plan de base ne présentent pas ce phénomène. Apparemment, les macles du Brésil ne sont pas des sites préférentiels de nucléation de ces

bulles d'eau. Dans les grains où cette précipitation était limitée à des bulles très petites ( $<500 \text{ \AA}$ ), nous avons pu observer les défauts de réseau qui ont dû servir de sites de nucléation préférentiels (figure IV-50 à 53). Il s'agit, pensons nous, de bandes de dislocations dont les lignes présentent une direction préférentielle. Les petites bulles précipitées sur ces dislocations sont, en général, tellement proches les unes des autres que le contraste des dislocations est presque complètement caché. Nous ignorons à ce stade si ces dislocations représentent la microstructure originelle des PDF, ou si elle résulte, elle aussi, d'une altération due au métamorphisme post-choc dont la précipitation de petites bulles d'eau est une autre manifestation. La sous structure de dislocations générée par la déformation tectonique avant le choc est observable entre les PDF. Dans les grains où nous observons la fine précipitation sur les PDF, ces dislocations ont, elles aussi, été le siège de cette précipitation. Ces dislocations sont aussi décorées par de nombreuses très petites bulles (figure IV-51). On observe, en outre, de nombreuses indications de montée, en particulier des segments de dislocations épinglés par les bulles ainsi que des petites boucles de dislocations accrochées à une bulle. De telles sous-structures sont généralement observées dans les échantillons de quartz humide recuits pour provoquer la précipitation de l'eau initialement dissoute dans le réseau. Il est donc manifeste que ce matériel décrit ci-dessus a subi un recuit à température modérée après le choc dont la manifestation la plus apparente est cette précipitation avec une nucléation très abondante de bulles et une croissance quasi inexistante (ce sont ces derniers indices qui nous font dire que le recuit s'est produit à température modérée). Bien qu'observée dans plusieurs grains fournis par Izett cette précipitation de très fines bulles n'est pas systématique. Certains grains apparaissent vierges de précipitation, tandis que quelques autres présentent des bulles nettement plus grosses et avec une densité appréciablement plus faible, ces bulles étant toujours distribuées préférentiellement sur les PDF. Une telle situation pourrait évidemment résulter de contenus en eau initiaux différents, les grains secs ne présentant pratiquement pas d'indice de précipitation tandis que les plus humides montreraient des indices de précipitation plus abondants. Il nous semble donc évident que le matériel collecté à Raton Basin par Izett a subi un métamorphisme post-choc mais la grande variété des microstructures de PDF observées rend très difficile l'estimation de son intensité.

Les grains de quartz fournis par Bohor sont généralement plus gros ( $\approx 200 \mu\text{m}$  contre  $\approx 120 \mu\text{m}$ ) et présentent optiquement une grande densité de PDF (figure IV-54 à 56). En MET, nous observons une densité de PDF nettement plus grande que dans les grains précédents (espacement moyen  $\leq 1 \mu\text{m}$ , voir figure IV-57). Une telle densité rend difficile l'observation et la caractérisation de la sous structure de dislocations résultant de la déformation tectonique avant le choc. Si ces PDF sont toujours des lamelles de défauts dans les plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}n\}$ , leurs microstructures ne sont pas identiques à celles observées dans le matériel d'Izett. Tout d'abord, nous n'avons pas détecté de lamelles de macles du Brésil dans (0001) dans les quelques grains observés. Les autres PDF dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3$  et  $4$  ne présentent généralement pas d'indices clairs de métamorphisme post-choc (pas de fine précipitation d'eau sur les PDF ou sur la sous structure de dislocations résultant de la déformation tectonique avant le choc). A première vue, ces PDF ressemblent plutôt à ceux détectés dans le matériel de Ries Crater (Figure IV-58 et 59) avec des microstructures consistant en un mélange de phase amorphe et de cristallites. La proportion de phase amorphe paraît cependant plus faible, les frontières des PDF moins franches et leurs épaisseurs plus variables que dans le matériel de Ries. Dans certaines régions, on détecte des "trous" dont les formes sont assez différentes des formes sphéroïdales adoptées par les bulles d'eau précipitées (Figure IV-60). Il n'est pas impossible qu'il s'agisse de reliques de petits grains d'un polymorphe de haute pression maintenant disparu car nous ne trouvons aucune réflexion non attribuable à du quartz en diffraction.

Les deux types de matériel (fournis par Izett et Bohor) ne sont donc pas radicalement différents, simplement, il semble bien que leurs modes de sélection ont favorisé l'une ou l'autre famille de grains avec des types de PDF différents, ou tout au moins présentant une histoire thermique post choc différente. Il n'est pas aisé de discuter les modes de triage adoptés par l'un ou l'autre, d'autant qu'en principe elles sont identiques et s'appliquent au même sédiment. Il reste bien comme différence possible la taille de grains qui est plus grande dans le cas du matériel fourni par Bohor. Nous revenons sur cet aspect dans la discussion de nos résultats présentée dans le chapitre suivant.

Pour terminer cette description des microstructures de PDF observées dans le matériel de Raton Basin, il faut signaler une autre observation qui est commune aux deux types de grains (Izett et Bohor). Nous trouvons dans certaines régions des densités élevées de PDF de deux familles sécantes qui délimitent des petits "pavés" de quartz sans défauts et d'orientation cristalline très proche (désorientation  $\leq 10^\circ$ , voir figure IV-61 à 63). Entre les pavés se trouvent de fines lamelles de phase vitreuse qui accommodent les légères désorientations entre pavés. Une telle configuration est typique de ce que l'on appelle parfois des cristaux de structure mosaïque, mais la taille de ces pavés ( $\approx 1000 \text{ \AA}$ ) est beaucoup trop petite pour rendre compte du "mosaïcisme" observé optiquement. Celui-ci résulte peut-être d'un phénomène semblable mais constitué de familles de PDF plus espacés. Nous comprenons assez mal le mécanisme responsable de cette augmentation de densité des PDF dans certaines régions. Dans un cas au moins, nous avons pu observer les frontières limitant cette zone de petits pavés séparés par des fines zones amorphes. D'un côté on a le cristal usuel avec une densité "raisonnable" de PDF, de l'autre se trouve une matrice polycristalline à quartz à grains très fins ( $\approx 1000 \text{ \AA}$ ) dans laquelle on ne détecte plus aucun PDF (voir figure IV-64 et 65). Il n'est pas impossible que les conditions aux limites imposées à l'onde de choc par cette discontinuité aient généré cette grande densité de PDF délimitant les "pavés". Une interprétation alternative, bien que pas plus démontrée, est que cette matrice polycristalline serait elle-même le résultat d'une réversion d'un polymorphe haute pression (coésite selon toute vraisemblance). Ce polymorphe aurait été produit à un joint de grain à cause de la structure particulière de l'onde de choc à cet endroit. Pour les mêmes raisons, cette structure particulière aurait produit le mosaïcisme.

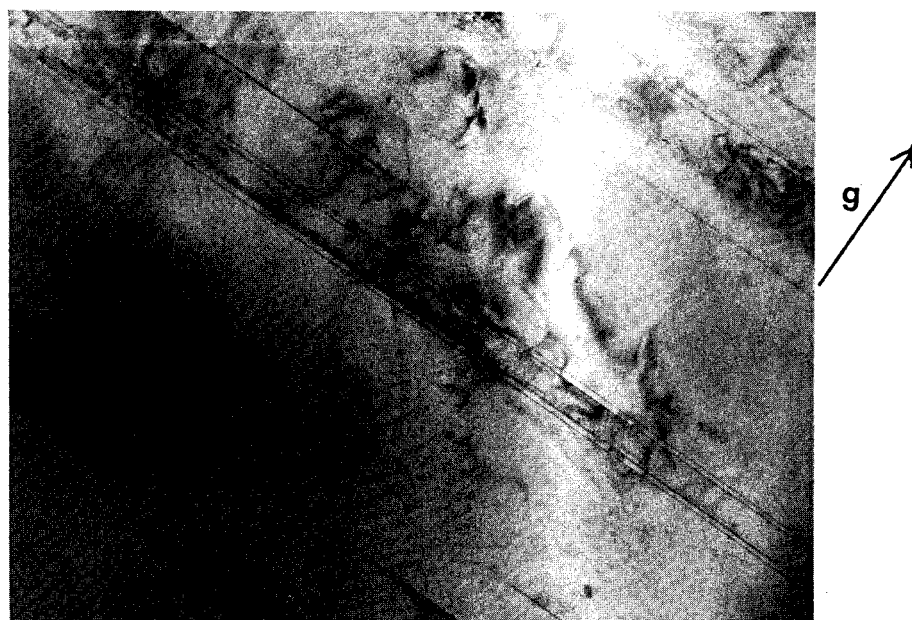
En conclusion, on trouve dans les grains de quartz provenant du site de Raton Basin des PDF présentant diverses microstructures. Tout d'abord, on observe des fines lamelles de macles du Brésil dans le plan de base. Elles ont manifestement une origine mécanique et, comme dans les cas précédents, elles reflètent une contrainte déviatorique de l'ordre de 4 GPa. Une autre microstructure de PDF caractéristique a l'apparence d'alignements de très petites bulles. Il s'agit sans doute d'une microstructure ayant évolué sous l'influence d'un recuit à température modérée. La structure initiale pourrait avoir été des bandes de dislocations devenues sites préférentiels de précipitation lors du recuit. Cet

épisode de recuit post-choc est à rapprocher de celui observé sur les quartz des sites de La Malbaie et Slate Islands. Dans un échantillon peu choqué, une structure "en échelon" a été observée (figure IV-66) sans que nous puissions mieux caractériser la microstructure de ce défaut ainsi que les mécanismes l'ayant généré. On observe également une autre microstructure de PDF qui, elle, ne semble pas avoir été affectée par un recuit. Cette microstructure est sensiblement identique à celle observée dans les quartz des suevites du site de Ries Crater. Nous l'avons détectée dans les grains de quartz les plus gros qui nous apparaissent aussi avoir été les plus fortement choqués. Le site de Raton Basin présente donc une assez grande variété de microstructures de PDF qui semblent refléter des histoires thermiques différentes. C'est une situation complexe que nous discuterons plus en détail dans le chapitre suivant.

MICROGRAPHIES DU SITE DE RATON BASIN

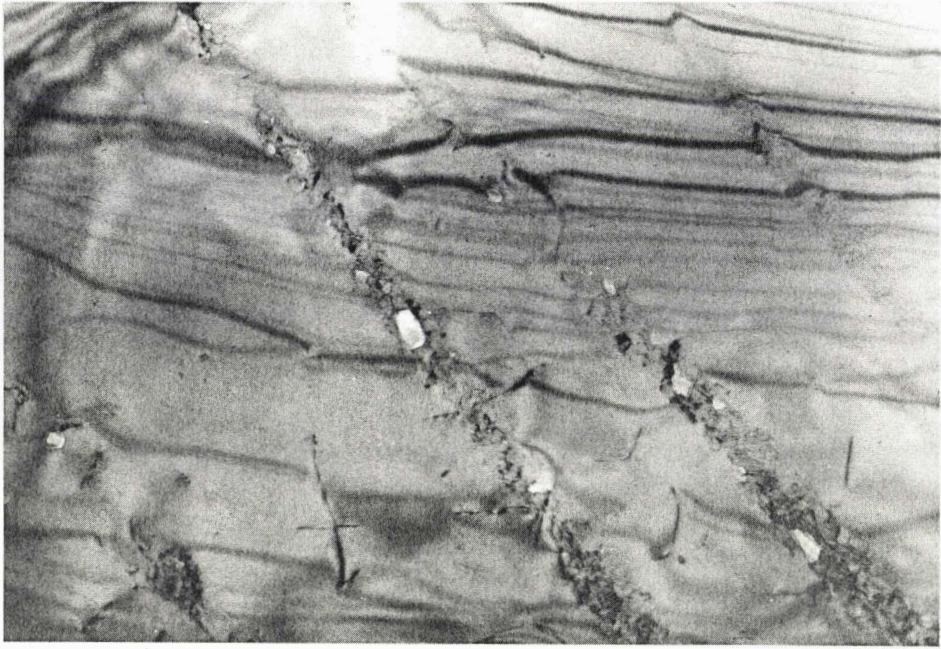


**Figure IV-47:** macle du Brésil d'origine mécanique (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).

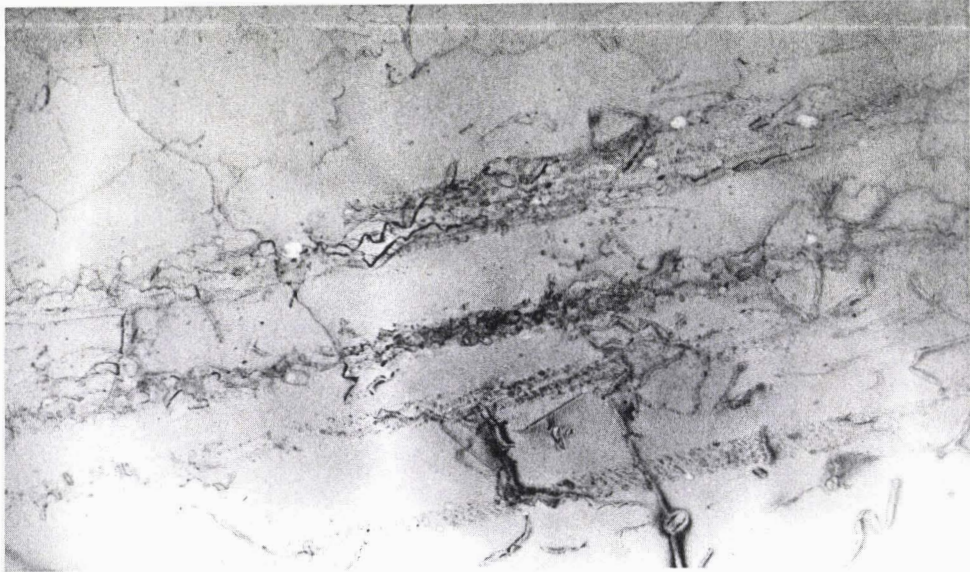


**Figure IV-48:** même grain que ci-dessus. Les plans de macle sont vus "de bout",  $g=[0003]$  (barre d'échelle 1 $\mu$ m).





**Figure IV-49:** Quelques grosses bulles ont précipité sur les PDF, signes d'un métamorphisme post-choc (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



**Figure IV-50:** Vue d'ensemble d'un grain. On observe des PDF. Les dislocations sont en configuration de montée (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



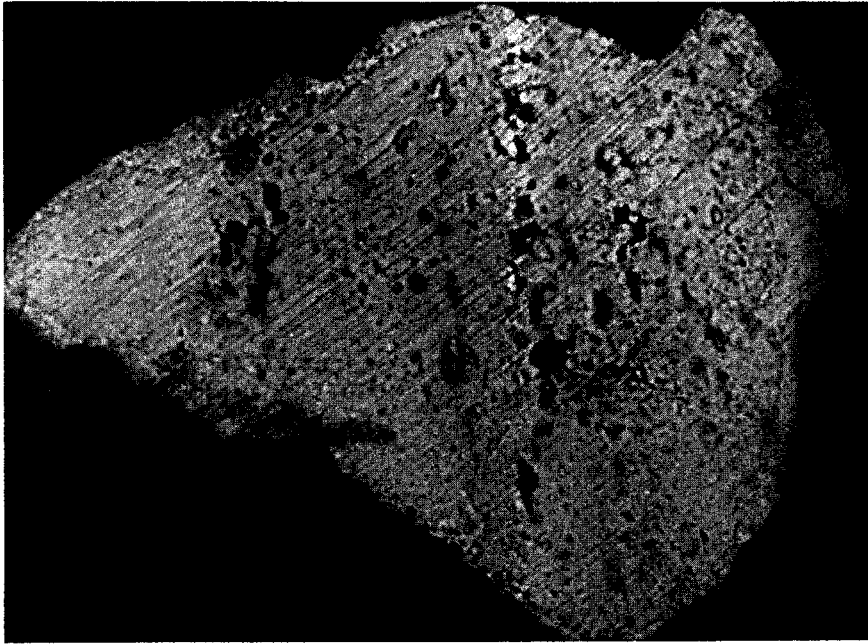
**Figure IV-51:** Lorsque l'on fait un agrandissement de l'un de ces PDF, on se rend compte qu'il est constitué d'un grand nombre de très petites bulles alignées selon une direction. De même, de très petites bulles ont précipité sur les dislocations d'origine tectonique (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



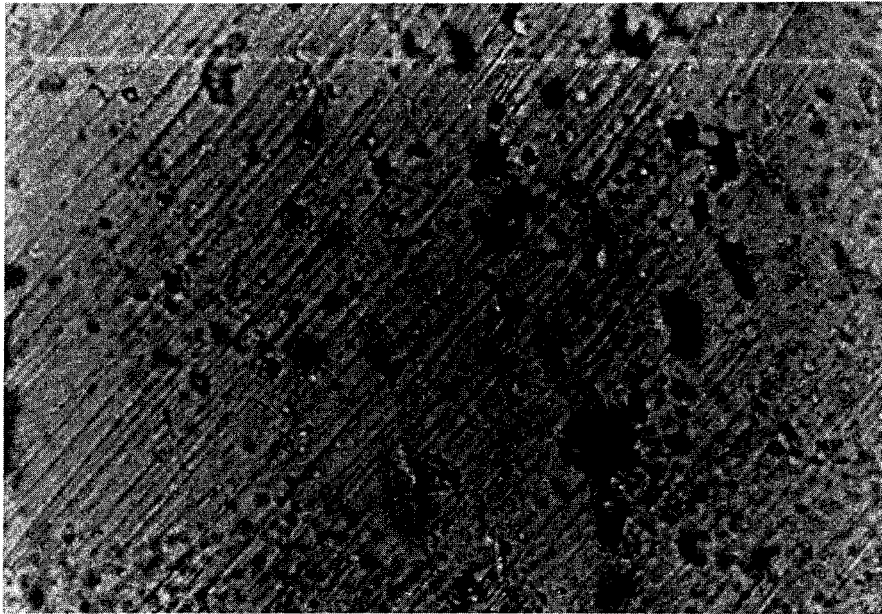
**Figure IV-52:** Dans un autre grain, on observe également cette fine précipitation, ainsi qu'un sous-joint (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



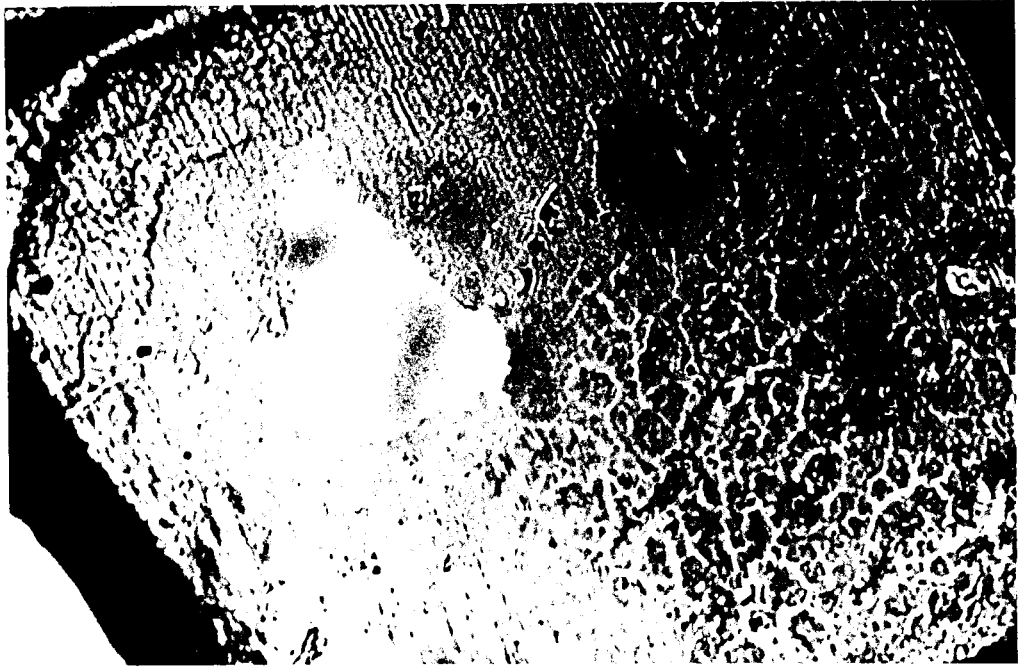
**Figure IV-53:** observation d'un autre grain. Ici aussi on observe cette fine précipitation. Ce grain a été enrobé dans la résine et non dans le verre au plomb. Il n'a donc pas subi les 450°C nécessaires à cette deuxième méthode de préparation (contrairement aux deux grains précédents). Les petits points entre les PDF sont des marques d'irradiation (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



**Figure IV-54:** micrographie optique en lumière polarisée d'un grain de quartz très choqué (provenant de Bohor) (barre d'échelle 50 $\mu$ m).



**Figure IV-55:** vue agrandie de la zone centrale du même grain (barre d'échelle 25 $\mu$ m).



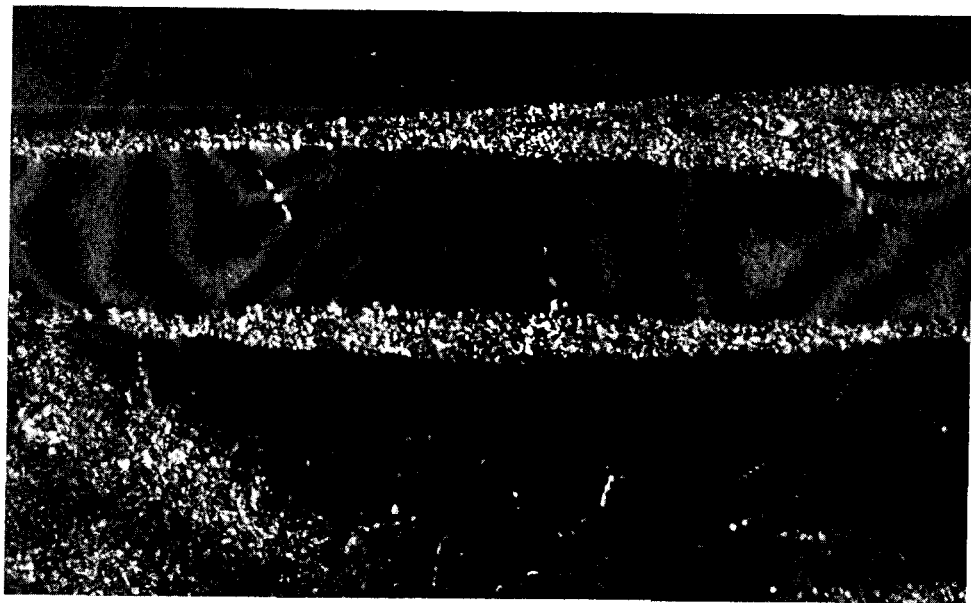
**Figure IV-56:** même grain après amincissement ionique (vu en lumière naturelle) (barre d'échelle 25 $\mu$ m).



**Figure IV-57:** vue d'ensemble du même grain en MET. On observe une grande densité de PDF (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



**Figure IV-58:** champ noir d'un autre grain très choqué (barre d'échelle  $1\mu\text{m}$ ).



**Figure IV-59:** champ noir de la même zone à plus fort grossissement. Les PDF sont constitués de petits points clairs. Ces défauts semblent constitués d'un mélange de phase amorphe et de cristallites en proportion différente de ceux rencontrés dans les quartz de Ries Crater (barre d'échelle  $0,5\mu\text{m}$ ).

Figure IV-61: Nous avons plusieurs fois détecté une grande densité de PDF formant un "micropavage" (barre d'échelle 0,5µm).

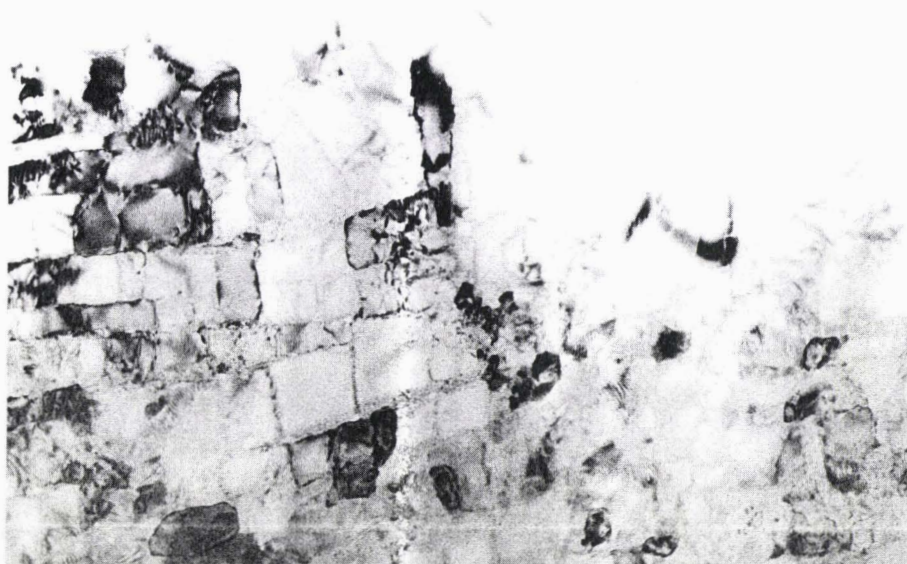
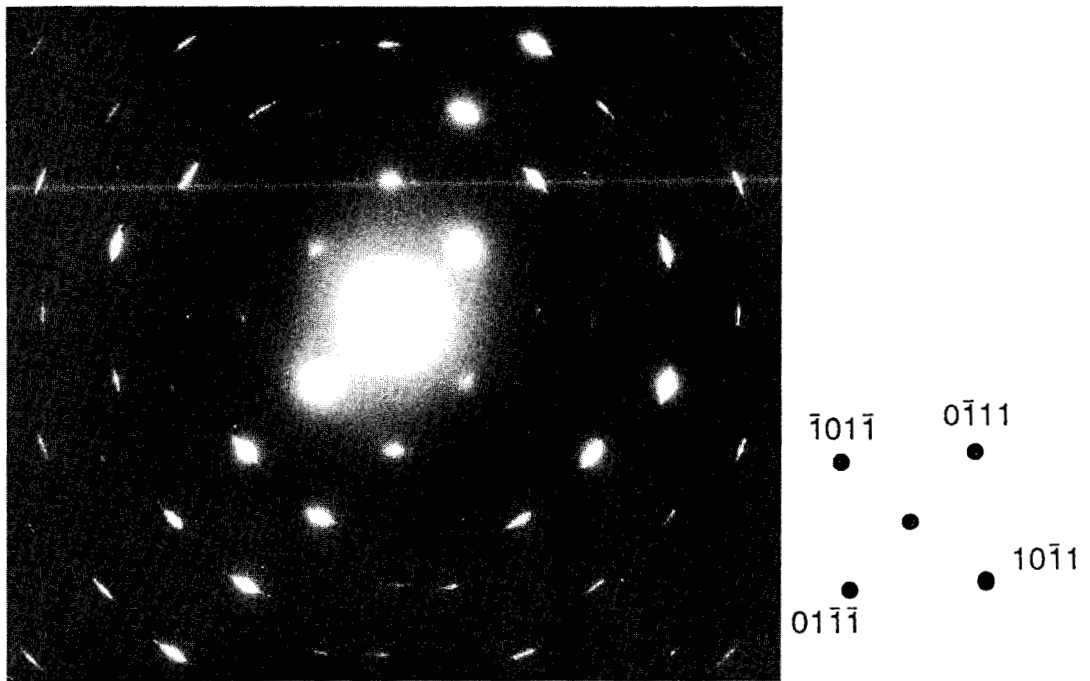


Figure IV-60: champ clair d'un grand très choqué. On observe des "trous" qui n'ont pas la configuration habituelle des bulles d'eau (barre d'échelle 1µm).



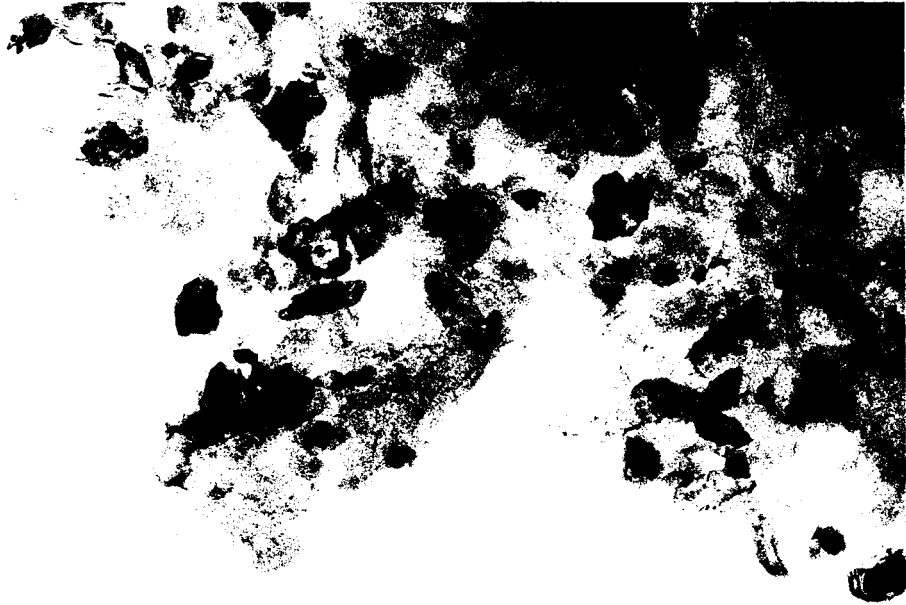


**Figure IV-62:** même zone que précédemment à plus fort grossissement (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).

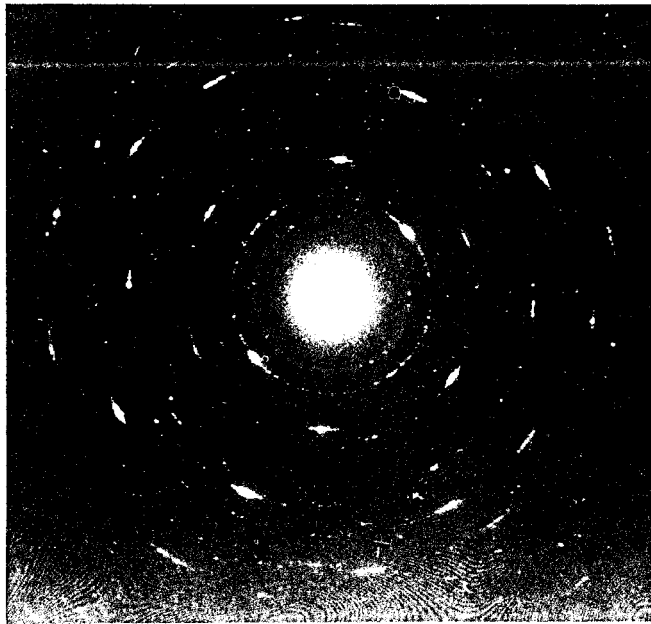


**Figure IV-63:** un cliché de diffraction effectué sur cette zone montre une désorientation de quelques degrés des cristaux les uns par rapport aux autres.

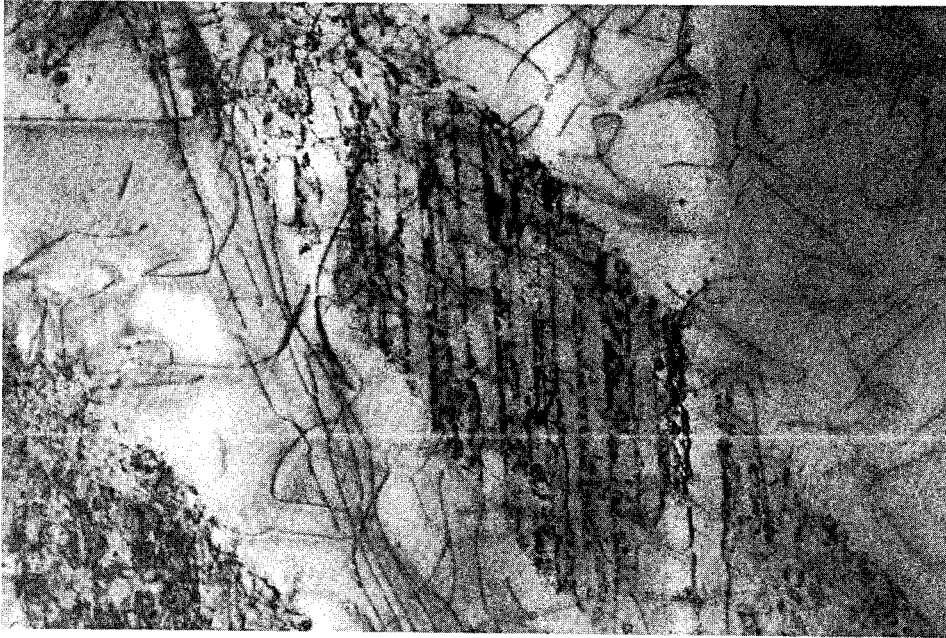




**Figure IV-64:** certaines zones de ces grains très choqués sont polycristallines (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).



**Figure IV-65:** un cliché de diffraction effectué sur ces grains correspond à du quartz polycristallin (aucune phase haute pression n'est détectée).



**Figure IV-66:** un seul PDF "en échelon" a été observé parmi la vingtaine de grains observés concernant ce site (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



## IV-5 : LA CALDEIRA DE TOBA

### IV-5-a : Contexte géologique

La caldeira de Toba, à Sumatra, est le résultat de l'explosion du volcan Toba, il y a 75 000 ans. Cette explosion volcanique est la plus importante des dernières centaines de milliers d'années (plusieurs ordres de grandeur plus importante que des éruptions récentes telles celles du Tambora (1815) d'après Chesner et al., 1991). La forme du cratère volcanique (la caldeira) est une ellipse de dimensions 100 x 30 km<sup>2</sup>. C'est parce que cette éruption est l'une des plus violentes du passé récent de la Terre que les roches de la caldeira de Toba ont été étudiées. Le but était de déterminer si une éruption volcanique puissante et violente peut produire des PDF dans les grains de quartz. Carter et al. (1986) ont effectivement détecté optiquement des PDF dans quelques grains de quartz des ignimbrites de la caldeira (moins de 1% des grains de quartz présenteraient des PDF au microscope optique). Les échantillons que nous avons observés nous ont été fournis par Carter. Il s'agit d'une ignimbrite (roche formée par la coalescence de débris de laves) provenant d'un carottage référencé 10.680. C'est dans cet échantillon que Carter avait observé des quartz présentant des PDF.

### IV-5-b : Observations

Nos propres observations par microscopie optique sur des sections pétrographiques standards (épaisseur 30 µm) ne nous ont pas permis de détecter des grains de quartz choqués. En tout, 621 grains de quartz ont été observés optiquement dans 26 sections pétrographiques standard différentes. Dans ces roches, les grains de quartz sont généralement d'assez grande dimension (jusque 1 à 2 mm). Cependant, on retrouve quelquefois de petits morceaux de roches incluses dans l'ignimbrite. Ces petits morceaux présentent des grains de quartz plus petits (de l'ordre de 100 µm, 200 µm pour les plus gros). Ces petits morceaux de roches proviennent très vraisemblablement de l'encaissant du volcan et ont été ramonés puis éjectés lors de l'explosion. Dans ces grains de quartz non plus, aucun PDF n'a été détecté optiquement.

En MET, les grains de quartz de l'ignimbrite même sont vierges de défauts. Nous n'avons pas détecté une seule dislocation dans la dizaine de grains observés au MET (voir figures IV-67 et 68). La densité de dislocations doit être relativement faible, et dans ce cas, on sait que le MET n'est plus un outil pratique pour la détection de ces défauts à cause de son grandissement trop important. Les petits grains provenant vraisemblablement de l'encaissant du volcan n'ont pas donné de résultats plus intéressants. Nous y avons détecté des dislocations le plus souvent organisées en sous-joints ou en configuration de montée, typiques d'une déformation à haute température. Cette information est bien cohérente avec ce que l'on sait de l'histoire de ce matériel, mais aucun PDF ou quoi que ce soit y ressemblant n'a été observé (voir figures IV-69 à 71).

En conclusion, aucun indice d'onde de choc (PDF) n'a été détecté dans l'échantillon de roche de la caldeira de Toba. Ceci porte un sérieux doute sur la possibilité de créer des PDF lors d'explosions volcaniques, même de forte intensité.

MICROGRAPHIES DU SITE DE TOBA

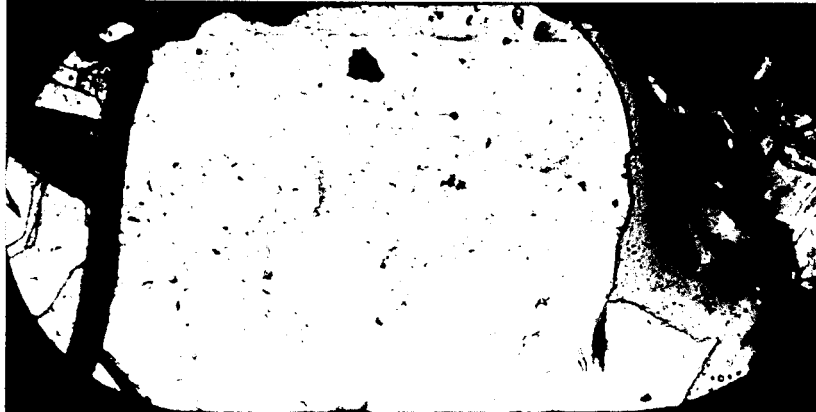


Figure IV-67: micrographie optique en lumière polarisée d'un grain. Aucun PDF n'est visible (barre d'échelle 200 $\mu$ m).

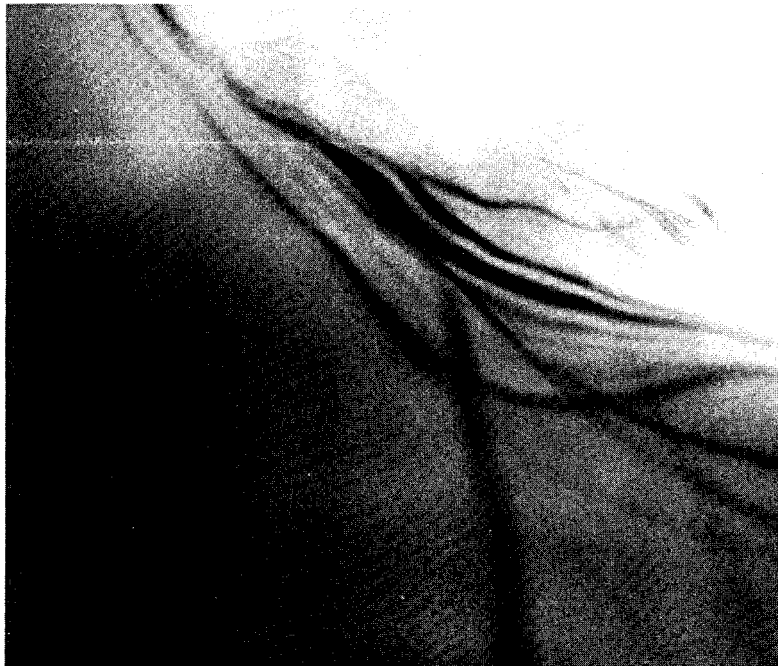
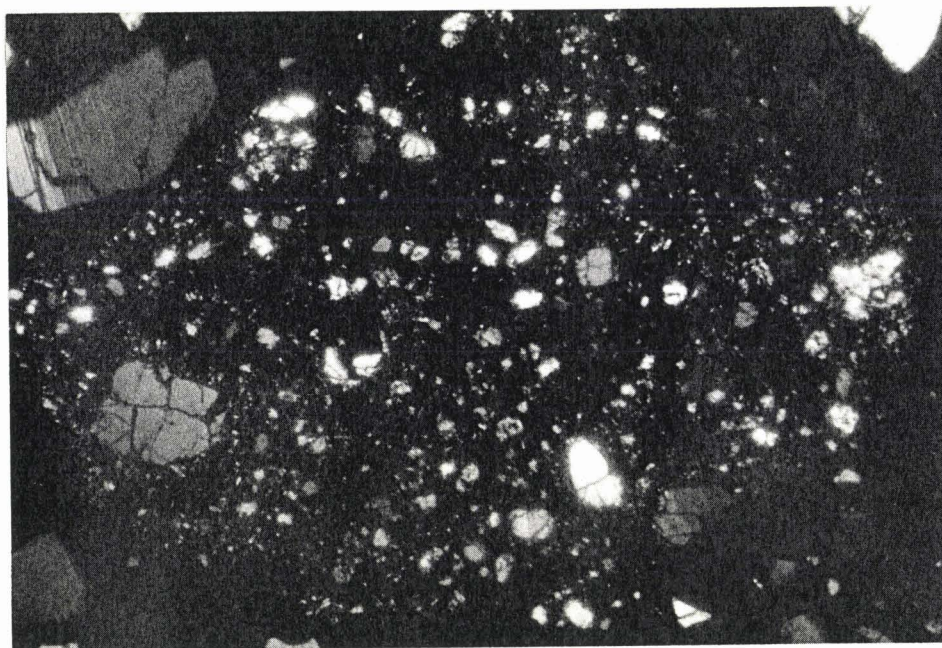
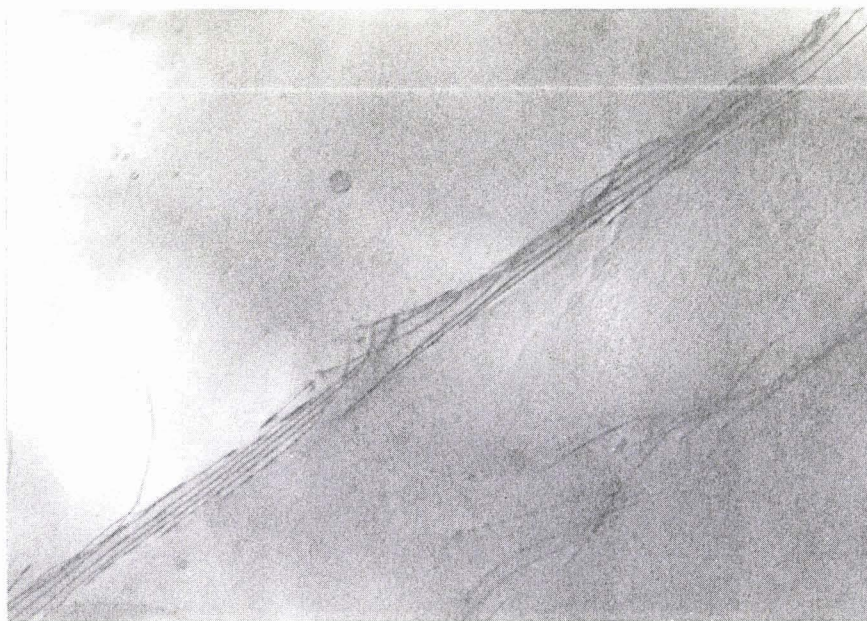


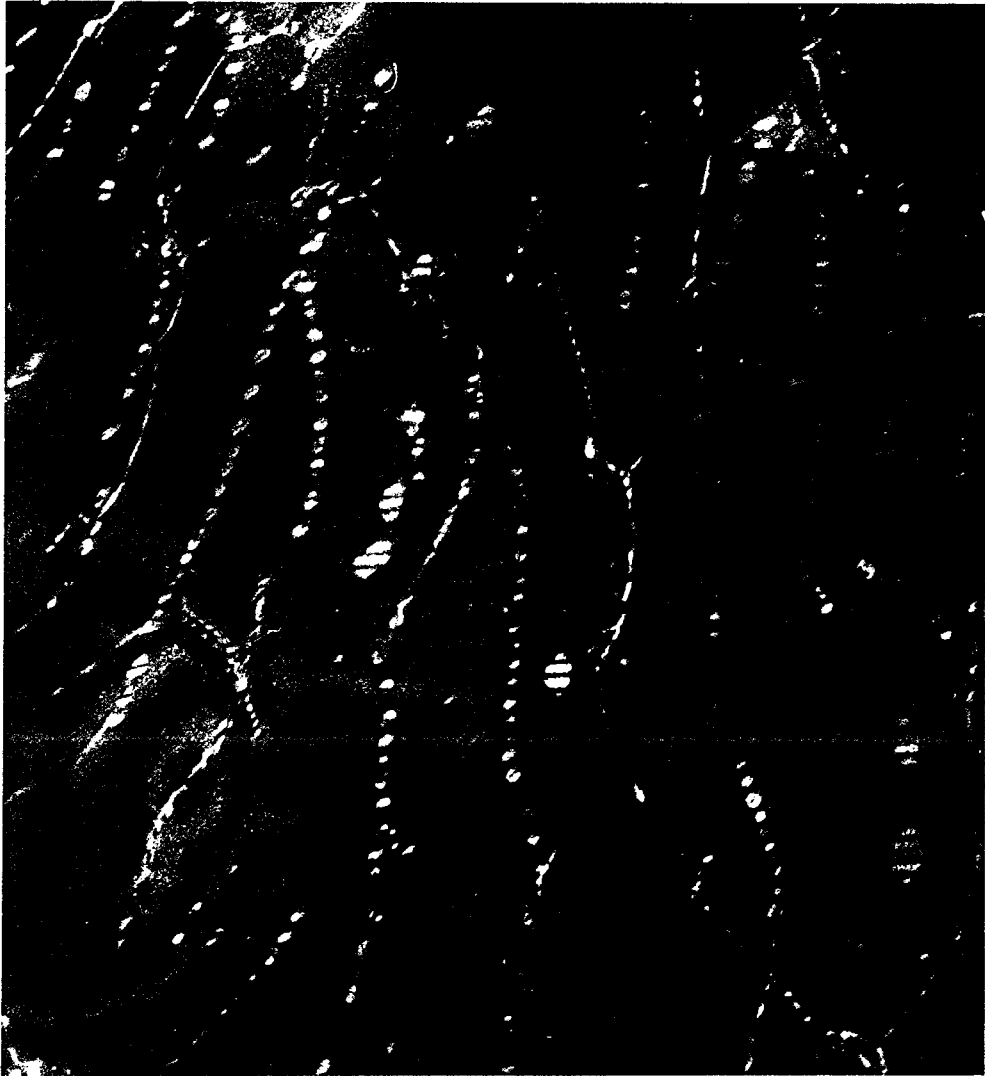
Figure IV-68: image en MET (champ clair) du même grain. Il n'y a strictement aucun défaut (ni dislocation, ni PDF) (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



**Figure IV-69:** micrographie optique en lumière polarisée d'un morceau de roche de l'encaissant ayant été éjecté lors de l'éruption (barre d'échelle 200 $\mu$ m).



**Figure IV-70:** image en MET (champ clair) de l'un de ces petits grains. Il n'y a que quelques dislocations arrangées en sous-joint (barre d'échelle 1 $\mu$ m).



**Figure IV-71:** champ noir d'un autre de ces petits grains. Il n'y a, ici encore que des dislocations sur lesquelles de nombreuses petites bulles ont précipité. Les systèmes de franges sont associés à des fautes dues aux dislocations partielles attachées à une bulle (barre d'échelle 0,5 $\mu$ m).





#### IV-6 : CONCLUSION

L'observation par MET de grains de quartz choqués de ces différents sites nous a permis de montrer que les PDF présentent des microstructures variées. Ce ne sont pas uniquement des lamelles de phase amorphe comme on le supposait précédemment. Les diverses microstructures de PDF que nous avons caractérisées ne sont cependant pas nécessairement des structures originelles; il est clair que dans certains cas au moins, les épisodes thermiques post choc ont affecté profondément ces microstructures, le cas extrême étant peut-être celui du Vredefort où elles seraient quasiment complètement effacées.

Il n'est sans doute pas inutile de synthétiser brièvement nos observations sous la forme d'un tableau comparatif. Les diverses microstructures caractérisées sont :

- les macles mécaniques,
- les bandes de dislocations,
- les lamelles constituées d'un mélange en proportions variables de phase amorphe et cristalline,
- les veines de phase amorphe
- les empilements de dislocations décorées par des bulles et,
- les défauts "en échelon".

Le tableau IV-1 indique la fréquence d'observation des différents types de défauts en fonction du site considéré pour les échantillons observés.

	Macles mécaniques	Bandes de dislocations	lamelles de phase amorphe et de cristal	Défauts "en échelon"	Veines amorphes
La Malbaie, Slate Islands	30%	40%	30%	0	0
Ries Crater	5%	0	60%	10%	25%
Vredefort	0	0	0	0	0
Raton	10%	45%	40%	5%	0
Toba	0	0	0	0	0

**Tableau IV-1 :** Proportions relatives des différents types de PDF observés dans les grains de quartz des sites étudiés.



## **Chapitre V**

### **Discussion et Interprétation**



Nous avons entrepris cette étude par MET des PDF dans le quartz il y a presque trois ans. A cette époque, il y avait un assez large consensus parmi les scientifiques impliqués dans l'étude du métamorphisme de choc pour penser que, parmi les défauts engendrés par les ondes de choc, les PDF dans les grains de quartz en étaient un des indices les plus forts. Ces PDF étaient détectés par microscopie optique. C'étaient des "lignes de contraste" parallèles à quelques plans de bas indices de la structure cristalline du quartz. Aucune explication n'était proposée pour expliquer leur formation ou leur orientation qui est apparemment cristallographiquement contrôlée. En outre, bien qu'aucune caractérisation précise ne l'ait clairement démontré, il était plus ou moins admis que ces PDF étaient de fines lamelles de phase amorphe.

Quelles sont les informations supplémentaires apportées par notre investigation en MET? Quels modèles peuvent maintenant être proposés pour la formation de ces PDF, modèles qui devraient bien sûr rendre compte du contrôle cristallographique dans des plans d'indices  $\{10\bar{1}n\}$ ? Ces PDF sont-ils des défauts spécifiques des ondes de choc? Quelle relation peut-on établir entre telle ou telle microstructure de PDF et les paramètres du choc qui l'a engendrée? Qu'en est-il de la limite K/T? Notre investigation des grains de quartz des sédiments de Raton Basin nous permet-elle de trancher dans le débat qui oppose les tenants d'un modèle endogène (origine volcanique, probablement au Deccan) et les tenants d'un modèle exogène (impact d'une gigantesque météorite, lieu inconnu)? Telles sont les quelques questions que nous nous proposons de discuter dans le présent chapitre.

Une première réponse concernant les microstructures des PDF a déjà été apportée dans le chapitre précédent. Il n'y a pas une microstructure unique de PDF. Même si le métamorphisme post-choc a considérablement affecté certaines des microstructures que nous avons détectées dans des sites d'impacts anciens, les lamelles de mélange (amorphe+cristallites) dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3$  et  $4$  sont définitivement différentes des lamelles de macles du Brésil dans le plan de base qui, elles, semblent ne pas être affectées par le métamorphisme post-choc.

Une autre réponse a également été au moins ébauchée dans le chapitre précédent. Il s'agit de remonter à partir des observations effectuées sur les divers sites d'impacts aux microstructures originelles des PDF ou, à tout le moins, de trouver celles qui semblent le moins affectées par un métamorphisme post-choc. Il nous semble clair que les microstructures les moins affectées, donc les plus représentatives, sont celles détectées dans les suevites du site de Ries Crater qui est à la fois la structure d'impact la plus récente de celles que nous avons étudiées et la moins affectée thermiquement. Dans les quartz de ce matériel, nous avons caractérisé trois microstructures de PDF distinctes:

- les lamelles de macles du Brésil dans (0001),
- les lamelles de mélange amorphe+cristallites dans les plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n= 1, 2, 3$  et 4 et enfin
- les structures "en échelon" mal élucidées qui correspondraient peut-être à de la réversion presque complète de lamelles d'un polymorphe haute pression. Cette microstructure ne serait donc pas originelle et n'ayant pu en comprendre la nature, nous n'en parlerons plus dans la suite.

Il nous reste donc à discuter deux microstructures distinctes. L'une, les macles, doit résulter d'une contrainte déviatorique accompagnant l'onde de choc; l'autre, l'amorphisation plus ou moins complète, doit plutôt résulter de la composante sphérique (pression) de l'onde de choc. Nous discutons tout d'abord les mécanismes de formation possibles de ces deux microstructures. Nous abordons ensuite les conséquences géophysiques, en particulier la cause de la crise à la limite K/T.

#### V-1: LES MACLES MECANIQUES

Les caractérisations du chapitre précédent ont bien montré que tous les PDF situés dans le plan de base (0001) sont de fines lamelles de macles du Brésil qui doivent avoir une origine mécanique. On sait que dans nombre de cristaux la déformation par maclage est un processus de déformation rapide sous forte contrainte. On sait aussi que les macles mécaniques peuvent être produites très rapidement, leur vitesse de croissance pouvant approcher la vitesse du son dans le cristal (qui est la limite supérieure de propagation d'une perturbation physique dans un milieu cristallin). Le mécanisme physique responsable de la

génération des macles mécaniques dans les cristaux n'est pas complètement élucidé. Les modèles standard de formation des macles mécaniques sont généralement basés sur une description plus géométrique que physique du phénomène. "Tout se passe comme si" les macles résultaient du glissement de dislocations partielles. Dans le cas du quartz, cette analyse revient à proposer que le maillage résulte du glissement de dislocations de vecteur de Burgers  $a$  dissociées dans le plan de base en deux partielles de vecteurs de Burgers colinéaires  $ua + (1-u)a$  où  $u$  est le paramètre de structure qui vaut 0,465 à température ambiante dans le quartz  $\alpha$  et 0,500 dans le quartz  $\beta$ . Cette dissociation est compliquée par le fait qu'il s'agit d'une dissociation zonale s'étalant sur trois plans (0001) adjacents (voir par exemple le modèle précis développé dans Trépiéd et Doukhan, 1978). Ces macles mécaniques ont pour effet d'inverser l'énantiomorphie du quartz, c'est-à-dire de transformer une structure gauche ( $3_1$ ) en une structure droite ( $3_2$ ). C'est la même inversion que celle produite par les macles du Brésil de croissance. Les macles mécaniques ne sont cependant pas identiques aux macles de croissance que l'on observe souvent dans les monocristaux gemmes. En effet, ces dernières se trouvent toujours dans les plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}1\}$  tandis que les macles mécaniques se développent dans le plan de base. En outre, les macles de croissance ne résultent pas d'une déformation plastique; on pense qu'elles se forment au cours de la croissance hydrothermale lorsque le fluide nourricier est riche en ions  $Al^{3+}$  qui entrent en faible quantité dans le réseau cristallin du quartz. Les parois de macle du Brésil parallèles aux plans  $\{10\bar{1}1\}$  semblent être des sites d'accueil favorables pour ces ions, ce qui explique que le cristal développe de telles parois de macles.

Une description basée sur la propagation de dislocations partielles est tout à fait satisfaisante pour tous les aspects géométriques des macles du Brésil générées par une forte contrainte mécanique. Il n'est par contre pas du tout évident que ce soit la bonne description du processus physique. McLaren et al. (1967), qui ont les premiers observé des fines lamelles de macles mécaniques dans du quartz déformé expérimentalement sous forte contrainte et à basse température, n'ont pas observé de dislocations partielles de vecteur de Burgers  $ua$  ou  $(1-u)a$  mais simplement les parois de macles, comme si les partielles une fois créées se déplaçaient très rapidement et s'échappaient du cristal. Dans ces expériences, la contrainte réduite sur le plan de base (plan de glissement supposé des partielles et plan du joint de



macles) était de l'ordre de 4 GPa. C'est la seule calibration dont nous disposons à ce jour. Elle a été effectuée dans des conditions éloignées de celles produites par une onde de choc. En effet, les déformations étudiées par McLaren et al. étaient réalisées à une vitesse de déformation extrêmement lente par rapport à la vitesse de propagation d'une onde de choc. Dans les lamelles de macles mécaniques générées par ondes de choc, nous observons bien des dislocations dissociées dans les parois de macles. Ces dislocations partielles présentent des directions préférentielles parallèles à  $\langle 2a \pm c \rangle$ , qui sont les orientations préférentielles des dislocations  $a$  produites par déformation plastique. Ces observations ne sont cependant pas suffisantes pour en déduire que les PDF résultent du processus géométrique décrit ci-dessus. En effet, un tel mécanisme implique que, pendant la durée très brève de l'onde de choc, les dislocations  $a$  se multiplient et se distribuent de façon à disposer d'une dislocation dans chaque plan (0001), qu'elles se dissocient et que les deux partielles glissent en sens opposé (sous l'action de la même contrainte bien que leurs vecteurs de Burgers soient parallèles, de même sens et de modules sensiblement identiques). Le quartz est un matériau très dur et les expériences effectuées sur des cristaux préalablement déformés plastiquement ont montré que les ondes de choc n'activent pas le mouvement des dislocations, même dans du quartz humide à relativement haute température (situation pour laquelle le quartz est le plus ductile). La valeur seuil de 4 GPa, qui est la seule calibration disponible, est donc tout à fait sujette à caution quant à son application aux ondes de choc. Cependant, en l'absence d'autres valeurs, nous poursuivrons cette discussion en supposant que la présence de telles macles mécaniques dans le plan de base signifie que l'état de contrainte généré par l'onde de choc dans le cristal comprenait une composante déviatorique active dans le plan de base (hypothèse raisonnable) et que cette contrainte déviatorique était de l'ordre de 4 GPa (valeur très peu précise). Pour que l'onde de choc conserve une structure d'onde de choc, il faut que les autres composantes du tenseur des contraintes, en particulier la composante sphérique ( $1/3$  trace  $\sigma$ ) soit plus importante que la composante déviatorique. Enfin, il est tout à fait remarquable que les événements post-chocs n'affectent jamais ces lamelles de macles. On ne les trouve jamais décorées par de la précipitation d'eau comme le sont les autres PDF. Cette remarque s'applique à tous les sites d'impact étudiés, même celui du Vredefort où ce métamorphisme a atteint des températures très élevées et a sans doute duré très longtemps.

En tout cas, les PDF "macles mécaniques du Brésil" ont bien induit une déformation plastique ductile (sans fissuration) qui reste localisée dans les fines bandes de déformation que sont ces lamelles de macle. Le cisaillement correspondant est bien visualisé par l'intersection avec une macle du Dauphiné, comme le montre par exemple la figure IV-11 provenant d'un échantillon de La Malbaie. Le mécanisme responsable du contrôle cristallographique des PDF est dans ce cas évident puisque les macles mécaniques ne peuvent se développer que dans le plan de base (0001). Suggérons enfin pour clore ce paragraphe que ces défauts qui sont les seuls que l'on ait pu reproduire au laboratoire avec des contraintes moins élevées que celles impliquées dans une onde de choc nous apparaissent être les premiers PDF produits dans une échelle d'intensité de choc croissante.

## V-2 : LES LAMELLES DE PHASE AMORPHE

Les lamelles constituées du mélange en proportions variables d'amorphe et de cristallites sont, nous semble-t-il, les structures les plus proches des structures originelles des PDF, c'est à dire celles qui ont été le moins - ou pas du tout - affectées par le métamorphisme post-choc.

Nous avons délibérément évité tout au long de ce mémoire d'utiliser le terme "verre" pour décrire la matière de ces lamelles. En effet, un verre est le produit résultant du refroidissement d'un liquide suffisamment rapide pour empêcher sa cristallisation. Le matériau résultant présente alors une transition vitreuse à une température inférieure à la température de fusion. C'est le cas de la silice amorphe usuelle avec une température de transition vitreuse de l'ordre de 1000°C. Il n'est pas évident que la phase amorphe générée par l'onde de choc présente une transition vitreuse, nous avons donc préféré le terme plus général d'amorphe. On peut, bien sûr, obtenir une phase amorphe par fusion, mais elle peut également résulter d'une amorphisation à l'état solide (par irradiation par exemple).

Les PDF "amorphe+cristallites" présentent des interfaces parallèles aux plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3$  ou  $4$ . Leur épaisseur moyenne varie d'un échantillon à l'autre de 250 Å à 2500 Å. Les cristallites sont très petits (leur taille moyenne est

dé l'ordre de 100 Å). La proportion d'amorphe varie d'une lamelle à l'autre et même le long d'une lamelle où elle peut passer de  $\approx 50\%$  à presque 100% sur une distance de quelques microns (voir figure IV-26). Contrairement aux macles du Brésil, ces lamelles n'induisent pas de cisaillement comme le montre par exemple leur intersection avec un sous-joint (figure IV-27). Ces PDF ne semblent pas résulter d'une fusion et d'ailleurs un mécanisme de formation par fusion localisée n'expliquerait pas pourquoi ou comment une telle fusion reste localisée dans des bandes étroites et parallèles aux plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}n\}$ . Il n'est pas non plus évident que l'augmentation de température produite par l'onde de choc soit assez élevée pour entraîner la fusion du quartz. Celle-ci n'apparaît que pour des intensités de choc  $\geq 40$  GPa. La formation de ces lamelles partiellement amorphes doit donc résulter d'une transformation à l'état solide.

C'est précisément un tel phénomène d'amorphisation du quartz à l'état solide sous pression qu'ont découvert Hemley et al. (1988). Ces auteurs montrent que le quartz s'amorphise à température ambiante à partir de pressions de  $\approx 25$  GPa appliquées de façon statique. Les modèles théoriques développés Chelikowsky et al. (1991) placent plutôt le début de cette amorphisation vers 15 GPa. Pour ces derniers auteurs, la cause de l'amorphisation à l'état solide serait la diminution de l'angle Si-O-Si qui induirait une déstabilisation de la structure du quartz  $\alpha$ . L'amorphisation à l'état solide est donc justifiée tant expérimentalement que théoriquement, mais ces résultats n'expliquent pas pourquoi l'amorphisation que nous observons est limitée à des lamelles étroites et rectilignes, parallèles aux plans rhomboédriques. C'est ce dernier point que nous discutons maintenant: comment la structure particulière de la contrainte associée à une onde de choc entraîne-t-elle la formation de ces lamelles? Nous commençons cette discussion par la question: pourquoi les plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}n\}$  sont-ils plus favorables à l'amorphisation que d'autres?

#### V-2-a : Critère de Born

Born (1939) et Born et Huang (1954) se sont intéressés à la stabilité d'une structure cristalline sous pression et ont proposé un critère de stabilité basé sur les constantes élastiques du cristal. Pour ces auteurs, un cristal soumis à des contraintes mécaniques est stable si et seulement si la densité d'énergie de déformation

associée à ces contraintes est une forme quadratique définie positive. De cette manière, l'énergie élastique emmagasinée augmente pour chaque incrément de déformation. Il en résulte que le tenseur des constantes élastiques doit être défini positif. Une telle condition n'est réalisée que si ses mineurs principaux sont tous strictement positifs. Bien que le critère de Born ne s'appuie pas sur les principes généraux de la thermodynamique (une phase cesse d'être stable lorsque son enthalpie libre devient supérieure à celle d'un autre polymorphe ou à celle de produits de réaction ou de décomposition), il est intéressant de rechercher les limites de stabilité qui découlent de ce critère.

Le tenseur des constantes élastiques d'un cristal est un tenseur  $\mathbf{C}$  de rang 4, de composantes  $C_{ijkl}$  dans un repère  $Oxyz$ . On utilise souvent une notation compacte pour ces composantes, les quatre indices  $ijkl$  sont pris deux à deux et remplacés par un seul indice variant de 1 à 6. La notation contractée donne alors une matrice  $6 \times 6$  symétrique  $C_{IJ}$  avec les relations d'équivalence suivantes ( $ij \Rightarrow I$  ou  $kl \Rightarrow J$ ) :

$$11 \Rightarrow 1, 22 \Rightarrow 2, 33 \Rightarrow 3, 23 \Rightarrow 4, 13 \Rightarrow 5, 12 \Rightarrow 6$$

La matrice  $6 \times 6$  du tenseur des constantes élastiques se déduit des composantes  $c_{ijkl}$  par les relations  $C_{IJ} = c_{ijkl}$  si  $I$  et  $J$  sont tous deux inférieurs ou égaux à 3;  $C_{IJ} = 2 c_{ijkl}$  si l'un des deux indices est compris entre 4 et 6, l'autre étant inférieur ou égal à 3; et enfin  $C_{IJ} = 4 c_{ijkl}$  si  $I$  et  $J$  sont tous deux compris entre 4 et 6.

Compte tenu des symétries du cristal, on a pour le quartz  $\alpha$ , dans le repère orthonormé  $Oxyz$  tel que  $Ox // \mathbf{a}_1$  et  $Oz // \mathbf{c}$  :

$$\begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & -C_{14} & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ C_{14} & -C_{14} & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & C_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} & C_{66} \end{bmatrix}$$

avec  $C_{66} = 1/2 (C_{11} - C_{12})$ .

De façon similaire, le tenseur des contraintes  $\sigma$  et le tenseur des déformations  $\varepsilon$  s'écrivent comme des vecteurs à 6 composantes. Le tenseur  $\gamma$  se déduit du tenseur des déformations  $\varepsilon$  par les relations suivantes  $\gamma_J = \varepsilon_{ij}$  pour  $J = 1, 2$  ou  $3$  et  $\gamma_J = 2 \varepsilon_{ij}$  pour  $J = 4, 5$  ou  $6$ .

Avec ces notations, le critère de Born conduit aux équations suivantes:

$$C_{11} - C_{12} > 0 \quad (V-1)$$

$$(C_{11} + C_{12}) C_{44} - 2 C_{13}^2 > 0 \quad (V-2)$$

$$C_{11} C_{33} C_{44} - C_{13}^2 C_{44} - C_{14}^2 C_{33} > 0 \quad (V-3)$$

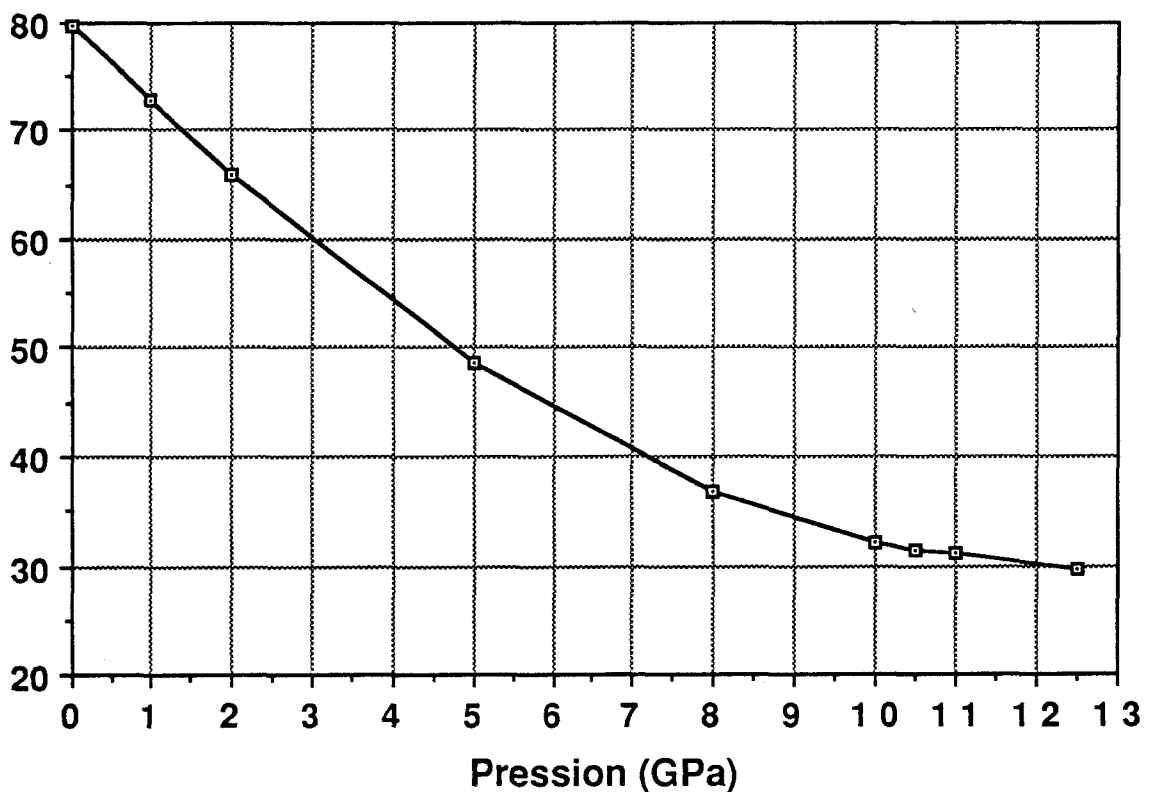
Pour vérifier ce critère de stabilité, il nous faut connaître les variations de ces divers coefficients avec la pression. Parce que le quartz a de nombreuses applications piézoélectriques, on dispose de nombreuses mesures de ces constantes élastiques à pression ambiante (voir par exemple Bechmann, 1958; McSkimin, 1962; ainsi que des compilations dans Landolt-Börnstein, 1982; Halliburton et Martin, 1985; Brice, 1985). Les constantes élastiques sous pression ont été mesurées par Mc Skimin et al. (1965) jusque 1 kilobar. Au delà, les déterminations expérimentales deviennent très difficiles et aucune mesure n'a été effectuée. Par chance, ces constantes élastiques ont été calculées récemment par Purton et al. (1992) par une méthode de potentiels ab initio. En bref, cette méthode consiste à simuler le cristal de quartz  $\alpha$  par un amas d'atomes ( $\approx 80$  dans le cas présent) et partant des positions d'équilibre, à les rapprocher pour simuler l'effet de la pression. On calcule l'énergie de l'amas et on la minimise par rapport aux déplacements, ce qui fournit les déplacements (amplitudes et directions). On déduit ensuite de l'énergie et des déplacements les nouvelles constantes élastiques. Notons que cette méthode, parce qu'elle impose la structure, permet de calculer les constantes élastiques d'un solide en dehors de son champ de stabilité. Les valeurs calculées ainsi par Purton et al. à 0°K sont reproduites dans le tableau ci-dessous :

Pression (GPa)	C <sub>11</sub> (GPa)	C <sub>33</sub> (GPa)	C <sub>44</sub> (GPa)	C <sub>12</sub> (GPa)	C <sub>13</sub> (GPa)	C <sub>14</sub> (GPa)	C <sub>66</sub> (GPa)
0	86,7	107,2	57,9	7	11,9	-17,9	39,9
1	86,4	103,3	43,6	13,5	14,8	-17,0	36,2
2	84,2	105	40,8	18,2	16,7	-15,4	32,2
5	80,8	111,2	31,6	32,1	23,1	-9,9	24,6
8	81,2	119,2	22,2	44,5	30,2	-3,0	18,3
10	84,2	124,6	18,0	52,2	35,5	12,1	15,8
10,5	84,6	125	17,7	53,3	36,0	16,7	15,7
11	85,1	125,8	17,5	54,0	36,0	22,5	15,6
12,5	86,2	128,3	16,4	56,6	38,2	38,2	15,2

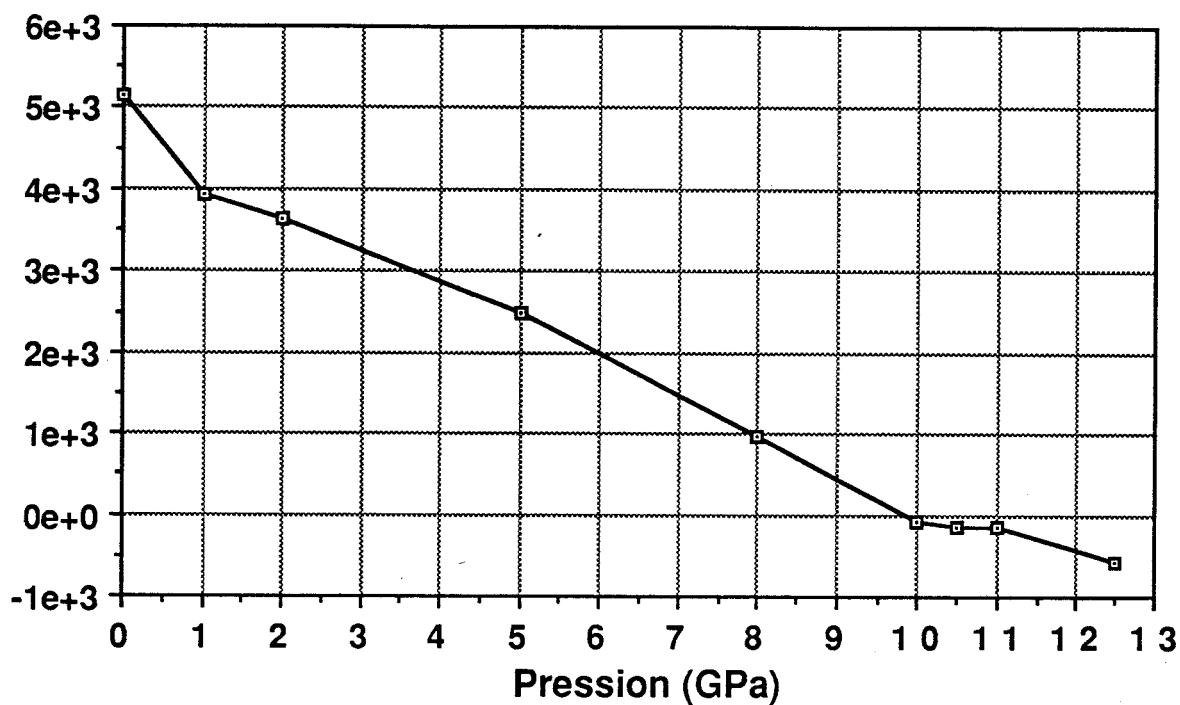
**Tableau V-1** : valeurs des constantes élastiques en gigapascals à différentes pressions d'après Purton et al. (1992).

En reportant ces valeurs dans les formules du critère de Born, on s'aperçoit que l'équation V-2  $((C_{11} + C_{12}) C_{44} - 2 C_{13}^2 > 0)$  n'est plus vérifiée lorsque la pression atteint une valeur d'environ 10 GPa (voir figures V-1 à V-3). Le quartz  $\alpha$  cesse donc d'être stable à partir de cette pression, ce qui est en bon accord qualitatif avec l'expérience (les lamelles de phase amorphe apparaissent pour des chocs expérimentaux à  $\approx 10$  GPa). Si nous reportons ce résultat sur le diagramme de phase de SiO<sub>2</sub>, nous tombons dans le domaine des basses températures qui n'est pas connu car les cinétiques de transformation de phase à l'équilibre sont trop lentes. On peut cependant extrapoler les courbes biphasées. La transformation quartz  $\alpha$  -> coésite se situerait alors à température ambiante aux alentours de 1,5 GPa et la transformation coésite -> stishovite aux alentours de 8 GPa. Il y a donc un net décalage entre les prédictions du critère de Born et les extrapolations à température ambiante des transformations connues du quartz vers les polymorphes de haute pression.

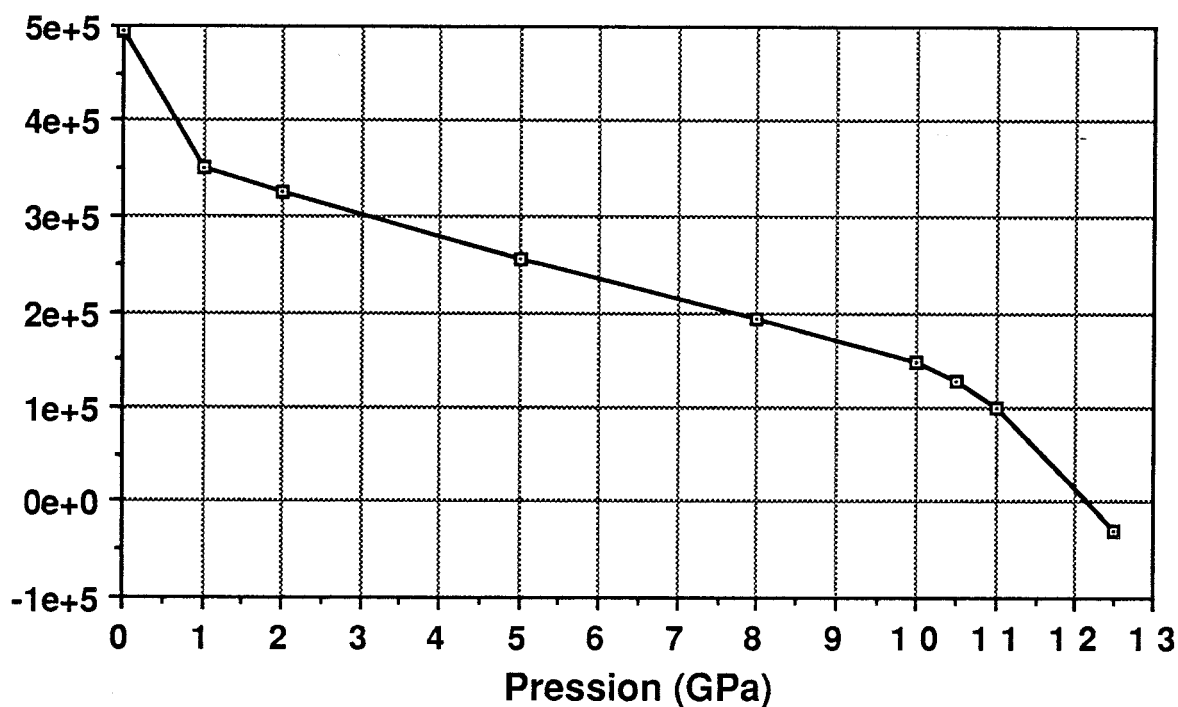
Il faut se souvenir que le critère de Born est un critère mécanique et non thermodynamique. Il ne nous renseigne donc que sur la stabilité d'un cristal soumis à une déformation et non sur la nouvelle structure stable (déterminée par l'enthalpie libre minimum). Lorsqu'une structure cristalline devient instable du point de vue du critère de Born, c'est une instabilité mécanique qui est responsable de sa transformation en une nouvelle phase. Si c'est un tel processus qui est effectivement à l'origine de la formation de nos lamelles de phase amorphe, il nous faut examiner les propriétés mécaniques du quartz sous pression. Le critère de Born ne fournissant aucune indication sur les plans selon lesquels l'instabilité mécanique se produirait, nous devons calculer les modules de cisaillement du quartz dans divers plans et plus particulièrement dans les plans rhomboédriques  $\{10\bar{1}n\}$ . L'idée de base qui nous conduit à entreprendre ce calcul est que si une instabilité du module de cisaillement se produit dans un tel plan lorsque la pression augmente, l'amorphisation doit démarrer dans ce plan devenu instable.



**Figure V-1:** Evolution avec la pression de la première inégalité imposée par le critère de Born ( $C_{11} - C_{12} > 0$ ).



**Figure V-2:** Evolution avec la pression de la deuxième inégalité imposée par le critère de Born  $((C_{11} + C_{12}) C_{44} - 2 C_{13}^2 > 0)$ .



**Figure V-3:** Evolution avec la pression de la troisième inégalité imposée par le critère de Born  $(C_{11}C_{33}C_{44} - C_{13}^2C_{44} - C_{14}^2C_{33} > 0)$ .



### V-2-b : Calculs des modules de cisaillement

En élasticité isotrope, le module de cisaillement dans un plan de normale  $i$  et selon la direction  $j$ , est le rapport de la contrainte de cisaillement ( $\sigma_{ij}$ ) divisée par deux fois la déformation ( $\varepsilon_{ij}$ ). En effet, la loi de Hooke pour un solide isotrope s'écrit:

$$\sigma = \lambda \theta \delta + 2 \mu \varepsilon$$

où  $\sigma$  est le tenseur des contraintes;  $\varepsilon$  le tenseur des déformations et  $\delta$  le tenseur de Kroneker (dont les composantes sont  $\delta_{ii} = 1$  et  $\delta_{ij} = 0$  pour  $i \neq j$ ).  $\theta$  est la trace du tenseur des déformations, c'est à dire  $\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}$ .  $\lambda$  et  $\mu$  sont les constantes de Lamé,  $\mu$  étant le module de cisaillement du matériau élastique et isotrope.  $\mu$  peut être calculé en utilisant n'importe quelle condition aux limites et en particulier l'une ou l'autre des deux conditions aux limites suivantes qui sont particulièrement simples :

- Première situation: le tenseur des contraintes ne comporte qu'une seule composante non nulle,  $\sigma_{ij}$  avec  $i \neq j$ . Le tenseur des déformations se réduit donc à  $\varepsilon_{ij}$  et la loi de Hooke se réduit à :

$$\sigma_{ij} = 2 \mu \varepsilon_{ij}$$

- Deuxième situation: le tenseur des déformations ne comporte qu'une seule composante non nulle,  $\varepsilon_{ij}$  avec  $i \neq j$ . La trace du tenseur des déformations est donc nulle et la loi de Hooke s'écrit comme précédemment :

$$\sigma_{ij} = 2 \mu \varepsilon_{ij}$$

Dans le cas d'un matériau anisotrope la situation est un peu plus compliquée. En particulier, la valeur du module de cisaillement dépend des conditions aux limites imposées au matériau. La loi de Hooke pour un cristal anisotrope s'écrit :

$$\sigma_{ij} = \sum c_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad \text{ou} \quad \varepsilon_{ij} = \sum s_{ijkl} \sigma_{kl} \quad (\text{V-4})$$

où  $c_{ijkl}$  et  $s_{ijkl}$  sont les composantes du tenseur de rang 4 des constantes élastiques et du tenseur des compliances élastiques ( $\mathbf{s} = \mathbf{c}^{-1}$ ), ou en utilisant la notation contractée introduite plus haut:

$$\sigma_I = \sum C_{IJ} \gamma_J \quad \text{ou} \quad \gamma_I = \sum S_{IJ} \sigma_J \quad (\text{V-5})$$

Le tenseur des contraintes  $\sigma_{ij}$  est remplacé par un pseudo vecteur à 6 composantes  $\sigma_I$  et le tenseur des déformations  $\varepsilon_{ij}$  par le pseudo vecteur à 6 composantes  $\gamma_J$ .

Pour calculer le module de cisaillement en élasticité anisotrope, il faut se préciser des conditions aux limites. Parmi les deux situations proposées plus haut, la première nous apparaît la plus réaliste. En effet, en imposant des contraintes plutôt que des déformations, les atomes restent libres de se déplacer, voire de casser des liaisons, d'atteindre de nouvelles positions et de se lier à d'autres atomes afin de minimiser l'énergie du cristal. La structure du matériau peut donc être modifiée et cette instabilité peut se traduire par des discontinuités et/ou des valeurs négatives du module de cisaillement. Dans l'autre situation envisagée, les déplacements des atomes sont imposés. Ces atomes ne sont donc pas libres de se déplacer vers de nouvelles positions pour créer de nouvelles liaisons. Ceci interdit la formation d'une nouvelle structure. Une telle situation, qui peut exiger des contraintes gigantesques pour interdire le changement de phase, n'est pas physiquement réaliste et, en tout cas, ne correspond pas aux conditions imposées par une onde de choc. Nous nous sommes donc intéressés à la première situation (contrainte imposée). Il est commode d'utiliser la loi de Hooke inversée pour calculer le module:

$$\varepsilon_{ij} = \sum s_{ijkl} \sigma_{kl} \quad \text{ou} \quad \gamma_I = \sum S_{IJ} \sigma_J \quad (V-6)$$

$$\begin{bmatrix} \gamma_1 \\ \gamma_2 \\ \gamma_3 \\ \gamma_4 \\ \gamma_5 \\ \gamma_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & S_{14} & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{13} & -S_{14} & 0 & 0 \\ S_{13} & S_{13} & S_{33} & 0 & 0 & 0 \\ S_{14} & -S_{14} & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & 2S_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2S_{14} & S_{66} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{bmatrix}$$

avec  $S_{66} = 2(S_{11} - S_{12})$ .

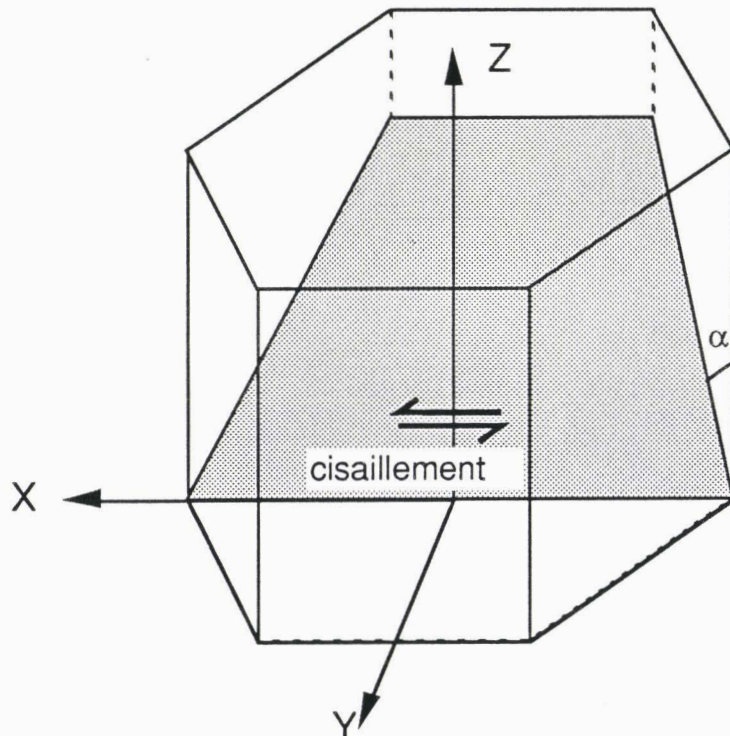
On en tire :

$$\gamma_6 = S_{66} \sigma_6 \quad \text{ou}$$

$$\mu_1 = \frac{1}{S_{66}} = \frac{C_{66} \cdot C_{44} - C_{14}^2}{C_{44}} = \frac{(C_{11} - C_{12}) \cdot C_{44} - 2 C_{14}^2}{2 C_{44}}$$

$\mu_1 = \frac{1}{S_{66}}$  est donc le module de cisaillement du quartz pour une scission (contrainte) et un cisaillement (déformation) dans le plan de normale OY et selon la direction OX, c'est à dire en utilisant les indices de Miller-Bravais dans le plan  $(01\bar{1}0)$  et selon la direction  $[2\bar{1}\bar{1}0]$ . Le module de cisaillement dans un plan  $\{01\bar{1}n\}$ , pour une scission et un cisaillement selon la direction  $\mathbf{a} = [2\bar{1}\bar{1}0]$  s'obtient en effectuant une rotation du plan XOZ d'un angle  $\alpha$  autour de OX (voir figure V-4). Les valeurs utiles de l'angle  $\alpha$  sont :

0° ou 180°	pour les plans	$(01\bar{1}0)$ ou $(0\bar{1}10)$
38° ou 142°	pour les plans	$(01\bar{1}1)$ ou $(0\bar{1}11)$
58° ou 122°	pour les plans	$(01\bar{1}2)$ ou $(0\bar{1}12)$
67° ou 113°	pour les plans	$(01\bar{1}3)$ ou $(0\bar{1}13)$
72° ou 108°	pour les plans	$(01\bar{1}4)$ ou $(0\bar{1}14)$
90°	pour les plans	$(0001)$



**Figure V-4:** Plans de type  $\{10\bar{1}n\}$  avec la direction du cisaillement parallèle à  $[2\bar{1}\bar{1}0]$ .

Les coefficients  $C'_{IJ}$  ou  $S'_{IJ}$  dans les nouveaux axes se déduisent des précédents par application de la matrice de rotation  $T_{ij}$ .

$$[T_{im}] = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos\alpha & \sin\alpha \\ 0 & -\sin\alpha & \cos\alpha \end{bmatrix}$$

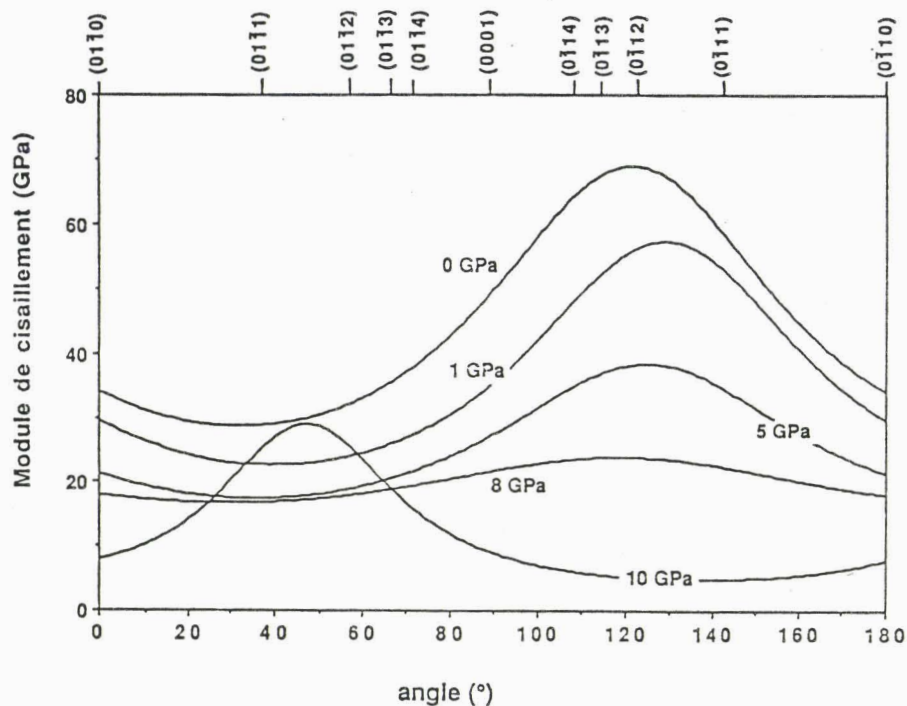
Pour un tenseur de rang 4 on a :

$$s'_{ijkl} = \sum T_{im} T_{jn} T_{ko} T_{lp} s_{mnop} \text{ ou } c'_{ijkl} = \sum T_{im} T_{jn} T_{ko} T_{lp} c_{mnop}$$

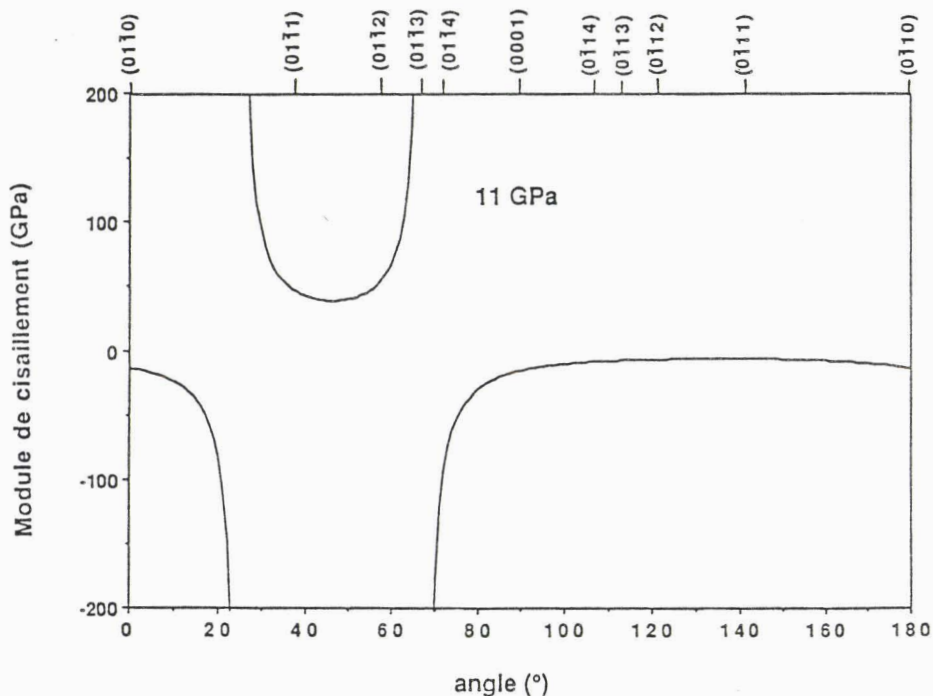
Ce qui donne :

$$\mu_1(\alpha) = \frac{(C_{11} - C_{12}) C_{44} - 2 C_{14}^2}{2 C_{44} \cos^2\alpha + (C_{11} - C_{12}) \sin^2\alpha - 2 C_{14} \sin 2\alpha} \quad (\text{V- 7})$$

La variation du module en fonction de l'angle  $\alpha$  pour diverses pressions est reportée sur les figures V-5. On voit que, quel que soit l'angle de rotation  $\alpha$ , la valeur du module de cisaillement diminue lorsque la pression augmente jusqu'à une valeur d'environ 8 GPa. Puis une instabilité apparaît au delà de 10 GPa pour des valeurs de  $\alpha$  proches de  $25^\circ$  et de  $67^\circ$ . Cette dernière valeur correspond sensiblement au plan  $(01\bar{1}3)$ . Notre calcul justifie donc que l'amorphisation peut démarrer dans les plans  $\{01\bar{1}3\}$ .



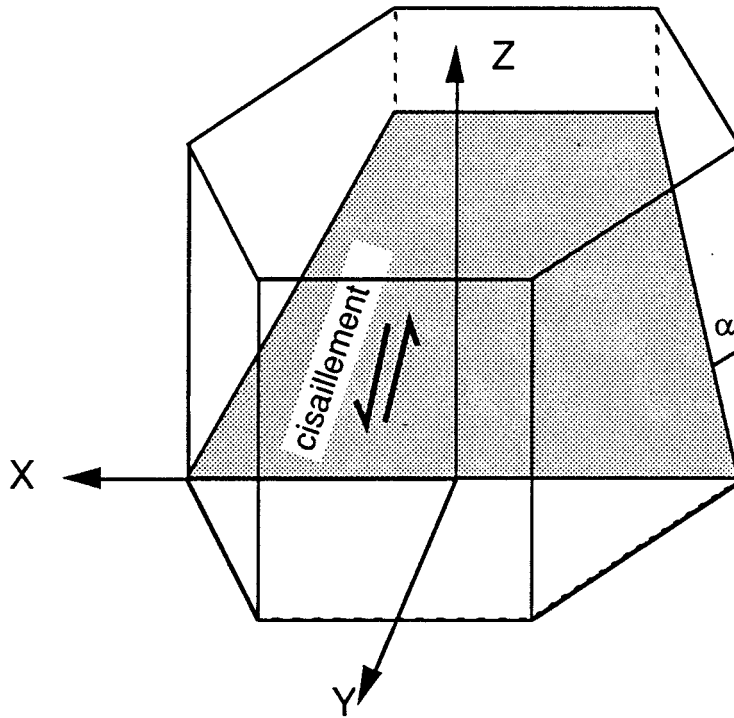
**Figure V-5-a:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  pour un cisaillement selon  $a [2\bar{1}\bar{1}0]$  en fonction de l'angle de rotation  $\alpha$  pour des pressions de 0 à 10 GPa.



**Figure V-5-b:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  pour un cisaillement selon  $a [2\bar{1}\bar{1}0]$  en fonction de l'angle de rotation  $\alpha$  pour une pression de 11 GPa.

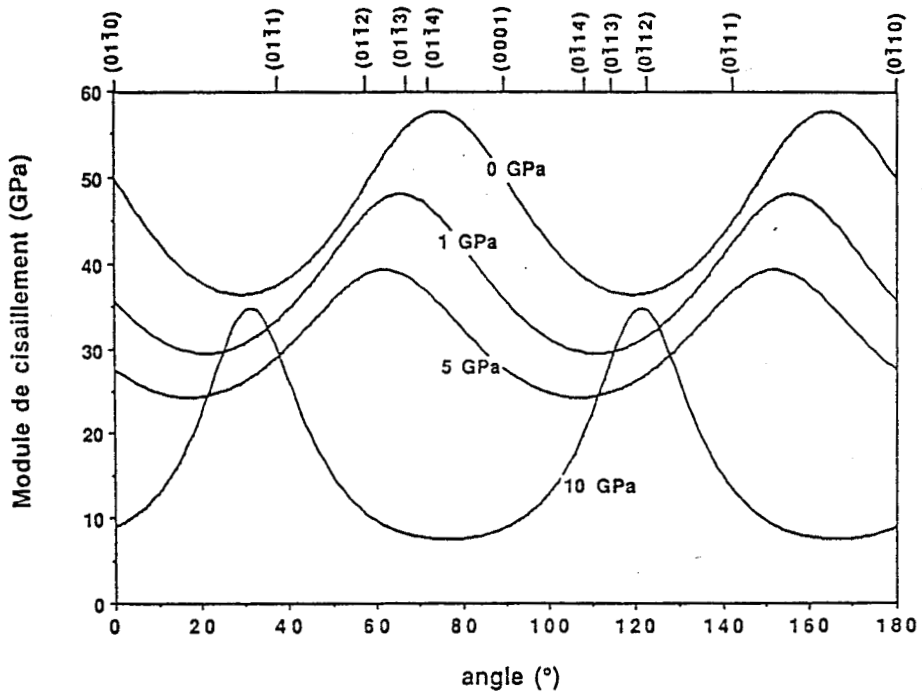
Pour trouver ce qui se passe dans les autres plans  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2$  et  $4$ , examinons ce qui se passe pour le module de cisaillement dans ces plans mais dans une direction autre que  $\mathbf{a}$ . Nous avons choisi la direction perpendiculaire à  $\mathbf{a}$  (figure V-6). Nous trouvons :

$$\mu_2(\alpha) = \frac{(\frac{1}{2} C_{33} + C_{11} + C_{12} + 2 C_{13}) \sin^2 2\alpha}{(C_{11} + C_{12}) C_{33} - 2 C_{13}^2} + \frac{\frac{1}{2} C_{44} \sin^2 2\alpha + (C_{11} - C_{12}) \cos^2 2\alpha - C_{14} \sin 4\alpha}{(C_{11} - C_{12}) C_{44} - 2 C_{14}^2} \quad (\text{V-8})$$

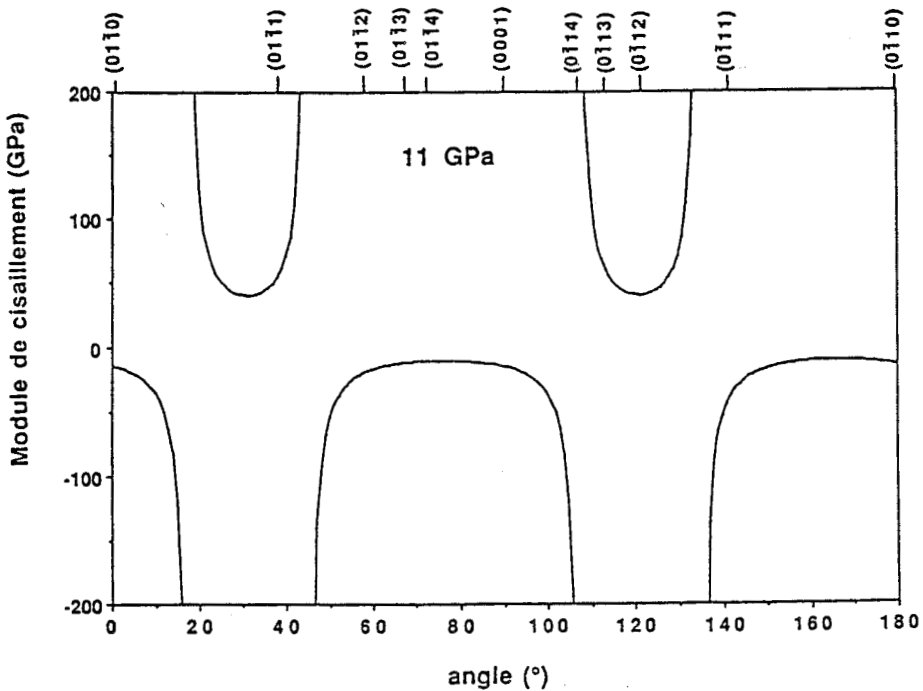


**Figure V-6:** Plans de type  $\{10\bar{1}n\}$  avec la direction du cisaillement perpendiculaire à  $[2\bar{1}\bar{1}0]$ .

Les variations de  $\mu_2$ , reportées sur les figures V-7, montrent des instabilités à partir d'environ 10,5 GPa pour  $\alpha = 18^\circ, 45^\circ, 108^\circ$  et  $135^\circ$ .  $108^\circ$  correspond exactement à  $(01\bar{1}4)$ . Les autres valeurs correspondent sensiblement à  $(01\bar{1}1)$  et  $(01\bar{1}2)$ . Nous avons donc "justifié" que les PDF peuvent se nucléer préférentiellement dans ces plans quatre rhomboédriques  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3$  et  $4$ .



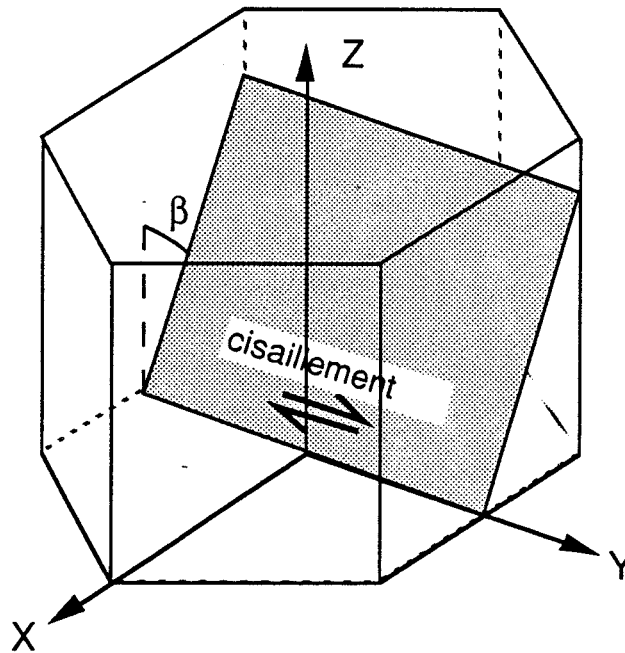
**Figure V-7-a:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  pour un cisaillement perpendiculaire à  $a$  en fonction de l'angle de rotation  $\alpha$  pour des pressions de 0 à 10 GPa.



**Figure V-7-b:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  pour un cisaillement perpendiculaire à  $a$  en fonction de l'angle de rotation  $\alpha$  pour une pression de 11 GPa.

Pour pleinement justifier notre proposition que cette amorphisation résulte d'une instabilité du module de cisaillement dans ces plans, nous devons montrer qu'il n'apparaît d'instabilités que dans ces plans. Il nous faut donc calculer les modules dans d'autres plans en fonction de la pression et vérifier qu'il ne présentent pas d'instabilités. Nous avons donc calculé le module de cisaillement dans les plans de type  $\{2\bar{1}\bar{1}n\}$ , avec comme direction de cisaillement la direction  $[01\bar{1}0]$  (figure V-8). Il faut, pour cela, effectuer une rotation d'axes autour de OY d'un angle  $\beta$ . On obtient :

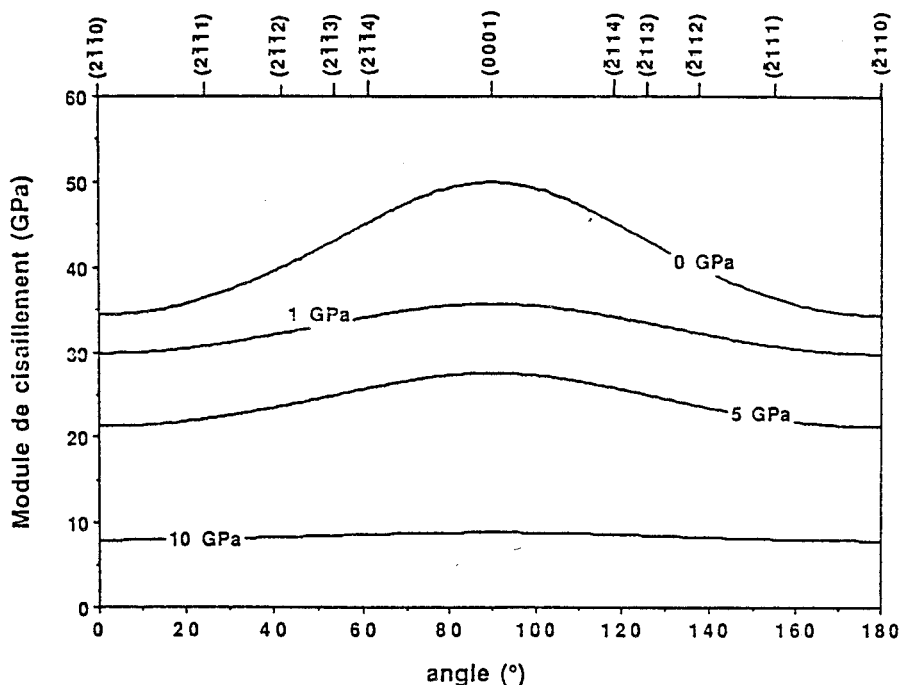
$$\mu_3(\beta) = \frac{(C_{11} - C_{12}) C_{44} - 2 C_{14}^2}{2 C_{44} \cos^2 \beta + (C_{11} - C_{12}) \sin^2 \beta} \quad (V-9)$$



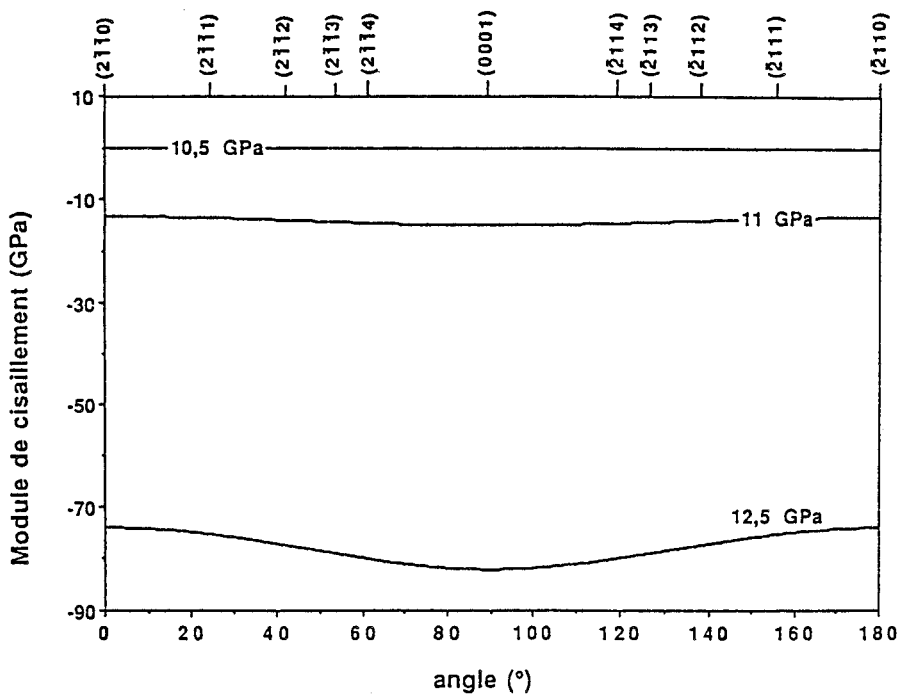
**Figure V-8:** Plans de type  $\{2\bar{1}\bar{1}n\}$  avec la direction du cisaillement parallèle à  $[01\bar{1}0]$ .

La figure V-9 explicite le cas des plans de type  $\{11\bar{2}n\}$ . Ces courbes montrent que quelle que soit la rotation  $\beta$ , le module de cisaillement diminue lorsque la pression augmente, mais il n'apparaît aucune instabilité. Le module de cisaillement devient négatif pour toutes les valeurs de  $\beta$  au delà de 10 GPa.





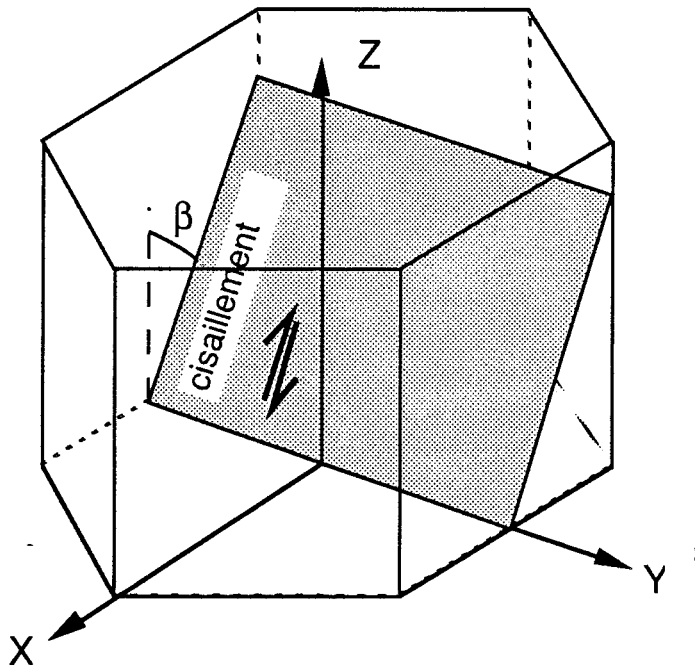
**Figure V-9-a:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{2\bar{1}\bar{1}n\}$  pour un cisaillement selon  $Oy$   $[01\bar{1}0]$  en fonction de l'angle de rotation  $\beta$  pour des pressions de 0 à 10 GPa.



**Figure V-9-b:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{2\bar{1}\bar{1}n\}$  pour un cisaillement selon  $[01\bar{1}0]$  en fonction de l'angle de rotation  $\beta$  pour des pressions de 10,5 à 12,5 GPa.

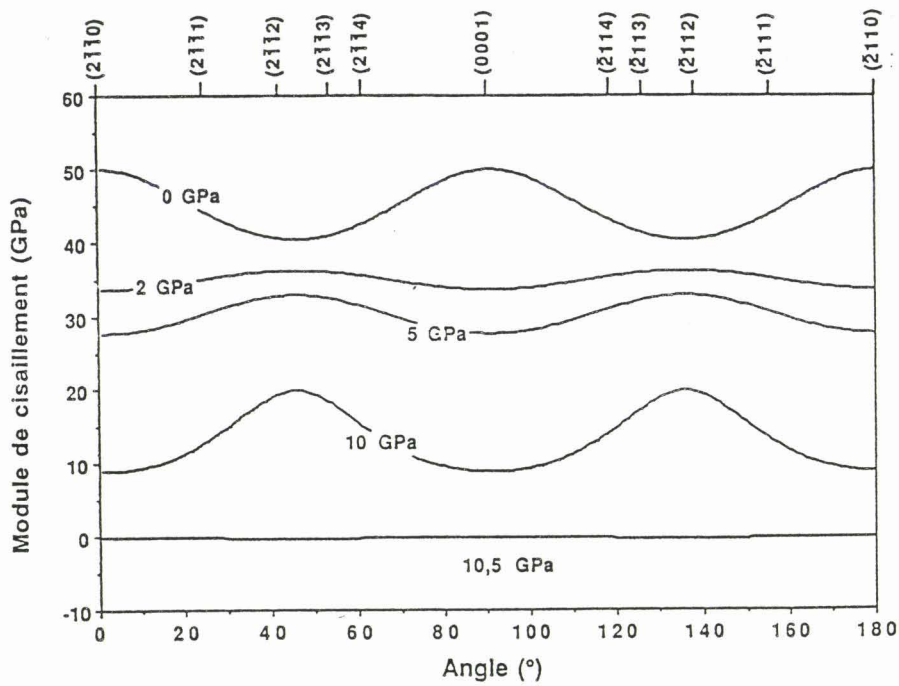
Nous avons également considéré le cas d'un cisaillement dans les plans  $\{11\bar{2}n\}$  dans la direction perpendiculaire à OY (voir figure V-10) qui donne:

$$\mu_4(\beta) = \frac{\frac{1}{2} C_{33} + C_{11} + C_{12} + 2 C_{13}) \sin^2 2\beta}{(C_{11} + C_{12}) C_{33} - 2 C_{13}^2} + \frac{\frac{1}{2} C_{44} \sin^2 2\beta + (C_{11} - C_{12}) \cos^2 2\beta}{(C_{11} - C_{12}) C_{44} - 2 C_{14}^2} \quad (V-10)$$

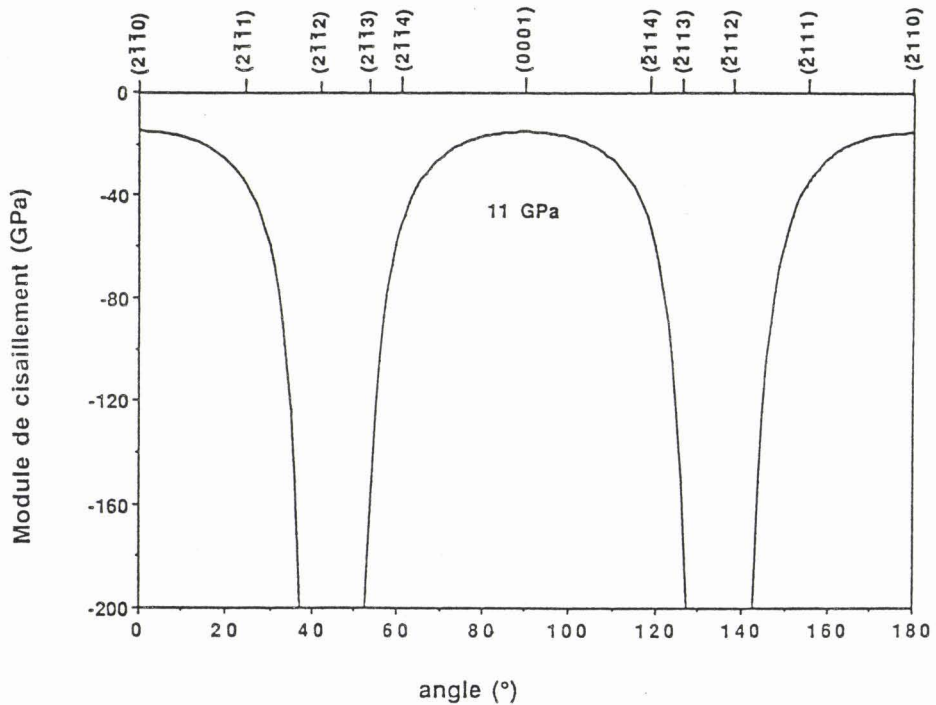


**Figure V-10:** Plans de type  $\{2\bar{1}\bar{1}n\}$  avec la direction du cisaillement perpendiculaire à  $[01\bar{1}0]$ .

On retrouve dans ce cas une instabilité vers 11 GPa pour une rotation de  $45^\circ$ , proche du plan  $(11\bar{2}2)$  (voir figures V-11).



**Figure V-11-a:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{2\bar{1}\bar{1}n\}$  pour un cisaillement selon la direction perpendiculaire à  $[01\bar{1}0]$  en fonction de l'angle de rotation  $\beta$  pour des pressions de 0 à 10,5 GPa.

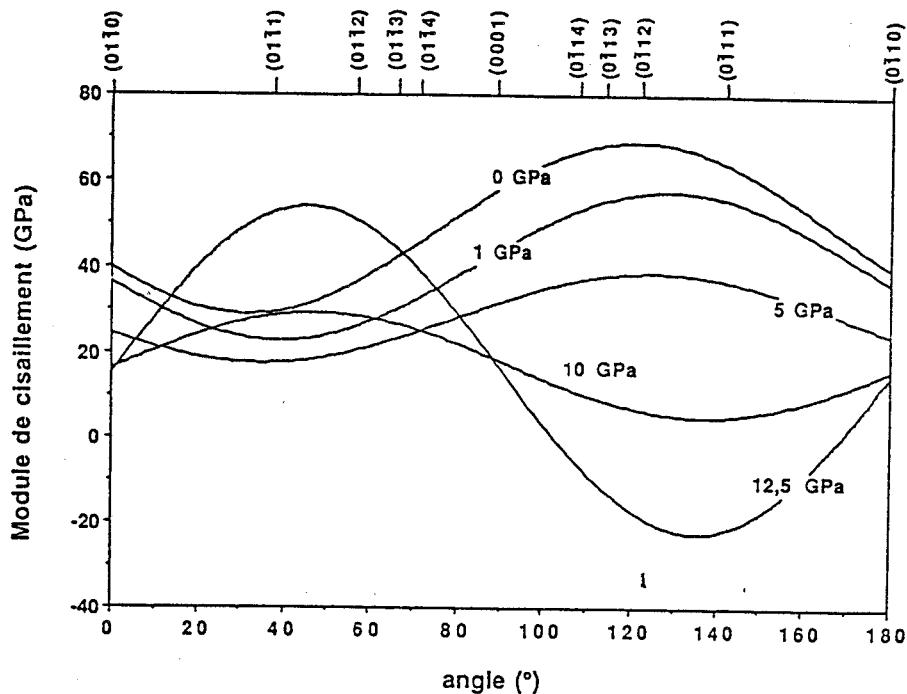


**Figure V-11-b:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{2\bar{1}\bar{1}n\}$  pour un cisaillement selon la direction perpendiculaire à  $[01\bar{1}0]$  en fonction de l'angle de rotation  $\beta$  pour une pression de 11 GPa.

Enfin nous avons également calculé pour comparaison le module de cisaillement dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  pour un cisaillement selon  $a$   $[2\bar{1}\bar{1}0]$  correspondant à la deuxième situation (déformation imposée). Elle conduit au module de cisaillement  $\mu_2 = C_{66}$ .

$$\mu_5(\alpha) = C'_{66} = \frac{1}{2} (C_{11} - C_{12}) \cos^2\alpha + C_{44} \sin^2\alpha + C_{14} \sin 2\alpha \quad (V-11)$$

qui ne présente pas d'instabilités (figure V-12).



**Figure V-12:** valeurs des modules de cisaillement en GPa dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  pour un cisaillement selon  $a$   $[2\bar{1}\bar{1}0]$  en fonction de l'angle de rotation  $\alpha$  pour des pressions de 0 à 12,5 GPa en imposant le déplacement comme conditions aux limites.

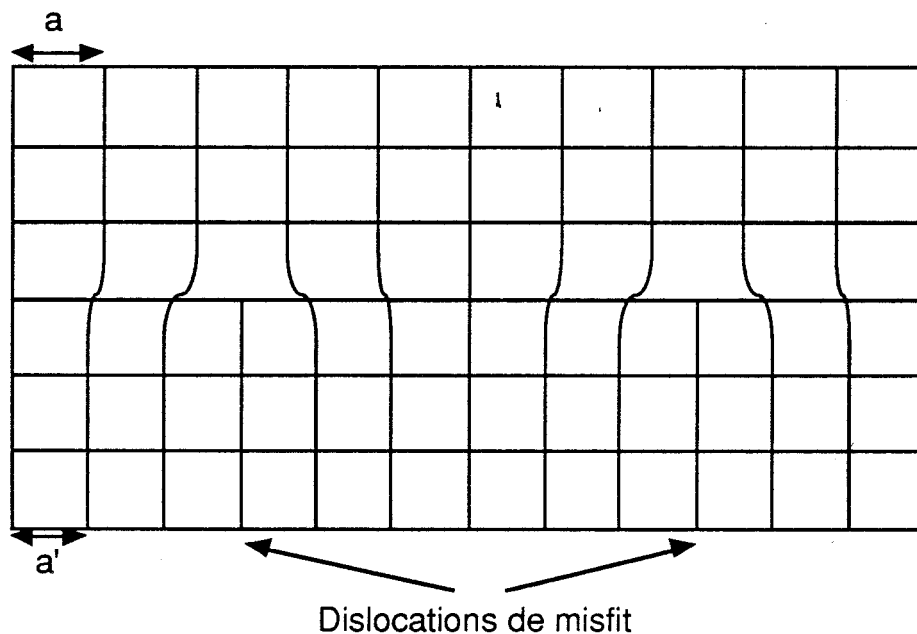
Ainsi, les calculs des modules de cisaillement mettent en évidence des discontinuités dans les plans de type  $\{01\bar{1}n\}$  pour  $n = 1, 2, 3$  et  $4$  ainsi que dans les plans  $(11\bar{2}2)$  pour des pressions  $\geq 10$  GPa. Ces résultats sont cohérents avec les observations affirmant que l'amorphisation démarre dans ces plans plutôt que d'autres ( $(11\bar{2}2)$  a également été observé; Langenhorst et al. (1992)). La formation des lamelles est ainsi une conséquence de ces instabilités. Ils n'expliquent cependant pas pourquoi l'amorphisation se développe sous forme de lamelles fines et rectilignes plutôt que, par exemple, sous la forme de domaines vaguement sphériques. A partir de ces réflexions, on peut se poser la question suivante : en portant du quartz à des pressions identiques à celles auxquelles se forment les PDF lors d'un choc, voit-on apparaître les mêmes défauts que lors d'un choc ? Question que l'on peut également formuler comme suit : les PDF sont-ils la signature d'un choc ou simplement d'une haute pression?

Pour apporter une réponse à cette question, Cordier (Cordier et al., en préparation) a placé des monocristaux de quartz dans une cellule à enclume diamant et leur a fait subir des pressions pouvant atteindre 30 gigapascals. Ces échantillons ont ensuite été observés au MET. Les observations montrent effectivement des lamelles de phase amorphe. Celles-ci peuvent donc être produites sous pression statique, mais elles ne sont pas systématiquement parallèles à des plans d'indices identiques à ceux produits lors d'un choc (notamment les lamelles peuvent être parallèles aux plans d'indices  $\{10\bar{1}0\}$ ). De plus, les lamelles ainsi produites sont des lamelles de cisaillement, alors qu'il a été vu que dans le cas d'un choc, il s'agit de lamelles de transformation qui n'induisent aucun cisaillement. D'autre part, l'amorphisation ainsi produite peut se produire dans la masse. Une phase amorphe de haute pression se forme sous pression statique, mais sa frontière avec le cristal n'est pas abrupte avec d'un côté le cristal et de l'autre l'amorphe. Il n'y a pas de frontière franche, mais plutôt une évolution progressive du cristal vers l'amorphe. Ces résultats montrent que les lamelles amorphes observées (quartz de Ries Crater) dans ce travail sont typiques d'un choc et non simplement d'une haute pression.

Pour éclaircir ce point, il faut garder à l'esprit que nous n'avons pas tenu compte jusqu'à présent d'un facteur important : ces lamelles ou PDF résultent de la propagation d'une onde de choc. C'est le point que nous discutons maintenant.

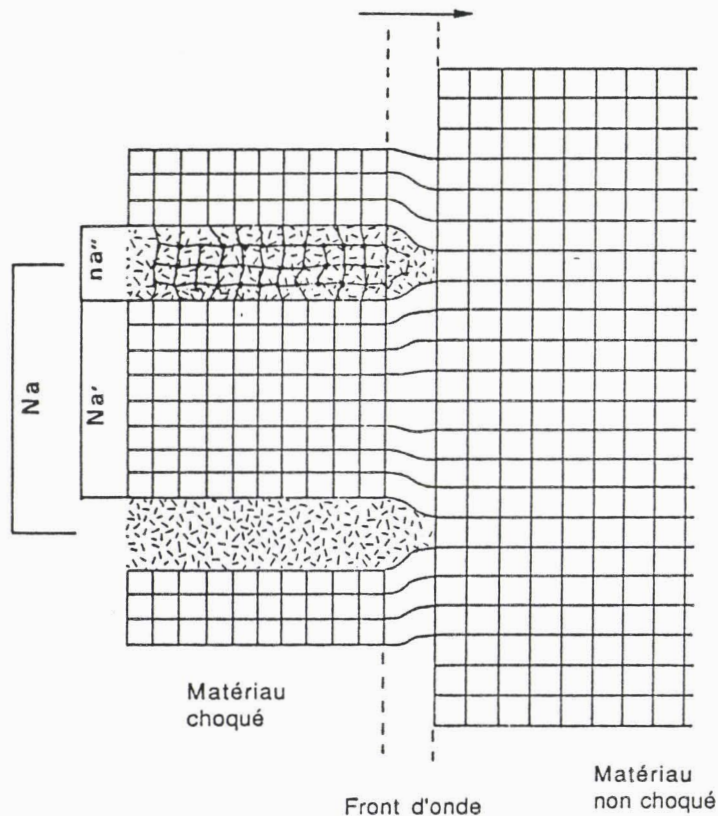
V-2-c : Formation des lamelles amorphes par l'onde de choc

Examinons plus précisément ce qui se passe lors de la propagation de l'onde de choc. D'un côté du front d'onde, le matériau non encore atteint par l'onde de choc est soumis à la pression lithostatique qui est faible (quelques dixièmes de GPa au maximum) et peut être assimilée à la pression ambiante. De l'autre côté du front d'onde, le matériau choqué est soumis à une très forte pression de l'ordre d'une dizaine de GPa au moins. A une telle pression, les paramètres de maille du quartz subissent une forte contraction (de l'ordre de plusieurs %). Comme le front d'onde est raide, il y a désadaptation des réseaux (misfit) le long du front d'onde. Cette situation est semblable à celle rencontrée à l'interface entre différentes couches de matériaux semi-conducteurs dans les semi-conducteurs contraints ou à l'interface des lamelles d'exsolution comme celles bien connues entre ortho et clino- pyroxènes par exemple. Une telle désadaptation de réseau crée des contraintes importantes au niveau de l'interface. Cette configuration induit une énergie élastique importante qui peut être relaxée. Dans le cas des semi-conducteurs contraints comme dans celui des exolutions qui sont toutes les deux des configurations statiques, la relaxation s'effectue par la formation de dislocations d'interface (voir figure V-13).



**Figure V-13:** Désadaptation de réseau entre un cristal de paramètre  $a$  et un autre de paramètre  $a'$ . Afin d'accommoder la désadaptation, des dislocations générées à l'interface avec une périodicité  $d = na = (n+1)a'$ .

Un processus de relaxation similaire doit se produire dans le cas du front d'onde de choc et ce processus doit tenir compte du fait que la frontière est mobile et se déplace à une vitesse proche de celle du son. Ceci interdit que la relaxation soit réalisée via des dislocations d'interface car celles-ci devraient se déplacer à la même vitesse que le front d'onde. Or, ces dislocations sont en configuration de montée et la vitesse de montée des dislocations est contrôlée par la diffusion, c'est donc un phénomène très lent. Nous suggérons que la relaxation se produit par la formation de lamelles d'une phase dense et amorphe (plus dense que le quartz) parallèles aux plans  $\{10\bar{1}n\}$  (la nucléation pouvant se faire sur des défauts préexistants tels que des dislocations). De telles lamelles peuvent à la fois relaxer l'énergie élastique de l'interface et se propager à grande vitesse avec le front d'onde qui les tire ("driving force") (figure V-14).



**Figure V-14:** Relaxation de la désadaptation de réseau de part et d'autre du front d'onde par la formation de lamelles amorphes.

On peut alors estimer l'espacement optimum entre les lamelles par un simple bilan énergétique.

Considérons une tranche de matière non encore affectée par l'onde de choc, de section unité et comprenant N plans réticulaires parallèles de paramètre a. Le passage de l'onde de choc les transforme en N plans comprimés de paramètre a' < a. La différence d'épaisseur N(a-a') est accommodée par une lamelle amorphe d'épaisseur na" (on identifie l'épaisseur de la lamelle à n plans de paramètre a" < a'). La relaxation des contraintes (et de l'énergie de déformation associée) sera d'autant meilleure qu'il y a plus de lamelles amorphes très fines, mais une telle configuration coûte une grande énergie d'interface amorphe-cristal. A l'opposé, quelques plus gros blocs amorphes épais coûte peu d'énergie d'interface mais relaxe de façon imparfaite. Entre ces deux situations extrêmes doit se trouver un compromis correspondant au minimum d'énergie du système. Dans les conditions décrites sur la figure V-14, la relaxation se traduit par la relation :

$$Na = Na' + na'' \quad (V-12)$$

N plans non choqués de paramètre a occupent la même longueur que N plans légèrement comprimés de paramètre a' < a plus n plans amorphisés et densifiés de paramètre équivalent a" < a' < a.

Le bilan énergétique se présente ainsi. La transformation d'une tranche de quartz en une phase amorphe plus dense et stable sous pression, d'épaisseur na" et de section S, diminue l'énergie du système d'une quantité  $\partial G = \Delta g.S.na''$  où  $\Delta g$  est la variation d'enthalpie libre par unité de volume due à la transformation du quartz en une phase amorphe plus dense et plus stable (d'où  $\Delta g < 0$ ). L'énergie associée à la distorsion élastique des plans cristallins de part et d'autre de l'interface entre deux lamelles amorphes successives augmente avec la distance inter-lamelles. On suppose, en première approximation, que cette énergie est proportionnelle à la distance inter-lamelles de sorte que pour la tranche considérée, cette énergie vaut pour un espacement interlamelles de Na :

$$2.S. \int_0^{Na/2} K.x.dx = \frac{1}{4} . S.K.(Na)^2 \quad (V-13)$$



L'énergie d'interface cristal-amorphe vaut  $2\gamma$  par lamelles (on a une lamelle dans la tranche considérée). Dans ce calcul très approximatif, on négligera l'énergie de déformation élastique du matériau cristallin ainsi que celle de la phase amorphe (c'est-à-dire que la formation des lamelles a bien relaxé les contraintes). Le bilan énergétique s'établit ainsi:

$$\Delta G = \Delta g.S.na'' + 1/4.S.K.(Na)^2 + 2.\gamma.S$$

et pour une surface unité :

$$\Delta G = \Delta g.na'' + 1/4.K.(Na)^2 + 2.\gamma \quad (V-14)$$

La relation de relaxation peut s'écrire plus simplement  $na'' = N(a-a')$ , que l'on reporte dans la relation ci-dessus. Enfin, on minimise  $\Delta G$  par rapport à  $N$  :

$$\frac{\partial \Delta G}{\partial N} = \Delta g(a-a') + \frac{KNa^2}{2} = 0 \quad (V-15)$$

On pose  $a - a' = \Delta a$ , l'équation V-15 devient :

$$\frac{n}{N} = \frac{\Delta a}{a''} \quad (V-16)$$

Le taux de densification associé à l'amorphisation est  $a''/a \approx 40\%$  d'après les expériences de choc de Wackerle (1962). La contraction élastique  $\Delta a/a$  est faible et ne peut excéder 2% qui serait la contraction en l'absence de relaxation  $\sigma/E = \Delta a/a$  avec  $E =$  module d'Young  $\approx 600$  GPa et  $\sigma \approx 10$  GPa. Ceci nous donne  $\frac{n}{N} \approx \frac{1}{20}$ , valeur en bon accord qualitatif avec les observations en MET.

Un argument expérimental conforte ce modèle de formation des lamelles amorphes. Les expériences de choc sur monocristaux de quartz produisent effectivement des PDF dans des plans perpendiculaires au plan de l'onde de choc comme le prévoit notre modèle. Leur densité augmente avec l'intensité de l'onde de choc comme le prévoit notre modèle.

### V-2-d : Conclusion

En conclusion, le quartz s'amorphise sous pression à partir d'environ 10 GPa. Les calculs des modules de cisaillement montrent que cette instabilité doit se développer dans les plans  $\{10\bar{1}n\}$  qui sont justement les plans des PDF. L'amorphisation se développe sous forme de lamelles pour relaxer la désadaptation de réseau de part et d'autre du front d'onde. Elles résultent donc d'un processus dynamique (haute pression + grande vitesse de propagation).

### V-3 : INTERPRETATIONS: PSEUDO PDF ET ROLE DE L'EAU

Les géologues impliqués dans le métamorphisme de choc distinguent un grand nombre d'indices de choc qui se répartissent sur toute une échelle de tailles allant de l'observation sur le terrain à l'oeil nu (par exemple les structures appelées "shatter cones" en anglais) jusqu'aux observations au microscope optique. Ces indices de choc ne sont pas limités au seul minéral quartz. La complexité du travail d'investigation par MET (préparation des échantillons, complexité de l'observation dans un matériau sensible à l'irradiation électronique et enfin longueur du travail de dépouillement des résultats) interdisait d'étendre la méthode à d'autres minéraux sans sacrifier la rigueur voulue de l'investigation. Nos observations apportent cependant quelques informations supplémentaires sur des points particuliers qui méritent d'être signalés.

#### V-3-a : Les "veines"

Des veines d'une phase étrangère traversant les grains de quartz sont signalées par divers auteurs. Nous avons également observé de telles veines par MET dans le matériel de Ries Crater. Elles sont constituées de phase amorphe mais se distinguent des PDF lamelles de phase amorphe que nous venons de discuter par plusieurs aspects. Les veines sont plus larges que les lamelles (épaisseur de l'ordre du micron) et elles ne sont en général pas rectilignes. Nous avons pu analyser leur composition par microanalyse X. Elles ne sont pas constituées de silice pure. Bien que riches en  $\text{SiO}_2$ , elles contiennent divers éléments étrangers, en particulier du sodium ou du potassium. Ces veines doivent donc résulter de la fusion d'autres

minéraux (feldspaths, micas) qui ont une température de fusion plus basse que celle du quartz. Nous supposons que le liquide ainsi formé a été ensuite injecté dans des fractures des grains de quartz créées par l'onde de choc. C'est le phénomène de "jetting" décrit par Kieffer et al. (1976). Ces veines sont donc la marque de la présence d'autres minéraux au voisinage des grains de quartz et qui présentent un comportement différent (fusion).

### V-3-b : Influence de l'eau

La grande influence de l'eau sur la plupart des propriétés physiques du quartz est bien connue (voir chapitre II). Elle affecte fortement les propriétés rhéologiques en augmentant la mobilité des dislocations. Elle affecte également la vitesse de restauration et de recristallisation du quartz. Nous retrouvons cet effet de l'eau dans les microstructures des grains de quartz provenant des anciens sites d'impact du bouclier Nord Américain (La Malbaie et Slate Islands) par exemple. Cette eau a dû circuler dans un réseau de fissures et diffuser à partir des bords des fissures dans le matériau avoisinant. Les zones au voisinage immédiat d'une fissure portent témoignage de l'activité de l'eau. On y détecte la présence de très nombreuses petites bulles (taille  $\approx 0,1 \mu\text{m}$ ), les sous structures de dislocations présentent une organisation typique d'une restauration efficace (polygonisation avec des sous joints bien organisés, faible densité de dislocations libres). Les PDF dans ces régions ont également fortement subi l'influence de cette restauration, ils ont presque complètement disparu ou sont remplacés par des alignements de défauts cristallins résiduels (alignements de bulles et de dislocations). Dans les régions plus éloignées de ces chemins de diffusion préférentielle de l'eau, la restauration a été moins active et les PDF sont moins affectés. On y détecte encore quelques PDF avec une microstructure sans doute proche de la microstructure originelle. On trouve aussi toute la gamme des microstructures intermédiaires qui permet de se faire une idée du processus de guérison des PDF lors du métamorphisme post-choc. Ainsi les bandes de dislocations avec une forte densité semblent être la première étape de cette restauration. La phase amorphe et dense recristallise en générant ces dislocations, puis la densité de dislocations diminue tandis que des bulles d'eau s'accumulent dans la région considérée. L'ensemble du processus de guérison est gouverné par la diffusion des défauts ponctuels "eau" sur des distances sans doute assez courtes. Ceci signifie qu'un

épisode métamorphique post-choc à température modérées (400 °C?) est peut-être suffisant pour affecter la microstructure des PDF. A fortiori, dans le complexe du Vredefort où on sait qu'un épisode métamorphisme s'est produit à une température très élevée (800 à 900°C d'après Fricke et al., 1990), les PDF sous la forme de lamelles amorphes, s'ils ont existé, c'est-à-dire s'il y a eu choc, ont maintenant complètement disparu.

### V-3-c : Polymorphes de haute pression?

Contrairement à d'autres investigateurs (qui utilisaient d'autres techniques, en particulier des diagrammes de poudres en rayons X sur des concentrés de grains de quartz) nous n'avons jamais détecté dans nos divers matériaux de grains de polymorphes de haute pression (coésite ou stishovite). La MET permet de détecter de très petites quantités d'une phase étrangère à condition que celle-ci soit distribuée de façon à peu près homogène. On peut alors détecter et identifier des grains extrêmement petits (jusqu'à 100 Å), même en quantité modérée, c'est-à-dire représentant des proportions volumiques aussi faibles que 10<sup>-4</sup> %. Le fait que nous n'avons jamais trouvé de petits précipités de coésite ou de stishovite peut signifier que ces phases sont distribuées de façon trop hétérogène pour avoir des chances d'être détectables par MET. Les structures de PDF "en échelon" que nous avons observées sans pouvoir élucider leur microstructure nous suggèrent cependant qu'elles pourraient être des reliques de lamelles de ces polymorphes de haute pression qui se seraient retransformées (dès le passage de l'onde de raréfaction?, plus tard sous l'influence du métamorphisme post-choc?) en un mélange de quartz et de phase imparfaitement organisée. Quoi qu'il en soit, il est étonnant que nous n'ayons jamais détecté de grains de coésite ou de stishovite alors que les diagrammes de rayons X mettent en évidence la présence de faibles quantités de ces polymorphes (notamment pour les roches référencées MA-1 de Vredefort). Pour obtenir des caractérisations non ambiguës les auteurs ont dû travailler sur du matériau "enrichi" grâce à une attaque à HF qui dissout le quartz plus rapidement que la stishovite. Les concentrations volumiques de ces polymorphes avant "concentration" à l'acide ne dépassent probablement pas 0,1%. De telles concentrations devraient être aisément détectées par MET dans la mesure où elles correspondent à une répartition homogène. Il y a donc là un problème que nous comprenons mal. Où sont ces phases?

#### V-4 : QUELLES INFORMATIONS SUR LA CRISE DE LA LIMITE K/T?

Rappelons tout d'abord que l'on retrouve en de nombreux sites autour du monde, dans les sédiments associés à la limite K/T, des grains de quartz qui présentent des PDF à l'échelle du microscope optique. Nous n'avons cependant observé par MET de façon détaillée que les quartz du site de Raton Basin où les grains de quartz choqués sont abondants et relativement gros, donc assez aisément sélectionnés. Il serait donc irréaliste d'entreprendre des généralisations poussées à partir d'observations sur un seul site, et l'un des prolongements prometteurs de ce travail est certainement l'observation minutieuse d'autres grains de quartz (et d'autres minéraux aussi) des sédiments de cette couche K/T provenant d'autres sites que Raton Basin. Rappelons aussi qu'à l'exception d'une très brève étude de Gratz et al. (1988a), il n'y a eu jusqu'à présent aucune investigation par MET de ces quartz choqués très particuliers.

Dans le cas de Raton Basin nous observons que certains grains présentent à la fois des indices clairs de chocs (PDF) et des indices aussi clairs de métamorphisme post-choc (précipitation de très petites bulles d'eau sur les PDF). Par contre, d'autres grains ne présentent pas de marques indubitables de métamorphisme post-choc. On y détecte alors des PDF dont la microstructure est proche de celle détectée dans le cas de Ries Crater (lamelles de mélange de phase amorphe et quartz en proportion variable). Il y a bien sûr aussi une troisième catégorie de grains, ceux qui ne présentent pas du tout d'indices de choc. Ces derniers grains sont probablement étrangers à l'histoire de la crise K/T. Ils ont dû se déposer dans la strate à partir de régions voisines et leur seul rapport avec la limite K/T est qu'ils se sont déposés au même lieu et au même moment. Les grains choqués proviennent du lieu où s'est produit le choc (impact météoritique) ou l'explosion volcanique (Deccan), et ont donc été expulsés lors de cet événement. Ensuite, ils ont voyagé dans la stratosphère à grande vitesse. Ils ont pu parcourir des distances considérables avant de se redéposer au site de Raton Basin (d'autres grains choqués se sont redéposés en d'autres lieux actuellement connus et répertoriés). Au cours de ce voyage, qui a pu durer de quelques minutes à quelques jours, ils ont pu subir un échauffement qui est malheureusement très difficile à évaluer car

il dépend à la fois de la trajectoire du grain considéré (i.e. de sa vitesse initiale) et de sa taille (qui influe sur le freinage dans l'air). Des simulations de trajectoires (Melosh, communication personnelle) suggèrent que l'échauffement pourrait avoir atteint des températures allant jusqu'à 500 °C durant plusieurs heures. Nous ignorons cependant le degré de fiabilité de ces calculs et la précision que l'on peut en attendre, mais ce sont les seules valeurs proposées par la littérature actuellement.

Ces valeurs nous suggèrent de comparer les microstructures de précipitation détectées dans ces grains de quartz de Raton Basin avec celles induites par des recuits en laboratoire effectués dans des conditions bien contrôlées sur des quartz synthétiques humides. Dans ce genre de comparaison, il nous faut garder en mémoire l'importance de l'état initial du matériau, c'est-à-dire la quantité d'eau contenue dans le cristal considéré et susceptible de précipiter au cours du recuit. De nombreuses expériences de recuit ont été effectuées sur des quartz synthétiques humides à des pressions de confinement de 1 bar à quelques kbar et à des températures de 350 à 1000 °C, pendant des durées de plusieurs jours (températures modérées) à quelques minutes (voir par exemple Cordier et al., 1988 qui présentent également une revue des travaux antérieurs). Les structures de précipitation (densité et taille moyenne des bulles d'eau, dislocations induites par cette précipitation ... ) ont également été déterminées par observations en MET. Le résultat le plus important pour notre comparaison est le suivant: à pression donnée, plus la température de recuit est modérée, plus les bulles sont petites et leur densité importante. Ainsi un recuit à  $P = 1 \text{ atm}$ ,  $T = 450^\circ\text{C}$  nécessite une durée de  $\approx 1$  jour pour provoquer la précipitation dans un quartz contenant initialement  $\text{H/Si} \approx 150 \text{ ppm}$  d'eau. La MET révèle alors des bulles de  $\approx 300 \text{ \AA}$  en très grande densité ( $\approx 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ). Ces bulles se nucléent sur des défauts préexistants. A haute température au contraire, il suffit de quelques minutes (10 minutes à  $700^\circ\text{C}$ ;  $\approx 1$  minute à  $1000^\circ\text{C}$  typiquement) pour provoquer la précipitation de bulles plus grosses (quelques milliers d'Angströms) en densité considérablement plus faible ( $\approx 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ). Ces plus grosses bulles se nucléent de façon homogène. Une telle différence de comportement provient de la différence des taux de nucléation et de croissance des précipités.

Les paysages de précipitation observés dans les grains de quartz de Raton Basin présentant des indices de métamorphisme post-choc

se comparent aux recuits effectués à des températures modérées (typiquement 450 °C, 1 jour) dans la mesure où ces grains de quartz étaient raisonnablement humides ( $H/Si \approx 100$  ppm). Les conditions d'échauffement suggérées par les simulations numériques ( $P \approx 0$ ,  $T \approx 500$  °C, quelques heures) apparaissent donc raisonnablement réalistes dans la mesure où les grains de quartz impliqués ont bien la taille imposée par le modèle. C'est là que nos observations sont le moins fiables. La MET est en effet un instrument mal adapté à la mesure de tailles de grains de l'ordre de 100  $\mu m$  car les techniques d'amincissement ionique ne permettent pas d'obtenir des régions minces et transparentes aussi grandes. Nous avons donc des idées extrêmement imprécises sur la taille des grains étudiés en MET. Il nous faudrait être capables de connecter grain à grain les observations optiques et de MET et avoir mesuré au microscope optique la taille de chaque grain (i.e. en avoir bien délimité les contours). Nous n'avons pas du tout imaginé ce problème de métamorphisme durant le voyage des grains de quartz lorsque nous avons entrepris nos observations. Malgré de nombreuses précautions, nous n'avons pas enregistré toutes les informations nécessaires. Il faudrait reprendre toute l'étude pour pouvoir confirmer ou infirmer l'adaptation du modèle proposé par simulation numérique aux grains de quartz de Raton Basin. De plus, ce modèle ne semble pas être unanimement accepté. En effet, d'autres scientifiques (Stöffler, communication personnelle, 1992; Bohor, communication personnelle, 1992) proposent que les grains de quartz éjectés ont pu rester un temps dans la boule de feu créée par l'impact ou l'explosion volcanique. Les plus petits grains ayant pu y demeurer plus longtemps à cause des turbulences.

Actuellement nous pouvons donc proposer deux explications fort différentes pour interpréter ces indices de métamorphisme post-choc dans certains grains seulement de Raton Basin. D'une part, tous les grains auraient sensiblement le même contenu en eau, le modèle numérique de Melosh ou le modèle de la boule de feu proposé par Stöffler et Bohor nous permet de différencier les grains (ceux qui présentent des indices de précipitation et ceux qui n'en présentent pas) par leur taille. D'autre part, nous pouvons également invoquer des différences initiales de contenu en eau (parce que les grains proviendraient de profondeurs différentes dans l'écorce terrestre) et les évidences de précipitation reflèteraient simplement l'état initial sans devoir faire intervenir l'histoire thermique durant le voyage des grains. Il est clair qu'en l'état actuel de nos observations nous ne pouvons ni confirmer ni

rejeter l'une ou l'autre de ces interprétations qui doivent être considérées comme de simples supputations sans support expérimental. L'une des perspectives de recherche prometteuses pour apporter une réponse plus quantitative serait bien sur de reprendre cette étude de façon plus soignée, mais également d'étudier d'autres grains de quartz provenant d'autres sites pour savoir si les quartz y présentent également des indices de métamorphisme post-choc.

Il faut aussi reconnaître que les microstructures de PDF observées dans les grains du site de Raton Basin sont multiples. Cette variété est déroutante et décourage toute tentative d'élaborer une synthèse qui fournirait une explication cohérente pour l'ensemble des observations. Le temps n'est probablement pas encore venu de s'y atteler mais plutôt de poursuivre l'accumulation d'observations, même si elles paraissent chaque fois compliquer le problème et le transformer en casse tête inextricable.

Les quelques idées suivantes sont sans doute à retenir. Au moins certains des grains de quartz choqués que l'on retrouve dans le site de Raton Basin contenaient une concentration en eau assez grande pour être aisément détectable après que cette eau ait précipité. Nous ignorons comment et à quel moment cette eau a précipité mais le fait que ces quartz étaient assez humides (ils contenaient environ 100 ppm d'eau dissoute) suggère fortement qu'avant le choc ils étaient enfouis à une profondeur assez grande dans l'écorce terrestre puisque la solubilité de l'eau dépend essentiellement de la pression (elle augmente de façon sensiblement exponentielle avec P).

Les PDF qui semblent les moins affectés thermiquement (les quelques grains fournis par Bohor) présentent des microstructures qui ressemblent assez à ceux de Ries, suggérant qu'ils pourraient également résulter d'une onde de choc. Ce qui fait encore problème pour accepter pleinement ce modèle, c'est que la proportion de phase amorphe est nettement plus faible dans ces PDF, de sorte que l'on comprend mal comment de telles lamelles peuvent accommoder la désadaptation de réseau de part et d'autre du front d'onde. La grande densité de PDF dans ces grains fournis par Bohor suggère une onde de choc de forte intensité qui devrait avoir engendré une différence appréciable de paramètres. Peut-on imaginer que la désadaptation de réseau serait dans ce cas accommodée par des lamelles peu densifiées (faible proportion de verre) mais plus



nombreuses? Une telle situation résulterait-elle d'une différence dans les taux de nucléation et de croissance des lamelles? Encore une fois, nous sommes confrontés à l'insuffisance d'expériences (observations sur des matériaux choqués expérimentalement) et d'observations sur des grains d'autres sites liés à la limite K/T. Il nous apparaît donc finalement que nos observations ne contredisent pas réellement le modèle d'impact d'une météorite comme cause de la crise à l'époque K/T, même si divers points restent mal expliqués. Par contre, elles s'accordent moins bien avec l'hypothèse volcanique où la production de PDF par explosions volcaniques reste à démontrer. Enfin, il est clair que nos observations n'apportent aucune autre information quant à la cause ultime de l'extinction massive des espèces vivantes qui est ce que l'on appelle la crise à la limite K/T (nuage de poussière, pluies acides ...).

#### V-5 : CONCLUSION

Lors d'un choc, il y a formation d'au moins deux types de défauts: les macles du Brésil dans le plan de base et les lamelles de phase amorphe dans les plans de type  $\{10\bar{1}n\}$ . Les macles du Brésil résultent d'une contrainte déviatorique. Les lamelles amorphes sont le résultat à la fois d'une instabilité du quartz à partir d'une pression d'environ 10 GPa et de l'aspect dynamique de la propagation du front d'onde. Ces lamelles qui permettent d'accommoder la désadaptation de réseau de part et d'autre du front d'onde sont donc typiques d'un choc. D'autres microstructures ont également nucléé lors d'un choc, mais elles se rapprochent plus de réponses fragiles. Ce sont les fissures, les veines de verre et peut-être les structures "en échelon".

Certains sites (La Malbaie, Slate Islands, dome du Vredefort, et certains grains de Raton Basin) montrent des signes de métamorphisme post-choc qui se traduit sur les microstructures de PDF par une guérison plus ou moins avancée, en passant par un stade où les PDF sont transformés en bandes de dislocations. Malgré cette guérison, il reste peut-être des indices sous forme de simples alignements de bulles d'eau (Vredefort).

# Conclusion



Une onde de choc intense (plusieurs gigapascals voire plusieurs dizaines) crée dans le quartz des défauts typiques. Ceux-ci sont généralement détectés au microscope optique et sont dénommés "planar deformation features" (PDF). De tels défauts sont détectés dans un grand nombre de structures géologiques qui, pour la plupart, sont attribuées à un impact météoritique. Dans cette étude, nous nous sommes efforcés de caractériser les défauts créés dans des grains de quartz par une onde de choc produite par un phénomène géologique endogène (explosion volcanique par exemple) ou exogène (impact météoritique).

Les observations en MET de grains de quartz présentant des PDF et provenant de plusieurs structures géologiques ont permis, en premier lieu, d'observer plusieurs types de microstructures. On peut regrouper ces microstructures dans les catégories suivantes: bandes de dislocations, lamelles de phase amorphe, veines de phase amorphe, macles du Brésil et structures dites "en échelon". Cependant, rappelons que parmi les sites observés, le plus récent date d'il y a 15 millions d'années. Certains sites ont donc pu subir une étape métamorphique après le choc, étape qui doit avoir affecté la microstructure des défauts générés par l'onde de choc. Il est donc important de faire la distinction entre les microstructures induites par l'onde de choc et les microstructures résultant de ce métamorphisme.

Les calculs basés sur les constantes élastiques du quartz sous pression hydrostatique nous ont permis de montrer que deux paramètres sont importants pour expliquer la formation de ces défauts. D'une part, la pression hydrostatique due à l'onde de choc rend la structure cristalline du quartz instable. En effet, le critère de stabilité de Born n'est plus vérifié à des pressions excédant 10 gigapascals. De ce fait, la structure cristalline du quartz devient instable, ce qui l'amène à s'amorphiser. Les calculs des modules de cisaillement sous pression hydrostatique pour plusieurs directions de cisaillement dans différents plans montrent que cette amorphisation se nucléée dans des plans bien définis qui sont les plans de type  $\{10\bar{1}n\}$ . Les PDF se situent justement dans ces plans d'indices  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n = 1, 2, 3, 4$  ou  $\infty$  (c'est à dire le plan de base). La nucléation de la phase amorphe étant rendue possible par

cette instabilité, il nous fallait étudier le mode de croissance de ces défauts. Nous suggérons que c'est l'onde de choc qui fait croître ces défauts. Les lamelles de phase amorphe sont le lieu d'une forte densification de la structure cristalline. Elles doivent ainsi permettre l'accommodation de la désadaptation de réseau due à la contraction élastique de part et d'autre du front d'onde, entre la partie du cristal déjà choquée et la partie non choquée. Le germe de phase amorphe est ainsi lié à l'onde de choc et croît dans la direction de propagation de celle-ci. Ces lamelles de phase amorphe permettent ainsi une densification du quartz, par contre elles n'induisent aucun cisaillement du cristal.

Des macles du Brésil sont également observées dans le plan de base (0001). Celles-ci ont clairement une origine mécanique. Elles sont identiques à celles observées par McLaren et al. (1967) et sont dues à la présence d'une contrainte déviatorique créée par l'onde de choc. Ces macles du Brésil sont produites par le glissement à grande vitesse de dislocations de vecteur de Burgers  $a$  dissociées en dislocations partielles de vecteur de Burgers  $a/2$ . La production de ces défauts permet d'accommoder la contrainte déviatorique puisque ces défauts créent un cisaillement du cristal. Il est possible que ces défauts se créent dans le cristal pour une intensité de choc plus faible que les lamelles de phase amorphe.

Sous l'effet de conditions métamorphiques, ces défauts peuvent évoluer pour donner des bandes de dislocations. Ces bandes n'ont été observées que dans des grains de quartz présentant d'autres marques de recuit telles que des sous-joints de dislocations ainsi qu'une nombreuse précipitation sur les PDF et les sous-joints. C'est la présence de ces marques typiques qui nous amène à penser que les bandes de dislocations sont le résultat d'une étape métamorphique.

L'observation de grains de quartz provenant de la caldeira de Toba, à Sumatra, qui est l'une des explosions volcaniques récentes les plus violentes, devait nous permettre de comparer les défauts induits par un impact météoritique à ceux produits par une explosion volcanique intense. Dans ce dernier cas, il n'a pas été observé de défauts de choc. Ce résultat négatif ne permet donc pas de conclure définitivement sur la production de PDF par une explosion volcanique. Cependant, aux vues de ces observations, il semble difficile d'affirmer que des PDF puissent être produits par une explosion volcanique, aussi intense soit-elle.

Le fait le plus marquant de cette étude reste la grande diversité des microstructures observées entre les différents sites, voire au sein d'un même site. Avant que ce travail ne soit entrepris, peu d'études avaient été effectuées au MET sur des quartz choqués naturels. D'une part, seul le site de Meteor Crater avait été étudié en détail. Il semble cependant que ce site présente des microstructures différentes des autres sites d'impact météoritique, soit parce que c'est un site récent (dans ce cas, l'érosion n'a pas fait son oeuvre et l'on observe les grains les plus choqués), soit parce que l'impact a eu lieu sur des quartzites poreuses (les deux phénomènes pouvant d'ailleurs s'être produits séparément). D'autre part, le peu d'études réalisées sur des matériaux provenant d'autres sites s'accordaient à dire que les PDF sont des lamelles amorphes, comme dans le cas des quartz choqués expérimentalement. Le travail présenté ici a montré que les microstructures sont beaucoup plus complexes qu'on ne le pensait. La relation "PDF vus au microscope optique implique présence de lamelles amorphes" est donc erronée. La grande variété de microstructures observées nous empêche même d'établir une réelle synthèse cohérente concernant l'histoire thermomécanique des grains observés (notamment dans le cas des quartz provenant du site de Raton Basin).

L'observation de grains de quartz choqués associés à la limite Crétacé/Tertiaire pourrait être étendue à d'autres sites (Stevns Klint au Danemark, Haiti qui semble être proche de la zone responsable de la catastrophe). Ceci devrait permettre de confirmer ou d'infirmer le modèle de métamorphisme produit par le "voyage" des grains de quartz dans l'atmosphère suite à l'impact météoritique ou à l'explosion volcanique.

Une quantification de l'évolution des microstructures induites par l'onde de choc avec la température devrait permettre de préciser les hypothèses émises pour l'interprétation des défauts observés. En effet, l'influence de nombreux paramètres n'est pas clairement élucidée. Notamment, quel sont les rôles respectifs de l'eau et de la pression dans ce métamorphisme? Pour répondre à ces questions, il serait nécessaire d'effectuer des recuits à pression ambiante ainsi que sous pression hydrostatique sur des échantillons dont la microstructure est bien caractérisée. Le contenu en eau ainsi que la forme sous laquelle cette eau est

présente (défauts ponctuels, bulles) devront également avoir été caractérisées auparavant.

Le quartz est un bon marqueur de choc car c'est un matériau rigide qui n'est que difficilement déformé. Cependant, il peut être intéressant de comparer sa réponse à une sollicitation dynamique avec d'autres matériaux plus ductile. Pour cela, on pourra travailler selon deux directions parallèles. La première consistera à effectuer des expériences de choc sur de la berlinite qui est un analogue structural du quartz, mais dont certaines liaisons sont plus faibles, ce qui la rend plus ductile. La deuxième voie devrait être l'observation d'olivine choquée, observables par exemple dans des météorites.

## **Références bibliographiques**





- AHRENS T.J. et ROSENBERG J.T. (1968) - Shock metamorphism : experiments on quartz and plagioclase - in "Shock metamorphism of natural materials", French et Short (éditeurs), Mono book corp., Baltimore, p. 59-81.
- ALVAREZ L.W., ALVAREZ W., ASARO F. et MICHEL H.V. (1980) - Extraterrestrial cause for the Cretaceous-Tertiary extinction - *Science*, 208, 1095-1108.
- ASHWORTH J.R. et SCHNEIDER H. (1985) - Deformation and transformation in experimentally shock-loaded quartz - *Phys. Chem. Minerals*, 11, 241-249.
- BECHMANN R. (1958) - Elastic and piezoelectric coefficients of alpha quartz - *Phys. Rev.*, 110, 1060-1061.
- BINGGELI N. et CHELIKOWSKY J.R. (1991) - Structural transformation of quartz at high pressure - *Nature*, 353, 344-346.
- BOHOR B.F., FOORD E.E., MODRESKI P.J. et TRIPLEHORN D.M. (1984) - Mineralogic evidence for an impact event at the Cretaceous-Tertiary boundary - *Science*, 224, 867-869.
- BOHOR B.F., MODRESKI P.J. et FOORD E.E. (1987) - Shocked quartz in the Cretaceous-Tertiary boundary clays : evidence for a global distribution - *Science*, 236, 705-708.
- BORN M. (1939) - Thermodynamics of crystals and melting - *J. Chem. Phys.*, 7, 591-603.
- BORN M. et HUANG K. (1954) - Dynamical theory of crystal lattices - Oxford University Press, London.
- BRICE J.C. (1985) - Crystals for quartz resonators - *Rev. Modern Physics*, 57, 105-146.
- CARTER N.L., OFFICER C.B., CHESNER C.A. et ROSE W.I. (1986) - Dynamic deformation of volcanic ejecta from the Toba Caldera : possible relevance to Cretaceous-Tertiary boundary phenomena - *Geology*, 14, 380-383.

- CARTER N.L., OFFICER C.B. et DRAKE C.L. (1990) - Dynamic deformation of quartz and feldspar : clues to causes of some natural crises - *Tectonophys.*, 171: 373-391.
- CHAO E.C.T. (1967) - Shock effects in certain rock-forming minerals - *Science*, 156, 192-202.
- CHELIKOWSKY J.R., TROULLIER N., MARTINS J.L. et KING H.E. Jr (1991) - Pressure dependence of the structural properties of the  $\alpha$ -quartz near the amorphous transition - *Phys. Rev.*, B44, 2, 489-497.
- CHESNER C.A., ROSE W.I., DEINO A., DRAKE R. et WESTGATE J.A. (1991) - Eruptive history of Earth's largest quaternary caldera (Toba, Indonesia) clarified - *Geology*, 19, 200-203.
- CHRISTIE J.M. et ARDELL A.J. (1976) - Deformation structures in minerals - In H.R. Wenk (Editor), *Electron microscopy in mineralogy*, Springer Verlag, Berlin, p 374-403.
- COES L. Jr (1953) - A new dense crystalline silica - *Science*, 118, 131-132.
- CORDIER P., BOULOGNE B. et DOUKHAN J.C. (1988) - Water precipitation and diffusion in wet quartz and wet berlinite  $AlPO_4$  - *Bull. Mineral.*, 111, 113-137.
- CORDIER P. (1989) - Solubilité de l'eau dans le quartz, influence sur la déformation plastique - Thèse de doctorat, Université des Sciences et Techniques de Lille Flandres-Artois.
- CORDIER P. et DOUKHAN J.C. (1989) - Water solubility in quartz and its influence on ductility - *Eur. J. Mineral.*, 1, 221-237.
- COURTILLOT V., BESSE J., VANDAMME D., JAEGER J.J. et MONTIGNY R. (1986) - Les épanchements volcaniques du Deccan (Inde), cause des extinctions biologiques à la limite Crétacé-Tertiaire ? - *C. R. Acad. Sci. Paris*, 303, II, 9, 863-868.

- CROCKET J.H., OFFICER C.B., WEZEL F.C. et JOHNSON G.D. (1988) - Distribution of noble metals across the Cretaceous/Tertiary boundary at Gubbio, Italy : Iridium variation as a constraint on the duration and nature of Cretaceous/Tertiary boundary events - *Geology*, 16, 77-80.
- DOUKHAN J.C. (1971) - Propriétés des dislocations dans le tellure - Thèse d'Etat, Université de Lille.
- DOUKHAN J.C. et TREPIED L. (1985) - Plastic deformation of quartz single crystals - *Bull. Mineral.*, 108, 97-123.
- ENGELHARDT W.v. et BERTSCH W. (1969) - Shock induced planar deformation structures in quartz from the Ries Crater, Germany - *Contrib. Mineral. Petrol.*, 20, 203-234.
- FARVACQUE J.L. (1977) - Influence des dislocations sur la conductivité du tellure - Thèse d'Etat, université des Sciences et Techniques de Lille.
- FRANCK F.C. (1965) - On Miller-Bravais indices and four-dimensional vectors - *Acta Cryst.*, 18, 862-866.
- FRENCH B.M. et SHORT N.M. (1968), Editors - Shock metamorphism of natural materials - Mono book Corp., Baltimore.
- FRICKE A., MEDENBACH O. et SCHREYER W. (1990) - Fluid inclusions, planar elements and pseudotachylites in the basement rocks of the Vredefort structure, South Africa - *Tectonophys.*, 171:169-183.
- GIBBS G.V., PREWITT C.T. et BALDWIN K.J. (1977) - A study of the structural chemistry of coesite - *Z. Kristallogr.*, 145, 108-123.
- GLEN W. (1990) - What killed the dinosaurs? - *American Scientist*, 78:354-370.
- GRATZ A. (1984) - Deformation in laboratory-shocked quartz - *J. Non Crystal. Sol.*, 67, 543-558.

- GRATZ A.J., PONGRATZ P., PREISINGER A., CHRISTIE J.M., BOHOR B. et FREY I. (1988a) - Optical microscopy and TEM of shocked material from the Clear Creek, Colorado K/T "magic layer" - *LPS Conf. Abstr. XIX*, 419-420.
- GRATZ A.J., TYBURCZY J., CHRISTIE J.M., AHRENS T. et PONGRATZ P. (1988b) - Shock metamorphism of deformed quartz - *Phys. Chem. Minerals*, 16, 221-233.
- GRATZ A.J., NELLIS W.J., CHRISTIE J.M., BROCIOSUS W., SWEGLE J. et CORDIER P. (1992) - Shock metamorphism of quartz with ambient temperatures - *Submitted to Phys. Chem. Minerals*.
- GREEN H.W. (1972) - Metastable growth of coesite in highly strained quartz - *J. Geophys. Res.*, 77, 2478-2482.
- GRIEVE R.A.F. et ROBERTSON P.B. (1976) - Variations in shock deformation at the Slate Islands impact structure, Lake Superior, Canada - *Contrib. Mineral. Petrol.*, 58, 37-49.
- GRIEVE R.A.F., CODERRE J.M., ROBERTSON P.B. et ALEXOPOULOS J. (1990) - Microscopic planar deformation features in quartz of the Vredefort structure: anomalous but still suggestive of an impact origin - *Tectonophys.*, 171: 185-200.
- HALLIBURTON L.E. et MARTIN J.J. (1985) - Properties of piezoelectric materials - Dans : E.A. Gerber et A. Ballato (éditeurs), *Precision frequency control*, vol. 1, Academic Press, New-York.
- HALLS H.C. et GRIEVE R.A.F. (1976) - The Slate Islands : a probable complex meteorite impact structure in Lake Superior - *Can. J. Earth Sci.*, 13, 1301-1309.
- HEMLEY R.J. (1987) - Pressure dependence of Raman spectra of SiO<sub>2</sub> polymorphs :  $\alpha$ -quartz, coesite and stishovite - Dans *High-pressure research in mineral physics*, édité par M.H. Manghnani et Y. Syono, 347-359.

- HEMLEY R.J., JEPHCOAT A.P., MAO H.K., MING L.C. et MANGHNANI M.H. (1988) - Pressure-induced amorphization of crystalline silica - *Nature*, 334, 52-54.
- HOBBS B.E. (1968) - Recrystallization of single crystals of quartz - *Tetonophys.*, 6, 353-401.
- IZETT G.A. et BOHOR B.F. (1987) - Comment on "Dynamic deformation of volcanic ejecta from the Toba Caldera : possible relevance to Cretaceous-Tertiary boundary phenomena" - *Geology*, 15, 90-91.
- JORGENSEN J.D. (1978) - Compression mechanisms in  $\alpha$ -quartz structures -  $\text{SiO}_2$  and  $\text{GeO}_2$  - *J. Appl. Phys.*, 49, 11, 5473-5478.
- KELLER G. (1989) - Extended period of extinctions across the Cretaceous/ Tertiary boundary in planktonic foraminifera of continental-shelf sections : implications for impact and volcanism theories - *Geol. Soc. Am. Bull.*, 101, 1408-1419.
- KIEFFER S.W., PHAKEY P.P. et CHRISTIE J.M. (1976) - Shock processes in porous quartzite : transmission electron microscope observations and theory - *Contrib. Mineral. Petrol.*, 59, 41-93.
- LANDOLT-BÖRNSTEIN (1982) - Physical properties of rocks - vol. 1, Springer Verlag, Berlin.
- LANGENHORST F., DEUTSCH A., STÖFFLER D. et HORNEMANN U. (1992) - Effect of temperature on shock metamorphism of single-crystal quartz - *Nature*, 356, 507-509.
- MARTINI J.E.J. (1991) - The nature, distribution and genesis of the coesite and stishovite associated with the pseudotachylite of the Vredefort Dome, South Africa - *Earth Planet. Sci. Lett.*, 103, 285-300.
- Mc INTYRE D.B. (1962) - Impact metamorphism at Clearwater Lake, Quebec - *J. Geophys. Res.*, 67, 1647.

- Mc LAREN A.C. et PHAKEY P.P. (1966) - Electron microscope study of Brazil twin boundaries in amethyst quartz - *Phys. Stat. Sol.*, 13, 413-422.
- Mc LAREN A.C., RETCHFORD J.A., GRIGGS D.T. et CHRISTIE J.M. (1967) - TEM study of Brazil twins and dislocations experimentally produced in natural quartz - *Phys. Stat. Sol.*, 19, 631-644.
- Mc SKIMIN H.J. (1962) - Measurement of the 25°C, zero field elastic moduli of quartz by high frequency plane wave propagation - *J. Acoust. Soc. Amer.*, 34, 1271-1274.
- Mc SKIMIN H.J., ANDREATCH P. et THURSTON R.N. (1965) - Elastic moduli of quartz versus hydrostatic pressure at 25°C and -198°C - *J. Appl. Phys.*, 36, 1624-1632.
- MÜLLER W.F. (1969) - Elektronenmikroskopischer Nachweis amorpher Bereiche in stosswellenbeanspruchtem Quarz - *Naturwissenschaften*, 5, 279.
- NG A., GODWAL B.K., WATERMAN J., DA SILVA L., ASHCROFT N.W. et JEANLOZ R. (1991) - Nonequilibrium shock behavior in quartz - *Phys. Rev. B*, 44, 10, 4872-4876.
- OFFICER C.B. et CARTER N.L. (1991) - A review of the structure, petrology, and dynamic deformation characteristics of some enigmatic terrestrial structures - *Earth Science Reviews*, 30, 1-49.
- PAGEL M. et POTY B. (1975) - Fluid inclusion studies in rocks of the Charlevoix structure (Quebec, Canada) - *Fortschr. Miner.*, 52, 479-489.
- PASCAL P. (1965) - Nouveau traité de chimie minérale - Tome VIII, 2° fascicule, Masson et Cie ed.
- PURTON J., JONES R., CATLOW C.R.A. et LESLIE M. (1992) - Ab initio potentials for the calculation of the dynamical and elastic properties of  $\alpha$ -quartz - soumis à *Phys. Chem. Minerals*.
- ROBERTSON P.B. (1975) - Zones of shock metamorphism at the Charlevoix impact structure, Quebec - *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 86, 1630-1638.

- SAGE R.P. (1978) - Diatremes and shock features in Precambrian rocks of the Slate Islands, northeastern Lake Superior - *Geol. Soc Amer. Bull.*, 89, 1529-1540.
- SHARPTON V.L. et SCHURAYTZ B.C. (1989) - On reported occurrences of shock deformed clasts in the volcanic ejecta from Toba caldera, Sumatra - *Geology*, 17, 1040-1043.
- SMYTH J.R. et BISH D.L. (1988) - Crystal structures and cation sites of the rock-forming minerals - Allen and Unwin Ed., Boston.
- SPACKMAN M.A., HILL R.J. et GIBBS G. (1987) - Exploration of structure and bonding in stishovite with Fourier and pseudoatom refinement methods using single crystal and powder X-ray diffraction data - *Phys. Chem. Minerals*, 14, 139-150.
- STAUDACHER T., JESSBERGER E.K., DOMINIK B., KIRSTEN T. et SCHAEFFER O.A. (1982) -  $^{40}\text{Ar}$ - $^{39}\text{Ar}$  ages of rocks and glasses from the Nördlinger Ries Crater and the temperature history of impact breccias - *J. Geophys.*, 51, 1-11.
- STISHOV S.M. et POPOVA S.V. (1961) - New dense polymorphic modification of silica - *Geokhimiya*, 10, 837-839.
- STÖFFLER D. (1972) - Deformation and transformation of rock-forming minerals by natural and experimental shock processes : 1. Behavior of minerals under shock compression - *Fortschr. Miner.*, 51 (2), 256-289.
- SUGIYAMA M., ENDO S. et KOTO K. (1987) - The crystal structure of stishovite under pressure up to 6 GPa - *Mineral. J.*, 13, 7, 455-466.
- TATTEVIN H., SYONO Y., KIKUCHI M., KUSABA K. et VELDE B. (1990) - Shock deformation of alpha quartz : laboratory experiments and TEM investigation - *Eur. J. Mineral.*, 2, 227-234.
- TOUTAIN J.P. et MEYER G. (1989) - Iridium-bearing sublimates at a hot-spot volcano (Piton de la Fournaise, Indian Ocean) - *Geophys. Res. Lett.*, 16, 1391-1394.



TREPIED L. et DOUKHAN J.C. (1978) - Dissociated a dislocations in quartz - *J. Mat. Sci.*, 13, 492-498.

TREPIED L. (1984) - Déformation plastique de monocristaux de quartz synthétiques - Influence de l'eau - Observation en microscopie électronique à transmission des sous-structures de dislocations - Thèse d'Etat, Université des Sciences et Techniques de Lille.

VOGT P.R. (1972) - Evidence for global synchronism in mantle plume convection, and possible significance for geology - *Nature*, 240, 338-342.

WACKERLE J. (1962) - Shock-wave compression of quartz - *J. Appl. Phys.*, 33, 3, 922-937.

ZOLLER N.H., PARRINGTON J.R. et PHELAN KOTRA J.M. (1983) - Iridium enrichment in airborne particles from Kilauea volcano - *Science*, 222, 1118.



## RESUME

La déformation par onde de choc est particulière du fait du haut niveau de contrainte atteint (plusieurs dizaines de GPa) ainsi que de la courte durée d'application de cette contrainte (de la micro- à la milliseconde). Les grains de quartz soumis à une onde de choc présentent au microscope optique des lignes de contraste appelées "planar deformation features" (PDF) parallèles aux plans d'indices  $\{10\bar{1}n\}$  avec  $n=1, 2, 3, 4$  ou  $\infty$  (plan de base). C'est notamment le cas de grains de quartz provenant de sites d'impact météoritique et de quelques autres sites dont la cause n'est pas encore clairement élucidée. Nous avons étudié par microscopie électronique en transmission (MET) des grains de quartz choqués provenant de plusieurs de ces sites (sites d'impact et autres) dans le but de caractériser la nature physique des défauts et de connaître les mécanismes leur ayant donné naissance. En effet, peu d'études ont été réalisées auparavant par MET sur des quartz choqués d'origine naturelle. Les études effectuées par MET sur des quartz choqués expérimentalement présentent des lamelles de phase amorphe. D'où l'équation généralement admise "PDF=lamelles de phase amorphe".

Nos observations sur des quartz choqués naturellement font ressortir que les défauts induits dans les grains de quartz sont beaucoup plus variés. Nous pouvons classer les microstructures observées dans les catégories suivantes: lamelles de phase amorphe, bandes de dislocations, veines de phase amorphe, macles du Brésil d'origine mécanique et défauts dits "en échelon".

Il semble que la grande variété de microstructures provienne en partie du métamorphisme qu'ont pu subir certains grains après le choc (certains grains ont été choqués il y a 350 millions d'années). Les microstructures induites directement par l'onde de choc seraient principalement les macles de Brésil d'origine mécanique et les lamelles de phase amorphe.

Nous suggérons que les macles du Brésil se forment par glissement dans le plan de base de dislocations dissociées de vecteur de Burgers  $a/2$ . D'autre part, un modèle de formation des lamelles de phase amorphe est proposé. Nos calculs, basés sur le critère de stabilité mécanique de Born, montrent que la structure du quartz devient instable à partir d'environ 10 GPa. Les calculs des modules de cisaillement dans différents plans montrent que ces instabilités se développent selon les plans d'indices  $\{10\bar{1}n\}$  correspondant aux plans des PDF. Nous suggérons que ces instabilités croissent selon la direction de propagation de l'onde de choc.

Certains échantillons, notamment ceux associés à la limite Crétacé/Tertiaire, présentent des indices de métamorphisme post-choc (précipitation d'eau). Il semble donc que les microstructures observées puissent résulter de l'action de ce métamorphisme. Dans le cas de la limite Crétacé/Tertiaire, aucun modèle ne permet une compréhension parfaite de l'ensemble des observations.