

Modélisation de la formation de motifs périodiques dans un système eutectique binaire formant un corps igné

par

Jade Ghaoui

Thèse soumise à la
Faculté des études supérieures et postdoctorales
dans le cadre des exigences
du programme de maîtrise en physique

Département de physique
Faculté des sciences
Université d'Ottawa
Institut de Physique Ottawa-Carleton
20 juillet 2015

© Jade Ghaoui, Ottawa, Canada, 2015

Résumé

Les oscillations en composition et taille des grains peuvent parfois être générées dans les intrusions magmatiques, produisant des motifs caractéristiques à l'échelle du centimètre au mètre sous forme de couches cycliques. Il est essentiel de comprendre l'origine de ces motifs afin d'établir les circonstances géologiques de formation de ces corps.

Nous travaillons avec l'hypothèse que ces motifs sont le résultat d'un processus d'auto-organisation non linéaire selon lequel l'interaction entre la dynamique de cristallisation et la diffusion cause la ségrégation des minéraux selon leur nature et leur taille. Ce mécanisme est semblable à celui à l'origine des bandes de Liesegang et mène à des caractéristiques comparables, telles qu'une progression géométrique de la position des bandes. Dans le but d'obtenir une description plus complète du processus de formation des motifs périodiques dans le contexte d'un système magmatique eutectique binaire en contact avec une roche-mère plus froide, nous présentons un modèle numérique en une dimension de nucléation et croissance qui généralise les modèles précédents. Notre modèle inclut une correction tenant compte de l'effet de la porosité sur la tortuosité, ainsi que le mûrissement d'Ostwald, facultativement. La solidification est contrôlée par des paramètres clés déterminant l'émergence du motif. De plus, en utilisant une géométrie sphériquement symétrique, notre modèle peut être appliqué à la formation de granites orbiculaires.

Abstract

Oscillations in composition and grain size can sometimes be generated in magmatic intrusions, giving rise to characteristic centimeter to meter-scale patterns called cyclic layering. Understanding the genesis of these patterns is essential in order to establish the geologic circumstances leading to the formation of these bodies.

We hypothesize that these patterns result from a nonlinear self-organization process in which the interplay between crystallization dynamics and diffusion causes mineral and crystal size segregation. The mechanism is similar to the one behind the formation of Liesegang bands and leads to comparable features, such as a geometric progression of the band positions. With the goal of obtaining a more complete description of the pattern formation process in the context of a binary eutectic magmatic system in cooling contact with a host-rock, we present a one-dimensional numerical model of nucleation and growth that generalizes previously available versions. The model includes tortuosity corrections for the porosity, as well as Ostwald ripening, optionally. The emergence of cyclic layering is described in terms of key parameters that control the solidification. Moreover, by using a spherically symmetric geometry, the model can be applied to the formation of orbicular granites.

Remerciements

Je voudrais d'abord exprimer mes plus sincères remerciements à mon superviseur, Ivan L'Heureux, pour avoir partagé avec moi sa passion et m'avoir guidée et supportée tout au long de ma maîtrise. Je remercie aussi Francis Gravel St-Pierre pour son assistance lors de mes difficultés informatiques. Je tiens également à remercier, pour leur support moral et nos discussions fructifiantes, Louis Jacques, Alexandre René, Laurent Gagné-Dumais et particulièrement Alexandre Melanson, dont le support et les conseils m'ont tant aidée.

Je remercie aussi ma mère pour son constant support.

Je me dois aussi de souligner l'infailible bonne humeur de Tabasco et Gallix, qui a contribué à me garder saine d'esprit.

Finalement, je voudrais reconnaître l'appui financier du Fonds de Recherche Québécois Nature et Technologies ainsi que le Conseil de Recherche en Sciences Naturelles et Génie du Canada et la Faculté des Études Supérieures et Postdoctorales de l'Université d'Ottawa pour un octroi de voyage.

Table des matières

Liste des tableaux	viii
Table des figures	ix
Liste des symboles utilisés	xi
1 Introduction	1
1.1 Motifs périodiques dans les systèmes ignés	1
1.2 Motifs de Liesegang	4
1.3 État des connaissances	6
1.4 Objectifs	7
1.5 Méthodologie	8
2 Théorie	10
2.1 Bandes de Liesegang	10
2.1.1 Lois d'échelle	10
2.1.2 Modèles de prénucléation et postnucléation	12
2.2 Mécanisme de cristallisation	13
2.2.1 Diagramme de phase d'un système eutectique binaire	14
2.2.2 Nucléation	15
2.2.3 Taux de croissance	22
2.2.4 Mûrissement d'Ostwald	30
2.3 Diffusion et réaction	32

2.3.1	Technique des moments	32
2.3.2	Équations d'évolution	33
2.4	Adimensionalisation	36
2.5	Particularités géométriques du système à l'étude	39
3	Aspects numériques	41
3.1	Traitement temporel	41
3.1.1	Méthode des lignes	42
3.1.2	Approche globale implicite	43
3.1.3	Approche séquentielle non itérative (ASNI)	44
3.1.4	Algorithme de Strang	44
3.1.5	Approche séquentielle itérative (ASI)	47
3.2	Maillage non homogène	48
4	Motifs dans une intrusion ignée : résultats et analyse	49
4.1	Constantes	49
4.2	Présentation des résultats	50
4.2.1	Cas de référence	50
4.2.2	Influence des paramètres	54
4.3	Lois d'échelle	61
4.4	Résumé	66
5	Motifs dans une intrusion ignée : mûrissement d'Ostwald	68
5.1	Cas de référence avec mûrissement	68
5.1.1	Présentation des résultats	68
5.1.2	Effet du mûrissement sur la loi d'espacement	71
5.2	Effet du mûrissement pour différents cas	73
5.2.1	Effet sur les types de bandes	73
5.2.2	Profil initial de concentration homogène, avec mûrissement	74
5.3	Résumé	75

6	Granites orbiculaires	76
6.1	Introduction	76
6.2	Modifications au modèle	77
6.3	Résultats des simulations	79
6.3.1	Cas de référence – sans mûrissement	79
6.3.2	Influence des paramètres – sans mûrissement	83
6.3.3	Effet du mûrissement	84
6.4	Résumé	90
7	Conclusion	92
	ANNEXES	95
A	Code	96
B	Résultats - Intrusion, sans mûrissement	109
C	Résultats - Intrusion, avec mûrissement	116
	Bibliographie	123

Liste des tableaux

4.1	Constantes représentatives d'un magma basaltique utilisées pour les simulations	50
4.2	Paramètres du cas de référence pour les simulations	50
4.3	Analyse de la loi d'espacement pour différents paramètres	63
5.1	Analyse de la loi d'espacement pour le cas de référence avec mûrissement selon δ	72
6.1	Constantes et paramètres utilisés pour les simulations de granites orbiculaires.	80
B.1	Paramètres utilisés pour chaque simulation (sans mûrissement)	110
C.1	Paramètres utilisés pour chaque simulation (avec mûrissement)	117

Table des figures

1.1	Exemples d'intrusions présentant un motif périodique	2
1.2	Superbe exemple de granodiorite orbiculaire	3
2.1	Diagramme de phase d'un système eutectique binaire	16
2.2	Variation de l'énergie lors de la formation d'un cristal sphérique, selon son rayon	18
2.3	Sites occupés par une molécule à la surface d'un cristal	23
2.4	Variation de l'énergie libre lors du changement de phase	23
2.5	Dépendance du taux de croissance sur les température et concentration . .	25
2.6	Schéma de la géométrie de l'intrusion	39
4.1	Évolution de la fraction de solide durant la cristallisation	51
4.2	Exemple de trajectoire dans le plan température - taux de croissance pour le cas de référence	52
4.3	Composition finale du magma cristallisé pour le cas de référence	53
4.4	Représentation graphique de la composition finale du magma cristallisé pour le cas de référence	53
4.5	Taille des cristaux dans la roche finale pour le cas de référence	54
4.6	Composition finale du magma cristallisé pour le cas $Le = 10$	55
4.7	Composition finale du magma cristallisé pour le cas $Le = 1$	56
4.8	Composition finale du magma cristallisé pour le cas $Le = 1000$ et $St = 0.3$	57
4.9	Composition finale du magma cristallisé pour le cas $Le = 100000$ et $St = 0.1$	57
4.10	Types d'oscillations obtenues selon Le et St	58

4.11	Composition finale et taille des grains du magma entièrement cristallisé pour $C_{A0} = 50\%$ sauf une fluctuation	60
4.12	Effet de la température du magma sur la fraction de volume finale	61
4.13	Vérification de la loi d'espacement pour le cas de référence	62
4.14	Vérification de la loi de largeur pour différents paramètres.	65
4.15	Vérification de la loi de temporelle pour différents paramètres.	66
5.1	Composition finale du magma entièrement cristallisé pour le cas de référence avec mûrissement ($\delta = 1$ et $\delta = 3$)	69
5.2	Taille des cristaux dans la roche finale du pour le cas de référence avec mûrissement ($\delta = 1$ et $\delta = 3$)	70
5.3	Exemple de trajectoire dans le plan température - taux de croissance pour le cas de référence avec mûrissement	71
5.4	Types d'oscillations obtenues selon Le et St avec mûrissement	73
5.5	Comparaison d'une oscillation de type court avec et sans mûrissement	74
5.6	Composition finale et taille des grains du magma cristallisé avec mûrissement pour $C_{A0} = 50\%$ sauf une fluctuation	75
6.1	Exemple de granite orbiculaire	76
6.2	Schéma de la géométrie utilisée pour la simulation du granite orbiculaire	78
6.3	Évolution de la fraction de solide lors de la cristallisation du granite orbiculaire	81
6.4	Granite orbiculaire résultant pour le cas de référence	83
6.5	Influence de Le et St sur la composition finale du granite orbiculaire sans mûrissement	85
6.6	Granite orbiculaire résultant pour le cas de référence avec mûrissement	86
6.7	Effet du mûrissement sur la fraction de solide du granite orbiculaire	87
6.8	Effet du mûrissement sur la taille des grains du granite orbiculaire	88
6.9	Influence de Le et St sur la composition finale du granite orbiculaire avec mûrissement	89

Liste des symboles utilisés

Acronymes

ASI	Approche Séquentielle Itérative
ASNI	Approche Séquentielle Non Itérative
DTA	Distribution de taille des amas
MCC	Modèle de croissance compétitive
TCN	Théorie Capillaire de Nucléation

Symboles mathématiques

α	température adimensionalisée	-
β	coefficient cinétique de cristallisation	m/s
ΔG^*	barrière d'énergie libre de nucléation	J/molécule
Δh	enthalpie de fusion moléculaire	J/molécule
ΔU	barrière d'énergie de nucléation	J/molécule
δ	épaisseur de la surface de gibbs	m
δ_i	$\frac{\Delta h_i}{kT_{LA0}}$	-
ϵ_i	$\frac{\Delta U_i}{kT_{LA0}}$	-
Γ	facteur de Zeldovich	-
$\hat{D}$	coefficient de diffusion	m ² /s
λ	libre parcours moyen	m
μ	potentiel chimique moléculaire	J/molécule
ϕ	fraction de solide dans le volume total	-
ρ	rayon moyen des cristaux $\times n$	m ⁻²
Σ	surface moyenne des cristaux	m ⁻¹
σ	tension de surface	J/(m ² molécule)

τ	temps caractéristique	s
θ	préfacteur de nucléation	-
C	concentration d'une espèce dans le magma	m^{-3}
C_0	concentration initiale du magma	m^{-3}
D_{0i}	préfacteur de $\hat{D}$	m^2/s
D_i	rapport D_{0i}/D_{0A}	-
d_i	composante variable de $\hat{D}$	-
G	énergie libre de Gibbs	J/molécule
h	constante de Planck	Js
J	taux de nucléation par unité de volume de magma	$\text{s}^{-1} \text{ m}^{-3}$
k	constante de Boltzmann	J/K
L	longueur caractéristique	m
Le_i	nombre de Lewis	-
n	nombre moyen de cristaux par unité de volume total	m^{-3}
p	paramètre numérique contrôlant l'application de l'espace réel à l'espace de calcul	-
r^*	rayon caractéristique	m
r_c	rayon critique	m
St_i	nombre de Stefan	-
T	temperature	K
T_0	température initiale du magma	K
T_c	température initiale de la roche en contact avec le magma	K
T_L	température du liquidus	K
T_{Li0}	température du liquidus de l'espèce pure	K
V	taux de croissance par unité de volume de magma	m/s
v	volume d'une molécule	m^3
V_0	taux de croissance caractéristique	m/s

Exposants

'	adimensionalisé
---	-----------------

Indices

b	bouillie
c	cavité
i	composante A ou B
m	magma – en phase liquide
n	noyau
r	roche-mère
s	cristal – en phase solide
t_f	temps final

Chapitre 1

Introduction

Les systèmes géologiques fournissent d'excellents exemples de systèmes complexes desquels émergent de nombreux comportements intrigants, notamment sous la forme frappante de motifs dans les roches. Alors que leur étude a souvent été limitée à des modèles conceptuels ou qualitatifs, l'application des méthodes d'analyse développées en physique (et particulièrement en dynamique non linéaire) offre des pistes de solutions quantitatives prometteuses. La science du chaos et de la non linéarité a apporté beaucoup au monde de la géologie, en permettant une compréhension mathématique de ces systèmes complexes (Ortoleva 1993).

La formation de motifs dans les corps ignés (i.e. formés par la cristallisation de magma) est un exemple d'un tel problème. La modélisation du processus d'auto-organisation non linéaire à leur origine est le sujet de ce texte.

1.1 Motifs périodiques dans les systèmes ignés

Il arrive que les corps ignés présentent un motif périodique¹. Différentes couches successives peuvent se distinguer par leur composition minéralogique et leur texture, via la taille des cristaux, formant un cycle à l'échelle du millimètre jusqu'au mètre (voir figures 1.1 et 1.2). Toramaru (1996) distingue un autre type de litage selon la concentration des vésicules, soit de petites cavités dans la roche causées par la présence de bulles dans le magma. Ce type de motif peut être exposé par l'érosion différentielle des bandes, tel qu'illustré à

1. On parle ici d'un motif répétitif. Le terme «périodique» est utilisé par abus de langage, puisque le motif n'est pas nécessairement caractérisé par un intervalle strictement régulier. Les termes rythmique ou cyclique sont aussi parfois utilisés.

la figure 1.1b. Bien que toutes ces variations soient généralement visibles, on peut aussi parfois mesurer une stratification cryptique, soit une variation spatiale de la composition chimique de certains minéraux qui n'est pas perceptible à l'oeil nu. Bien que les corps ignés présentant un motif périodique soient relativement rares, on en rencontre un peu partout à travers le monde, chacun se distinguant par un large ensemble de caractéristiques.

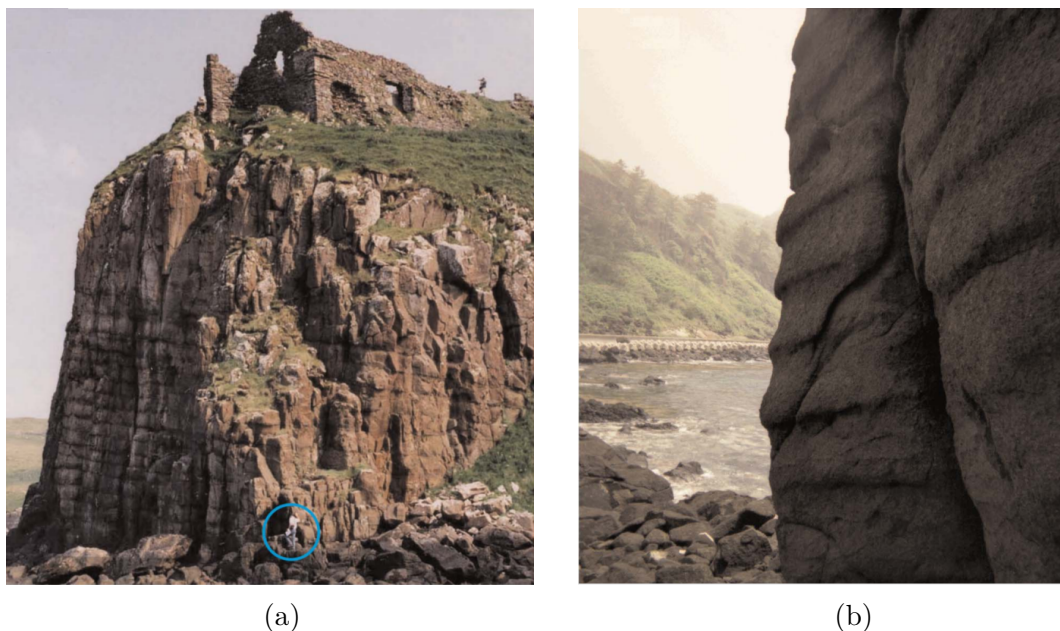


FIGURE 1.1 – Exemples d'intrusions présentant un motif périodique. (Toramaru & Matsumoto 2012), reproduit avec permission. (a) Sill de dolérite, Château de Duntulm, Écosse. Comme échelle, le cercle bleu indique un géologue. (b) Sill de picrite à Ogi, Japon. L'espacement des bandes est de l'ordre de 30 cm.

On retrouve ces motifs dans deux types de systèmes : les intrusions litées et les granites orbiculaires. Les intrusions litées, dont des exemples sont illustrés à la figure 1.1, ont été le sujet de plusieurs études au cours des dernières décennies, puisqu'elles représentent un excellent laboratoire naturel permettant l'analyse de nombreux processus en pétrologie ignée. Parmi les exemples d'intrusion ignée litée les mieux connus et documentés se trouvent le complexe igné du Bushveld, en Afrique du Sud (Jackson 1970), le complexe de Stillwater, au Montana (Jackson 1970, Hess 1960), et l'intrusion de Skaergaard, au Groenland (Boudreau 1997, Mcbirney & Noyes 1979). Ces intrusions sont généralement de composition mafique (p. ex. basalte) et sont de taille très variable, avec une superficie allant d'environ 100 m² (Skaergaard) jusqu'à 66 000 m² (Bushveld)(Winter 2001). La dimension du motif varie aussi grandement, le litage étant généralement macrorythmique, soit à l'échelle du mètre, voire du kilomètre (intrusion de Muskox) (Irvine 1981), mais certaines intrusions

présentent aussi un litage microrhythmique, soit à l'échelle du centimètre. Des doublets sont parfois visibles, sous forme de bandes satellites rapprochées. Aussi, ces intrusions litées présentent parfois un intérêt minier. Le complexe du Bushveld, particulièrement, est le plus grand gisement de platinoïdes au monde.

Le second système consiste en roches d'apparence assez spectaculaire, généralement de composition granitique, caractérisées par la présence d'orbicules, c'est-à-dire de corps de minéralogie et/ou texture distinctes de la matrice, grossièrement sphériques, de diamètre de l'ordre du décimètre, et présentant parfois une stratification en couches concentriques à l'échelle du centimètre. Un exemple est illustré à la figure 1.2. Plusieurs cas de granites orbiculaires ont été étudiés en détail, mais leur formation demeure encore énigmatique.



FIGURE 1.2 – Monolithe de granodiorite orbiculaire, Boogardie Station, Western Australia. Simon Howard, curateur du National Museum of Scotland pose à côté. Photo reproduite avec autorisation du site du Musée.

Malgré un grand nombre d'études portant sur la formation de ces corps ignés et de leurs motifs, celle-ci n'est pas encore bien comprise. Les réservoirs magmatiques forment un système complexe, où une multitude de processus sont simultanément actifs lors de la

solidification du magma. D’abord, les observations à l’échelle de la chambre magmatique entière démontrent que la cristallisation se fait de manière fractionnée, et non à l’équilibre. Les cristaux nouvellement formés sont donc aussitôt séparés du magma et un équilibre chimique n’est pas maintenu entre les deux phases. Le triage par gravité des différents minéraux semble expliquer assez bien la formation des différentes couches dans le cas des plus petites intrusions. Toutefois, ce phénomène à lui seul ne peut justifier certaines observations faites dans les plus grandes intrusions, indiquant que d’autres mécanismes sont à l’oeuvre. Par exemple, le profil de la taille de grains, de même que le profil des variations chimiques des minéraux présentent parfois des changements brusques ou organisés, ce qui n’est pas cohérent avec le modèle de triage continu des cristaux. Des arrivées successives de magma de composition variée pourraient expliquer certaines observations et pallier ces difficultés, mais ne peuvent être la seule cause de la formation des couches, notamment en raison du manque de régularité dans la séquence cryptique : on devrait y observer une stratification qui suit les arrivées de magma et donc les couches visibles, ce qui n’est pas toujours le cas. De plus, dans les chambres magmatiques plus grandes, la convection est fortement active. Les variations de densité du magma selon sa composition et sa température provoquent une succession de cellules par convection de double diffusion pouvant contribuer à la formation des différentes couches, à un niveau qui est encore le sujet de débats. D’autres phénomènes à considérer sont les contrastes de densité pouvant causer des courants et le rebrassage du magma ainsi que la variation des conditions environnementales, telles que la présence de volatiles, la pression et la présence d’eau en solution.

Il existe des modèles plus ou moins simples tenant compte d’un certain nombre de ces mécanismes, mais ne pouvant justifier l’ensemble des caractéristiques observées dans les occurrences naturelles. Une compréhension approfondie de l’ensemble des mécanismes à l’oeuvre serait nécessaire afin d’expliquer l’origine variée de ces corps ignés.

1.2 Motifs de Liesegang

En 1896, Raphaël Eduard Liesegang a été le premier à étudier le processus de précipitation périodique en observant la réaction se produisant lors du contact d’une solution de nitrate d’argent (électrolyte externe) avec un gel contenant du dichromate de potassium (électrolyte interne) (Liesegang 1896). La solution diffuse dans le gel et réagit de manière à former un précipité de dichromate d’argent. La dynamique du processus, soit l’interaction entre la diffusion des composantes et les processus de nucléation, de croissance et de mûrissement du précipité, fait en sorte que celui-ci crée un motif précis. Versant la solution

sur le gel dans une éprouvette, on observe la formation de bandes parallèles et, la versant à la surface d'une mince couche de gel, on obtient des anneaux. Ostwald (1897) a plus tard nommé ces motifs «bandes ou anneaux de Liesegang». Ils sont le résultat d'un processus d'auto-organisation non linéaire hors d'équilibre nommé précipitation périodique² ou mécanisme de Liesegang. La création de bandes de Liesegang en laboratoire permet leur étude en milieu contrôlé, mais on retrouve plusieurs motifs de ce type dans la nature, sous une forme plus ou moins ordonnée.

Les bandes décrites plus haut dans les corps ignés sont un bon exemple de système présentant plusieurs similarités avec les bandes de Liesegang, ce qui indique que le phénomène de précipitation périodique pourrait jouer un rôle dans leur formation. De manière analogue à la formation par bandes du précipité, la rétroaction entre la diffusion des composantes du magma et la cinétique de cristallisation peut donc causer une ségrégation des cristaux selon leurs taille et composition.

Il ne s'agit pas du premier cas de système géochimique présentant un motif de Liesegang. Par exemple, l'altération d'une roche sédimentaire par les fluides y circulant, ou bien le processus de diagenèse impliquant une réaction biogéochimique peut engendrer la formation de bandes par un processus similaire à la précipitation périodique. Ce type de processus peut aussi être à l'origine de la formation de motifs dans les agates, les paésines (ou marbres-ruines), les jaspes, les gisements de fer rubané et la sphalérite rubanée de type vallée du Mississippi (L'Heureux 2013). Bien que ces systèmes aient été étudiés en détail, le rôle du mécanisme de Liesegang dans un contexte igné est encore mal établi. Le projet présenté dans ce document vise à contribuer à remédier à cette situation.

Il est intéressant de noter que, en plus des motifs observés dans les systèmes géologiques, des structures atmosphériques, biologiques, et même urbaines présentent un caractère semblable aux bandes de Liesegang (Sadek & Sultan 2010). Par exemple, on peut penser aux bandes d'un zèbre, aux rayures de certains poissons ou aux taches d'une girafe : le mécanisme de morphogenèse à leur origine serait contrôlé par un processus de diffusion-réaction. Selon cette théorie, ces motifs seraient des exemples de structures de Turing, une manifestation naturelle et souvent très irrégulière de bandes de Liesegang (Turing 1952).

2. Notez encore l'abus de langage relié à l'usage du mot périodique. De plus, ce terme s'applique de manière générale à une famille de phénomènes et n'implique pas nécessairement la formation d'un précipité.

1.3 État des connaissances

Plusieurs modèles mathématiques démontrent qu'un processus de diffusion-réaction hors d'équilibre peut expliquer la formation de motifs dans les intrusions, indépendamment des autres mécanismes en action. Différentes suppositions plus ou moins réalistes sont toutefois avancées afin de simplifier le problème. En 1984, Brandeis, Jaupart et Allègre proposent un premier modèle quantitatif d'une chambre magmatique à une composante en contact avec une surface froide résultant en une stratification. Une rétroaction se produit entre la cristallisation et la libération de chaleur latente, menant à une nucléation par pulses qui se traduit dans la roche résultante par une oscillation de la taille des cristaux correspondant sommairement aux observations. Wang et Merino (1993) poursuit ce travail en considérant un magma comportant deux composantes, cristallisant en deux minéraux distincts. Cet ajout vient significativement compliquer le processus. Dans un système simple à une composante, la cristallisation est contrôlée par la température uniquement, et la température de cristallisation est fixe. Toutefois, dans un système à plusieurs composantes, leur concentration respective affecte la température de cristallisation, et donc le niveau de sous-refroidissement, en modifiant l'état d'équilibre entre les phases. Wang et Merino considèrent la présence de chaînes silicatées auxquelles s'attachent différents ions afin de précipiter sous forme de différents minéraux. La cinétique de cristallisation utilisée a toutefois plusieurs lacunes, et néglige complètement les effets thermiques, incluant la libération de chaleur latente. Ce modèle parvient tout de même à justifier la formation d'un motif, quoique l'échelle des bandes formées ne soit pas aussi large que celles observées. Il est toutefois intéressant de constater que, dans certains cas, des doublets apparaissent, bien qu'un peu trop faibles pour être réalistes. Il s'agit d'une première : les modèles de précipitation périodique d'une solution ne permettent pas la formation de doublets pour un système de nucléation-croissance seul (Dee 1986, Chacron & L'Heureux 1999). Toramaru (1991, 2001) et Toramaru et Matsumoto (2012) proposent un modèle binaire bien plus complet, inspiré de celui de Brandeis, Jaupart et Allègre. En variant certains paramètres physiques, ils obtiennent des oscillations en composition et taille des cristaux à l'échelle du millimètre jusqu'au décimètre, mais ne parviennent pas à produire de doublets. Plusieurs améliorations de leurs hypothèses seront suggérées plus loin dans ce texte.

Tous ces modèles, dits de prénucléation, ne considèrent que la nucléation et la croissance des cristaux dans le mécanisme de cristallisation. Un phénomène est alors négligé : le mûrissement d'Ostwald, selon lequel les plus petits cristaux seront plus facilement dissous, au profit des plus gros. Dans le contexte de bandes de Liesegang, les modèles basés sur le mûrissement sont dits de postnucléation (Feeney, Schmidt, Strickholm, Chadam &

Ortoleva 1983). Boudreau (1995) entreprend d'établir un modèle simple de postnucléation dans une chambre ignée à une composante dans le but d'expliquer la présence d'oscillations à petite échelle et d'anomalies dans le motif tels les doublets. Son modèle n'implique ni nucléation ni gradient de température, négligeant les effets thermiques, dont la libération de chaleur latente, et débute avec un système homogène sauf pour une petite perturbation dans la taille des cristaux. Son résultat positif démontre que le mûrissement seul suffit à former un motif périodique. Boudreau (1994) formule aussi un modèle de postnucléation pour une intrusion à deux composantes. Il introduit également le formalisme utilisé dans ce document. Son modèle est ensuite appliqué à l'intrusion litée de Skaergaard, un système sous pression (Boudreau 1997). Outre l'ajout d'advection au modèle (en comparaison duquel la diffusion devient négligeable), l'effet de la compaction n'est toutefois qu'analysé qualitativement.

Le détail des connaissances spécifiques aux granites orbiculaires sera discuté dans le chapitre y étant consacré.

1.4 Objectifs

Le but de ce projet est d'établir un modèle plus général de précipitation périodique dans les chambres magmatiques permettant une approche globale de la formation de motifs de Liesegang dans les corps ignés et du rôle des paramètres contrôlant le processus. Les nombreuses avancées faites au cours des dernières décennies ont ouvert la voie à un modèle plus général, permettant d'expliquer un maximum d'observations.

Nous travaillerons avec un système unidimensionnel, binaire et eutectique (ce qui sera défini plus loin). Les caractéristiques de notre modèle sont les suivantes :

- cinétique de cristallisation comprenant la nucléation, la croissance et, optionnellement, le mûrissement ;
- diffusion de la chaleur et du matériel ;
- formulation de la dynamique du système plus précise que les modèles précédents ;
- processus contrôlé par quelques paramètres clés ;
- flexible, applicable à différentes géométries.

Notre modèle s'appuie fortement sur celui de Toramaru et Matsumoto (2012), y apportant toutefois quelques améliorations qui seront détaillées plus loin. Entre autres, le coefficient de diffusion est corrigé pour tenir compte de la porosité et le mûrissement est considéré.

On suppose que les phénomènes suivants sont négligeables :

- la gravité ;
- les effets hydrodynamiques (p.ex. convection, compaction, advection) ;
- les effets de pression ;
- la présence de volatiles ;
- la présence d’eau en solution ;
- les influences environnementales.

Un système ainsi simplifié, quoique bien sûr peu réaliste, permet d’analyser directement les effets nous intéressant. Généraliser notre modèle, par exemple en incluant une troisième composante, ne poserait pas d’obstacle majeur. Il serait toutefois prématuré d’étudier un tel système alors que le système binaire n’est pas encore bien compris.

Tel qu’il a été mentionné plus haut, les intrusions litées fournissent une excellente fenêtre sur une variété de mécanismes fondamentaux en pétrologie ignée, notamment la cristallisation et la différenciation. Non seulement l’étude des processus de formation à l’oeuvre dans ces systèmes permet une meilleure connaissance de chaque occurrence, mais aussi une meilleure compréhension de l’origine et de l’évolution des systèmes ignés en général. L’étude de l’un des mécanismes actifs dans les chambres magmatiques, de manière isolée, constitue un pas vers ce but.

1.5 Méthodologie

Les motifs auxquels nous nous intéressons trouvent leur origine dans un processus de réaction-diffusion donnant lieu à l’auto-organisation du système. Le modèle que nous proposons afin d’étudier ce phénomène consiste en un ensemble d’équations différentielles non linéaires couplées déterminant l’évolution de l’état du système, via les moments de la distribution de taille des particules. Par la suite, la comparaison des résultats obtenus par la résolution numérique du modèle et les observations des occurrences naturelles permettent d’établir l’étendue de son réalisme.

Le chapitre 2 présente les concepts théoriques nécessaires, établit le formalisme qui sera adopté et pose le modèle en soi. Les techniques numériques utilisées pour la résolution du modèle sont détaillées au chapitre 3.

S’ensuivent trois chapitres de résultats : d’abord, au chapitre 4, le modèle, dont seul le processus de prénucléation est actif, est appliqué à une intrusion. Une analyse paramétrique systématique est effectuée. Ensuite, l’analyse est reprise au chapitre 5 pour l’intrusion en incorporant le mûrissement. Il s’agit alors d’un mécanisme à la fois de pré- et de

post- nucléation. Finalement, au chapitre 6, le modèle est appliqué au problème du granite orbiculaire, d'abord sans, puis avec mûrissement. Finalement, le chapitre 7 conclut la présentation.

Le lecteur trouvera trois annexes à la fin du document. L'annexe A contient le code utilisé pour les simulations d'intrusion sans mûrissement, avec les fonctions pertinentes. Les annexes B et C présentent l'intégralité des résultats produits pour l'intrusion, avec et sans mûrissement, respectivement.

Chapitre 2

Théorie

Cette section présente un modèle mathématique de solidification d'une chambre magmatique fermée, dans laquelle se forment des motifs périodiques par un processus d'auto-organisation semblable à celui de Liesegang. Le mécanisme de cristallisation est d'abord établi à partir de la thermodynamique du système. Ensuite, la description de l'état du système à l'étude est formalisée afin de permettre d'analyser son évolution.

2.1 Bandes de Liesegang

2.1.1 Lois d'échelle

L'observation de bandes de Liesegang en milieu contrôlé a permis de déterminer des lois d'échelle empiriques régissant leur formation. On ne retrouve pas nécessairement ces tendances dans des systèmes naturels, beaucoup plus complexes. Si l'étendue du système permet d'avoir suffisamment de bandes, il arrive que ces lois se manifestent aux bandes plus loin de l'interface, lorsque le système se stabilise.

1. Loi d'espacement de Jablczinsky

Cette loi stipule que la position des bandes suit une progression géométrique. Soit X_n la position du centre de la n -ième bande. La loi stipule donc qu'il existe une relation linéaire entre X_n et X_{n+1} (Jablczinsky 1923).

$$X_{n+1} = PX_n + A \tag{2.1}$$

pour n suffisamment grand.

Pour un motif dit normal, $P > 1$ et l'espacement des bandes s'accroît avec leur distance à l'interface. Cependant, un motif inversé a parfois été observé où les bandes se rapprochent plutôt que se distancent. Il s'agit d'un phénomène encore mal compris, où des facteurs aléatoires dans les conditions expérimentales semblent jouer un rôle important (Brandeis, Jaupart & Allègre 1984).

Dans les intrusions litées, il a été observé que la loi d'espacement de Jablczinsky est effectivement respectée (Toramaru & Matsumoto 2012).

2. Loi de Matalon-Packter

La loi de Matalon-Packter (Matalon & Packter 1955) concerne la pente P de la droite donnée par la loi d'espacement. Celle-ci dépend de a_0 , la concentration de l'électrolyte externe dans la solution, et de b_0 , la concentration d'électrolyte interne dans le gel, avec $a_0 > b_0$:

$$P = F(b_0) + \frac{G(b_0)}{a_0} \quad (2.2)$$

où F et G , fonctions de b_0 , ne sont pas très bien établies.

3. Loi de largeur

Cette loi établit que la largeur des bandes augmente linéairement avec la position (Kai, Müller & Ross 1982). Soit W_n la largeur de la n -ième bande. Alors, pour n suffisamment grand, la loi de largeur stipule que

$$W_n = RX_n. \quad (2.3)$$

4. Loi temporelle

Cette loi, établie par Morse et Pierce (Morse & Pierce 1903), stipule que le temps de formation d'une bande est proportionnel au carré de sa position. Si T_n est le temps écoulé au moment de la formation de la n -ième bande, alors

$$T_n = QX_n^2 \quad (2.4)$$

pour n suffisamment grand. Cette loi témoigne du rôle clé de la diffusion dans le processus.

2.1.2 Modèles de prénucléation et postnucléation

Plusieurs modèles ont été développés afin d’expliquer la précipitation périodique de manière plus ou moins complète. On distingue deux types de modèles : de prénucléation et de postnucléation (Chacron & L’Heureux 1999).

Les modèles de prénucléation se basent sur la théorie de sursaturation développée par Ostwald en 1897 (Ostwald 1897). La rétroaction entre le mécanisme de cristallisation et la diffusion assurant l’apport de matériel est la source du processus d’auto-organisation. Dans ce modèle, établi par Dee (Dee 1986), le système est sursaturé en réactant et la précipitation est déclenchée lorsque cette sursaturation atteint un certain niveau. L’environnement étant loin de l’équilibre, il y a une forte précipitation dans la zone en question et la concentration de réactant en solution dans le gel chute. Par diffusion, il y aura alors un apport de matériel en provenance des alentours de la zone de précipitation, y causant un appauvrissement en réactant. Le niveau de sursaturation étant alors plus bas, la nucléation et la croissance de précipité cessent. Mais entretemps, le front de réaction s’est déplacé plus loin, où la concentration n’a pas été affectée, et le processus se répète pour former les bandes en succession.

Ce modèle a l’avantage de justifier les lois d’espacement et du temps, mais n’explique pas la présence d’anomalies, telles qu’un motif inverse, ni la formation de bandes dans un système homogène.

Dans les modèles de postnucléation, tel que celui développé par Feeney et al. (Feeney et al. 1983), la formation des bandes et la ségrégation du matériel se font après la nucléation, résultant des effets de la tension superficielle et de la croissance combinés avec la diffusion. Un phénomène pouvant expliquer cette approche est le mûrissement d’Ostwald, selon lequel la croissance de gros cristaux est thermodynamiquement avantagee par rapport à celle des petits. Les effets de taille causent une augmentation de la concentration à l’équilibre pour les petits cristaux. Il y a donc présence d’une instabilité de type Lifshitz–Slyozov due à la distribution non homogène des tailles. Les petits cristaux, plus solubles, auront tendance à disparaître, et l’interaction avec la diffusion pourra générer les motifs.

Ce type de modèle peut non seulement expliquer certaines anomalies, telles que la présence de doublets, mais représente aussi de manière plus complète l’évolution du système. En effet, même à partir d’un profil de concentration homogène, le système est instable et peut générer des bandes, ce qui semble être une représentation plus réaliste des observa-

tions.

Pour la suite de ce chapitre, nous détaillerons le modèle d'intérêt, soit dans le cas de cristallisation à partir d'un magma binaire. La thermodynamique s'y appliquant sera explicitée afin de pouvoir par la suite établir le mécanisme de cristallisation. Ce dernier se divise en trois étapes principales : la nucléation des cristaux, leur croissance (ou dissolution) et le mûrissement.

Nous définirons ensuite le modèle utilisé pour décrire le processus de diffusion-réaction et l'évolution des variables pertinentes dans le système. Il s'agit d'un modèle de prénucléation, puisque la nucléation joue un rôle déclencheur lorsqu'un seuil de sursaturation est atteint. On peut accessoirement y associer un processus de mûrissement.

2.2 Mécanisme de cristallisation

Considérons un magma entièrement liquide se refroidissant lentement. Lorsque sa température passera sous le point de solidification, qui dépend de la concentration du mélange et de la grosseur des cristaux, le magma sera en sous-refroidissement, mais la nucléation ne s'enclenchera pas avant qu'un certain seuil de température ne soit atteint, conformément aux modèles de prénucléation. De manière équivalente, on peut considérer qu'une composante du magma est en sursaturation plutôt qu'en sous-refroidissement. Plus le niveau de sursaturation est élevé, plus la cristallisation sera favorisée afin de ramener la concentration du système vers celle d'équilibre. La courbe de liquidus définit l'équilibre entre magma et cristaux. Elle décrit la coexistence de ces deux états dans l'espace concentration-température.

Cette section décrira la dynamique de cristallisation, étape par étape : d'abord, nous établirons le liquidus et la thermodynamique du système eutectique binaire. Ensuite, les taux de nucléation et de croissance seront établis en fonction de la température et de la concentration locale. Finalement, on décrira la manière dont la tension de surface cause le mûrissement d'Ostwald, lequel ne sera considéré que dans le chapitre y étant consacré. D'autres phénomènes peuvent intervenir lors du processus de cristallisation, par exemple l'aggrégation de cristaux et l'effet de facteurs extérieurs au système ou stochastiques, mais seront négligés ici.

Bien qu'on limitera la démarche à la cristallisation du magma, on pourra obtenir des

résultats similaires à ceux démontrés ici pour une précipitation à partir d'une solution ou de condensation à partir de vapeur.

2.2.1 Diagramme de phase d'un système eutectique binaire

Un mélange eutectique binaire est caractérisé par une température de solidification plus basse pour un mélange selon une proportion spécifique des deux composantes que celle de chaque espèce pure. Dans un diagramme de phase composition-température, le liquidus, soit la courbe séparant le liquide du domaine de coexistence liquide-solide à l'équilibre, atteint donc un minimum à la température du point eutectique. Un exemple d'un tel mélange est le système diopside-anorthite tel que décrit dans le chapitre précédent. Dans ce document, on supposera que le mélange consiste en deux minéraux A et B, qui seront par la suite référés avec l'indice i .

À l'équilibre, le potentiel chimique est le même dans les deux phases. Supposant qu'il s'agit d'un mélange idéal, on obtient

$$\begin{aligned}\mu_i &= \mu_i^* + kT_L \log x_i, \\ \Delta\mu_i &= \mu_i - \mu_i^* = kT_L \log(x_i)\end{aligned}$$

où $i = A$ ou B , $x_i = vC_i$ est la fraction molaire de chaque espèce dans le mélange, C_i étant le nombre de molécules de i par volume de magma et v est le volume d'une molécule à l'état liquide. Pour des raisons de simplification, on suppose ici que le volume est le même pour chaque espèce et dans chaque phase. k est la constante de Boltzmann, T_L est la température du liquidus et μ_i^* est le potentiel chimique de l'espèce pure.

On utilise l'enthalpie H pour trouver l'équation du liquidus selon la composition du magma. Introduisant l'énergie libre de Gibbs G , l'entropie S , la température T et la pression P , on a les relations générales suivantes :

$$\begin{aligned}H &= G + TS = G - T \left. \frac{\partial G}{\partial T} \right|_P, \\ \left. \frac{\partial(G/T)}{\partial T} \right|_P &= -\frac{H}{T^2}.\end{aligned}$$

Évalué à T_L et rapportant par molécule de substance i ,

$$\left. \frac{\partial(\mu_i/T_L)}{\partial T_L} \right|_p = -\frac{h_i}{T_L^2}$$

où h_i est l'enthalpie moléculaire. On suppose que Δh_i , soit l'enthalpie de fusion par molécule, est constante tout le long du liquidus. Intégrant, le résultat précédent donne

$$\int_{T_{Li0}}^{T_L} \frac{\Delta h_i}{T_L'^2} dT_L' = k \log x_i \Big|_1^{x_i},$$

$$k \log x_i = \Delta h_i \left(\frac{-1}{T_L} + \frac{1}{T_{Li0}} \right)$$

où T_{Li0} est le point de fusion du minéral pur.

L'équation du liquidus est donc :

$$T_L(C_i) = \frac{T_{Li0}}{1 - \frac{kT_{Li0}}{\Delta h_i} \log(vC_i)}. \quad (2.5)$$

Dans le cas où $\frac{kT_{Li0}}{\Delta h_i} = \frac{k}{\Delta s_{i0}} < 1$, on obtient une courbe telle que celle illustrée à la figure 2.1.

Il existe d'autres méthodes pour obtenir le liquidus pouvant mener à des courbes quelque peu différentes, tout dépendant de l'approximation choisie. Par exemple, Toramaru (Toramaru 1991) suppose un mélange idéal ayant une entropie de fusion Δs_i constante. Or, tel qu'on le verra à la section 2.4, un paramètre adimensionalisé considéré indépendant de la température, le nombre de Stefan, contient Δh_i . Il est donc consistant d'utiliser une enthalpie de fusion constante, plutôt qu'une entropie de fusion constante.

2.2.2 Nucléation

La première étape de la cristallisation consiste en la formation de noyaux solides dans le magma. On distingue deux types de nucléation : homogène et hétérogène. La nucléation hétérogène se produit lorsque la cristallisation est facilitée par le contact avec un corps solide présent dans la phase liquide, telles des impuretés ou une surface de contact. Ce processus gagne particulièrement en importance en bas sous-refroidissement, alors que la

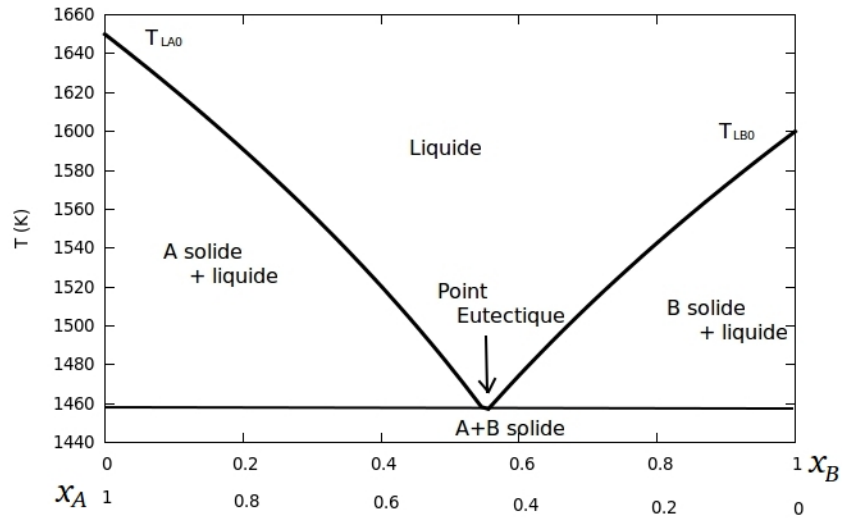


FIGURE 2.1 – Diagramme de phase d’un système eutectique binaire. Le liquidus correspond à la courbe qui délimite la température à partir de laquelle le mélange est totalement liquide. Le point eutectique indique la composition pour laquelle le mélange cristallise ou la roche se solidifie en bloc, de manière à ce que les phases des deux composants coexistent simultanément.

nucléation se ferait difficilement autrement. Le cristal se formant en contact avec l’impureté, la surface de contact entre le noyau et le liquide diminue, ce qui a pour résultat de diminuer la tension de surface effective et donc d’abaisser la barrière d’énergie libre ΔG^* qui sera décrite plus loin. En réalité, ce type de nucléation est de loin le plus commun puisqu’il est rare d’avoir un milieu initialement parfaitement homogène. Toutefois, l’effet de la présence d’hétérogénéités dépend des caractéristiques particulières du substrat en question, soit sa géométrie et ses propriétés chimiques, ce qui rend leur influence difficile à quantifier de manière précise.

On considérera donc le présent problème en utilisant la théorie classique de nucléation (ou théorie capillaire de nucléation, TCN) (Gibbs 1928, Becker & Döring 1935, Frenkel 1955). Elle est basée sur l’approximation de capillarité, selon laquelle les propriétés du matériel (p.ex. densité, tension superficielle...) ne sont pas affectées par le changement de phase. Aussi, on suppose que les noyaux formés sont sphériques. Il s’agit d’une approximation puisque la forme d’équilibre exacte d’un cristal dépend de sa structure cristallographique. La lacune principale de la TCN consiste à considérer une tension superficielle constante, alors que celle-ci varie notamment avec le rayon du noyau et n’est pas clairement définie microscopiquement, pour des noyaux de quelques molécules. Cette approximation

atteint sa limite de validité à de très hauts sous-refroidissements. De plus, il s'agit d'une théorie de nucléation homogène. Afin de considérer la possibilité de nucléation hétérogène, on peut utiliser une tension superficielle effective plus basse (Toramaru 1991).

La démarche menant au taux de nucléation provient du livre de Markov *Crystal Growth for Beginners* (Markov 1995). L'expression est développée pour une des composantes du magma se solidifiant, avec une concentration C . Les résultats pour des solutions ou la formation d'une bulle de vapeur, ou bien en 2 dimensions, peuvent être obtenus d'une manière analogue.

Considérons l'énergie libre de Gibbs du magma seul, contenant initialement n_m molécules de magma possédant un potentiel chimique moléculaire μ_m :

$$G_1 = n_m \mu_m.$$

Après la formation d'un cristal contenant n_s molécules, ce même système a une énergie libre de Gibbs :

$$G_2 = (n_m - n_s) \mu_m + n_s \mu_s + 4\pi r^2 \sigma$$

où μ_s est le potentiel chimique du cristal, r est son rayon et σ est la tension de surface. Le dernier terme témoigne du coût énergétique lié à la formation d'une interface. La différence d'énergie libre due à la formation de ce cristal est donc de

$$\Delta G = G_2 - G_1 = -n_s(\mu_m - \mu_s) + 4\pi r^2 \sigma.$$

Sachant que les cristaux sont sphériques, donc que $n_s v = 4\pi r^3/3$, v étant le volume d'une molécule, on peut expliciter la dépendance de ΔG selon r .

$$\Delta G(r) = -\frac{4\pi r^3}{3v} \Delta\mu + 4\pi r^2 \sigma \quad (2.6)$$

où $\Delta\mu = \mu_m - \mu_s$. Cette fonction est représentée à la figure 2.2, avec $\Delta\mu > 0$. On voit que dans ce cas, la formation de cristaux est thermodynamiquement favorisée, avec une barrière d'énergie à traverser. Le maximum de $\Delta G(r)$ indique donc le rayon critique r_c à partir duquel la cristallisation est possible, les noyaux plus petits se désintégrant spontanément. On peut donc trouver la hauteur de la barrière ΔG^* .

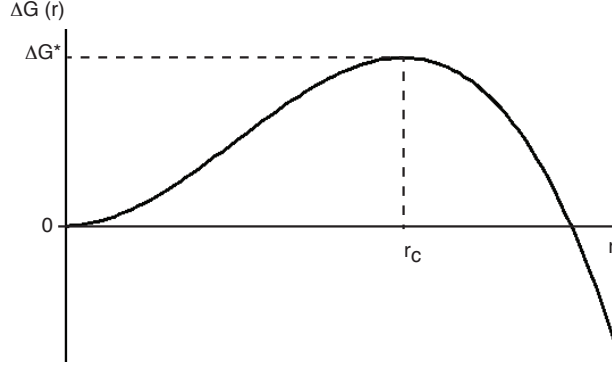


FIGURE 2.2 – Variation de l'énergie libre lors de la formation d'un cristal sphérique de rayon r , dans le cas où $\Delta\mu > 0$. Les cristaux de rayon plus grand que r_c seront donc stables, alors que ceux plus petits auront tendance à se redissoudre.

$$\Delta G^* = \frac{16\pi \sigma^3 v^2}{3 \Delta\mu^2} \quad (2.7)$$

$$r_c = \frac{2\sigma v}{\Delta\mu}. \quad (2.8)$$

Finalement, le niveau de sursaturation (ou sous-refroidissement) est donné par

$$\Delta\mu = kT \log \frac{C}{C_{\text{eq},\infty}} \quad (2.9)$$

où $C_{\text{eq},\infty}$ est la concentration en équilibre avec un cristal de taille infinie. On remarque que $\Delta G^* = \frac{1}{3}\sigma(4\pi r_c^2)$, soit le tiers de l'énergie de surface. Notons que l'on peut réécrire l'expression 2.6 en fonction du point critique, ou avec $n^* = 4\pi r_c^3/3v$:

$$\Delta G(r) = \Delta G^* \left[3 \left(\frac{r}{r_c} \right)^2 - 2 \left(\frac{r}{r_c} \right)^3 \right] \quad (2.10)$$

$$= \Delta G^* \left[3 \left(\frac{n_s}{n^*} \right)^{2/3} - 2 \left(\frac{n_s}{n^*} \right) \right] \quad (2.11)$$

Considérons maintenant la variation d'énergie libre de Gibbs dG lorsque n_m molécules de magma passent en phase solide ($dn_m = -dn_s$), à température et pression constantes :

$$dG = \mu_m dn_m + \mu_s dn_s + \sigma dA = -\Delta\mu_e dn_s + \sigma dA = 0$$

où dA est le changement de surface et $\Delta\mu_e = \mu_m - \mu_s$ est le changement de potentiel

chimique à l'équilibre. Ceci nous fournit l'expression de $\Delta\mu$:

$$\Delta\mu = \sigma \frac{dA}{dn_s} = \frac{2\sigma v}{r}.$$

Égalisant cette expression avec 2.9, on obtient la dépendance de la concentration d'équilibre entre les deux phases selon la taille du cristal :

$$\frac{C_{\text{eq}}(r)}{C_{\text{eq},\infty}} = \exp\left(\frac{2\sigma v}{kTr}\right). \quad (2.12)$$

Avec ces outils en main, nous pouvons maintenant déterminer le taux de nucléation. Pour ce faire, définissons ω_n^+ , le taux d'attachement des molécules à un amas de rayon r_n contenant préalablement n molécules, et ω_n^- le taux de détachement. On considère que le noyau est formé par une suite de réactions durant lesquelles les molécules s'attachent ou se détachent, une par une. De plus, on suppose que les grands amas contenant N atomes sont retirés du système et remplacés par les molécules individuelles, de manière à ce que la concentration et donc la sursaturation demeure constante. Cette approximation est justifiable si la diffusion se fait suffisamment rapidement autour de l'amas.

Dénotons par Z_n la concentration d'amas contenant n molécules. Un tel amas peut être créé à partir d'un amas de grosseur $n + 1$ perdant une molécule ou d'un amas de grosseur $n - 1$ en gagnant une, et peut lui-même perdre une molécule :

$$\frac{dZ_n}{dt} = \omega_{n-1}^+ Z_{n-1} - \omega_n^- Z_n - \omega_n^+ Z_n + \omega_{n+1}^- Z_{n+1}.$$

On définit le flux d'amas passant de $n - 1$ molécules à n molécules :

$$J_n = \omega_{n-1}^+ Z_{n-1} - \omega_n^- Z_n.$$

À l'équilibre, on a

$$J_n = J_{n+1} \equiv J_0,$$

ce qui nous fournit le système d'équations suivant, se rappelant que $Z_N = 0$:

$$\begin{aligned}
J_0 &= \omega_1^+ Z_1 - \omega_2^- Z_2 \\
J_0 &= \omega_2^+ Z_2 - \omega_3^- Z_3 \\
&\vdots \\
J_0 &= \omega_{N-1}^+ Z_{N-1}.
\end{aligned}$$

Après quelques manipulations algébriques, on peut réorganiser les termes pour obtenir l'expression du taux de nucléation à l'équilibre :

$$J_0 = \frac{Z_1}{\sum_{n=1}^{N-1} \left(\frac{1}{\omega_n^+} \frac{\omega_2^- \dots \omega_n^-}{\omega_1^+ \dots \omega_{n-1}^+} \right)}. \quad (2.13)$$

On cherche maintenant à obtenir une expression de la somme au dénominateur. On remarque que $\omega_{n-1}^+ \propto C$, c'est-à-dire que la probabilité d'ajouter une molécule à un amas est proportionnelle à la concentration de la solution, alors que $\omega_n^- \propto C_n$, où C_n est la concentration d'équilibre pour un amas de n molécules, avec le même coefficient. Cette dernière relation s'ensuit du fait que le cristal est plus soluble, donc que les molécules quittent plus facilement la surface, si la concentration d'équilibre est plus élevée. Donc, avec l'équation 2.12,

$$\begin{aligned}
\frac{\omega_n^-}{\omega_{n-1}^+} &= \frac{C_n}{C} \\
&= \exp \left(\frac{2\sigma v}{kT r_n} \right) \left[\exp \left(\frac{2\sigma v}{kT r_c} \right) \right]^{-1} \\
&= \exp \left[\frac{2\sigma v}{kT} \left(\frac{1}{r_n} - \frac{1}{r_c} \right) \right] \\
&= \exp \left[\frac{2\sigma}{kT} \left(\frac{4\pi v^2}{3} \right)^{1/3} \left(\frac{1}{n^{1/3}} - \frac{1}{n^{*1/3}} \right) \right],
\end{aligned}$$

d'où

$$\frac{\omega_2^- \dots \omega_n^-}{\omega_1^+ \dots \omega_{n-1}^+} = \exp \left[\frac{2\sigma}{kT} \left(\frac{4\pi v^2}{3} \right)^{1/3} \sum_1^n \left(\frac{1}{n^{1/3}} - \frac{1}{n^{*1/3}} \right) \right]$$

Remplaçant la somme par une intégrale, on obtient

$$\frac{\omega_2^- \dots \omega_n^-}{\omega_1^+ \dots \omega_{n-1}^+} = \exp \left[\frac{\sigma}{kT} \left(\frac{4\pi v^2 n^{*2}}{3} \right)^{1/3} \left(3 \left(\frac{n}{n^*} \right)^{2/3} - 2 \frac{n}{n^*} \right) \right].$$

Comparant avec 2.11

$$\frac{\omega_2^- \dots \omega_n^-}{\omega_1^+ \dots \omega_{n-1}^+} = \exp \left(\frac{\Delta G(n)}{kT} \right).$$

Pour évaluer la somme au dénominateur de 2.13, on développe $G(n)$ en série de Taylor autour de $n = n^*$ pour obtenir une gaussienne et intégrer facilement :

$$\begin{aligned} \sum_{n=1}^{N-1} \left(\frac{1}{\omega_n^+ \omega_1^+ \dots \omega_{n-1}^+} \right) &\approx \int_1^N \frac{1}{\omega_n^+} \exp \left\{ \frac{\Delta G^*}{kT} \left[3 \left(\frac{n}{n^*} \right)^{2/3} - 2 \frac{n}{n^*} \right] \right\} dn \\ &\approx \int_1^N \frac{1}{\omega_n^+} \exp \left\{ \frac{\Delta G^*}{kT} \left[1 - \frac{1}{3n^{*2}} (n - n^*)^2 \right] \right\} dn. \end{aligned}$$

$G(n)$ étant très étroit, on peut se permettre d'étendre les bornes de l'intégrale vers ∞ et $-\infty$. De plus, on pose que $\omega_n^+ \equiv \omega^*$ est une constante, pour obtenir

$$J_0 = Z_1 \omega^* \exp \left(-\frac{\Delta G^*}{kT} \right) \underbrace{\left(\frac{\Delta G^*}{3\pi kT n^{*2}} \right)^{1/2}}_{\equiv \Gamma}.$$

Z_1 étant la concentration de particules seules, il s'agit simplement de la concentration C . Γ est le facteur de Zeldovitch. Ce facteur, qui était absent lors des premières formulations de la TCN, est une mesure du relief au sommet de la courbe afin de tenir compte des fluctuations pouvant faire dissoudre un noyau ayant pourtant un rayon plus grand que le rayon critique dans la zone instable.

La constante ω^* , quand à elle, considère la fréquence de collision entre les molécules et le noyau, proportionnelle à la concentration, au libre parcours moyen λ et à la surface du noyau, pondéré par la barrière d'énergie d'activation ΔU due au transport visqueux.

$$\omega^* = 4\pi r_c^2 C \lambda \frac{kT}{h} \exp \left(\frac{-\Delta U}{kT} \right)$$

où h est la constante de Planck et $\frac{kT}{h}$ un facteur de fréquence.

Mettant le tout ensemble, et considérant les caractéristiques particulières de chaque

minéral, on obtient :

$$J_i = 2 \frac{\lambda v}{h} C_i^2 \sqrt{kT \sigma_i} \exp \left(\frac{-\Delta U_i}{kT} \right) \exp \left(\frac{-4\pi \sigma_i r_{ci}^2}{3kT} \right). \quad (2.14)$$

L'argument de l'exponentielle est donc proportionnel à $r_{ci}^2 \sim 1/\Delta\mu_i^2$. Pour un processus de solidification à pression constante,

$$\Delta\mu = \frac{\Delta h_i}{T_{Li}} (T_{Li} - T) \quad (2.15)$$

où Δh_i est l'enthalpie de fusion par molécule et T_{Li} est le liquidus.

2.2.3 Taux de croissance

Une fois le noyau créé, de nouvelles molécules présentes dans son environnement peuvent s'y attacher pour faire grossir le cristal. Pour ce faire, les molécules dans un magma sous-refroidi doivent d'abord diffuser jusqu'à la surface du solide, s'y adsorber, puis diffuser à la surface pour finalement trouver un site propice à l'attachement. Ce processus dépend grandement de la texture de la surface. Une surface rugueuse présente de nombreux sites d'attachement, par exemple la bordure de couches atomiques ou des décrochements, où un coin est formé de manière à présenter un grand potentiel de liaison avec une molécule s'y insérant (voir figure 2.3). La surface n'est lisse que dans des cas très particuliers ; en règle générale, l'énergie thermique du cristal assure un certain désordre et la configuration cristalline présente une surface irrégulière.

Croissance normale

Considérons d'abord la croissance sur une surface rugueuse dans un magma grandement sursaturé. Le mécanisme est alors limité par le rythme d'attachement des molécules, la diffusion étant suffisamment rapide pour fournir le matériel. La croissance se fait en direction normale, d'où le nom. Les molécules s'ajoutent à la surface dès qu'elles s'approchent d'un site d'attachement favorable et parviennent à franchir la barrière d'énergie nécessaire à la transition de phase.

Tel que vu dans la section précédente, une molécule solide intégrée dans le cristal est énergiquement favorisée par rapport à une molécule liquide dans un magma sous-refroidi : l'enthalpie de transition associée est Δh . Toutefois, pour se solidifier, la molécule doit traverser une barrière énergétique de grandeur ΔU . Celle-ci est due au transport visqueux se

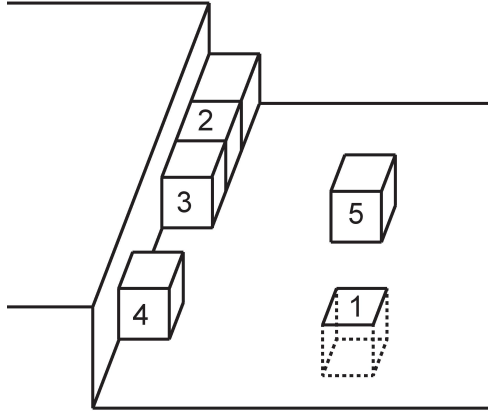


FIGURE 2.3 – Sites occupés par une molécule à la surface d'un cristal présentant une marche. 1. Molécule imbriquée à la surface. 2. Molécule imbriquée à la bordure de la marche. 3. Molécule attachée à un décrochement. 4. Molécule attachée à la bordure de la marche. 5. Molécule adsorbée à la surface du cristal. L'énergie de liaison varie pour chaque position, offrant un site plus ou moins propice à l'attachement. Le décrochement (3) est particulièrement important puisque la molécule à ce site possède autant de surface en contact avec le solide qu'avec le liquide. Figure inspirée de Markov (1995).

faisant à la surface pour trouver un emplacement approprié dans le réseau cristallin. Dans le cas d'une solution, cette barrière est plutôt associée à l'énergie de désolvation et, pour une vapeur, à la réaction chimique causant la déposition. Le profil d'énergie du changement de phase est représenté à la figure 2.4.

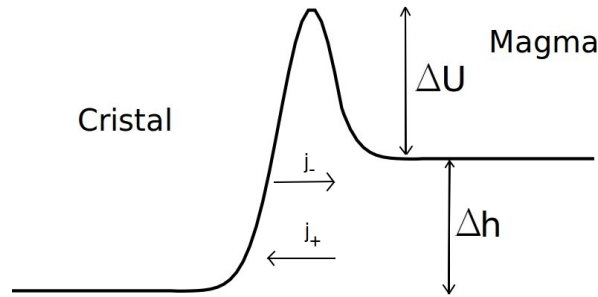


FIGURE 2.4 – Schéma représentant la barrière d'énergie que traverse une molécule dans le magma s'incorporant au cristal, l'état d'énergie le moins élevé correspondant à la phase cristalline et celui plus élevé correspondant à la phase liquide.

La taux de croissance normale peut être déterminé par le taux d'attachement d'une molécule du magma au cristal duquel on soustrait le taux de détachement. Pour ce faire, suivons encore les pas de Markov (1995). Considérons les courants de molécules arrivant et quittant la surface du cristal, j_+ et j_- . Ces courants sont proportionnels à des constantes

k_+ et k_- , respectivement, et pondérés par un facteur de Boltzmann selon les énergies représentées à la figure 2.4. On peut écrire :

$$\begin{aligned} j_+ &= k_+ \exp\left(-\frac{\Delta U}{kT}\right), \\ j_- &= k_- \exp\left(-\frac{(\Delta U + \Delta h)}{kT}\right), \\ V &= a \left(\frac{a}{\xi}\right)^2 (j_+ - j_-) \end{aligned}$$

où a est la dimension de la molécule et ξ est la distance entre les décrochements. Le taux de croissance V (m/s) est donc donné par la probabilité $\left(\frac{a}{\xi}\right)^2$ qu'une molécule arrive sur un site d'attachement convenable, ce qui fournit une mesure de la rugosité, avec le courant net de molécules arrivant à la surface.

Remarquons que la croissance est nulle lorsque la température est la température du liquidus, i.e. $V(T_L) = 0$, donc quand le nombre des molécules quittant la surface est compensé par le nombre y arrivant :

$$\begin{aligned} j_+ &= j_-, \\ \frac{k_-}{k_+} &= \frac{\exp\left(\frac{(\Delta U + \Delta h)}{kT_L}\right)}{\exp\left(\frac{\Delta U}{kT_L}\right)}. \\ &= \exp\left(\frac{\Delta h_i}{kT_L}\right). \end{aligned}$$

Cette relation est utile pour simplifier l'expression précédente. Mettant le tout ensemble, après quelques manipulations et définissant le sous-refroidissement $\Delta T_i = T_{Li} - T$, on obtient pour chaque minéral i

$$V_i = a \left(\frac{a}{\xi_i}\right)^2 k_{+i} \exp(-\Delta U_i/kT) \left[1 - \exp\left(-\frac{\Delta h_i}{kT} \frac{\Delta T_i}{T_{Li}}\right)\right].$$

Le coefficient k_{+i} représente un terme de fréquence et peut dépendre de la température. Ce terme, ainsi que la distance moyenne entre les décrochements, ne sont pas très bien définis. Pour des raisons de simplicité, nous traiterons le coefficient cinétique β_i , défini par

$$\beta_i = a \nu_i \left(\frac{a}{\xi_i}\right)^2 k_{+i}$$

comme un paramètre constant. On a alors

$$V_i = \beta_i \exp(-\Delta U_i/kT) \left[1 - \exp\left(-\frac{\Delta h_i}{kT} \frac{\Delta T_i}{T_{Li}}\right) \right]. \quad (2.16)$$

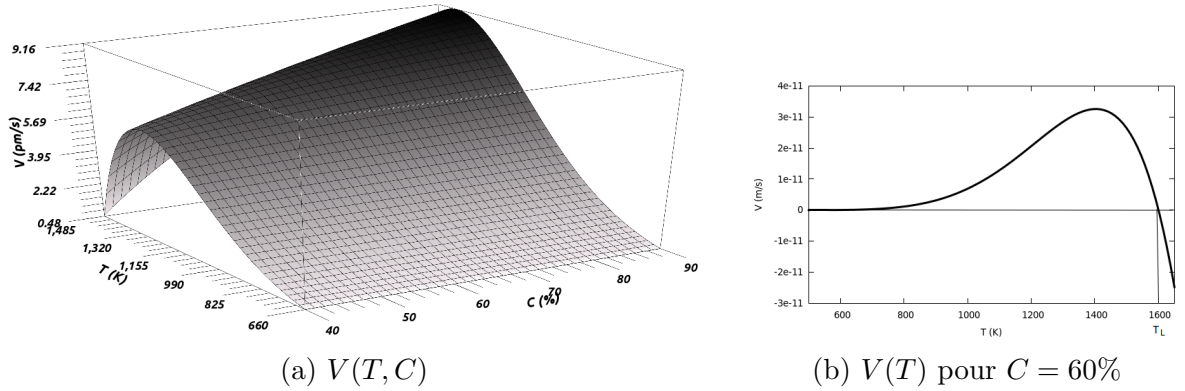


FIGURE 2.5 – Dépendance du taux de croissance sur les température et concentration, pour $T_{Li} = 1600$ K et $\beta = 1 \times 10^{-8}$ m/s. On constate que, pour C constant, V atteint un maximum puisque, à des températures approchant T_{Li} , le sous-refroidissement n'est pas suffisant et, pour des températures plus basses, la barrière d'énergie due au transport visqueux ne permet pas à suffisamment de molécules d'accéder au cristal. À des températures plus hautes que T_{Li} , la vitesse de croissance devient négative et les cristaux se dissolvent. À T constante, V augmente constamment avec C , suivant le niveau de sursaturation.

On remarque que pour des petits sous-refroidissements, le taux de croissance devient approximativement proportionnel à ΔT_i . Il s'agit d'un comportement unique au mécanisme de croissance normale, témoignant du comportement similaire à la surface d'un liquide dû à l'indépendance du processus d'attachement de chaque molécule. De plus, si la surface ne présente pas de décrochement, donc si $\xi_i \rightarrow \infty$, le taux de croissance devient nul : la croissance normale ne se fait que sur une surface suffisamment rugueuse.

Une dépendance du taux de croissance sur la courbure du cristal a été développée (Markov 1995). L'expression de V_i trouvée plus haut devient pour une surface plane :

$$V_i(r) = V_i \left(1 - \frac{r_c}{r}\right).$$

Cette équation présente toutefois des anomalies, notamment un cristal de rayon critique ne croît pas. On négligera donc la dépendance de la courbure des noyaux dans ce travail.

Dans ce document, on utilisera l'expression 2.16 pour le taux de croissance. On s'attend à retrouver dans un système tel que celui qui nous intéresse des cristaux présentant des rugosités ainsi qu'une haute sursaturation. Cette expression permet d'assurer une bonne approximation dans ces conditions.

Dissolution

Un changement tel qu'une augmentation de la température ou une chute de la concentration pourrait causer la dissolution des cristaux en raison du système qui se retrouve brusquement en sous-saturation. Bien que pour les magmas, la dissolution soit généralement limitée par la diffusion, dû au transport visqueux plus lent (Katsev 2002), pour des petites sous-saturations, elle se fait directement à l'inverse de la croissance. Dans ce cas, le potentiel chimique du magma serait alors plus petit que celui du solide, abaissant le sous-refroidissement sous zéro et causant plus de molécules à quitter la surface qu'à s'y adhérer. En conséquence, l'équation 2.16 demeure valide et aura simplement une valeur négative, causant une diminution du rayon du cristal se dissolvant.

Croissance proche de l'équilibre

Bien que nous considérions le cas général d'une croissance normale 2.16, il est utile de s'intéresser au cas d'un système proche de l'équilibre. Tel que discuté plus haut, le taux de croissance est alors proportionnel à la sursaturation. Considérons une solution sursaturée précipitant pour former des cristaux sphériques. On peut alors étudier le profil de concentration de la solution, subissant la diffusion, afin d'obtenir une expression de la sursaturation selon les paramètres du système, qui nous permettra de déterminer le taux de croissance. Pour faciliter la discussion du présent paragraphe, nous considérerons une seule composante $i = A$. L'indice i sera omis.

Le profil de concentration évolue selon la loi de Fick autour du cristal de rayon R :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right) \quad \text{pour } r \geq R.$$

Dans un tel système, l'échelle temporelle est donnée par $T \sim R/\dot{R}$. La condition $V = \dot{R} \ll D/R$ traduit alors par une adaptation rapide du système et $\frac{\dot{R}R}{D} \ll 1$ impose

que le côté gauche de l'équation précédente soit négligeable. L'hypothèse d'un état quasi-stationnaire s'applique et on peut alors poser que $\frac{\partial C}{\partial t} \approx 0$, ce qui impose que le terme entre parenthèse soit constant. Définissant nos constantes d'intégration A et B , on obtient :

$$r^2 \frac{\partial C}{\partial r} = A,$$

$$C(r) = -\frac{A}{r} + B.$$

Définissons la concentration loin du cristallite $C(r \rightarrow \infty) = C_\infty$, qui nous permet de déterminer $B \equiv C_\infty$. Pour ce qui est de la condition limite à l'interface du cristal, la continuité du flux de matière à travers l'interface impose

$$\rho_c V = \left(D \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_R + V C_0 \right) \mu$$

où ρ_c est la densité de soluté dans le cristal, μ est la masse moléculaire dans le fluide et C_0 est la concentration à l'interface. Avec $\frac{\partial C}{\partial r} = \frac{A}{r^2}$, on peut trouver A :

$$A \equiv \frac{R(\rho_c/\mu - C_\infty)}{\frac{D}{VR} - 1}.$$

Regroupant le tout ensemble, on a alors

$$C(r) = \frac{R}{r} \frac{(\rho_c/\mu - C_\infty)}{1 - \frac{D}{VR}} + C_\infty.$$

Le taux de croissance dû à la sursaturation de la solution sera de forme

$$V = \beta(C_0 - C_{\text{eq}})$$

où β est un coefficient cinétique et C_{eq} est la concentration à l'équilibre du système. Utilisant $C_0 = C(R) = C_\infty + \frac{(\rho_c/\mu - C_\infty)}{1 - \frac{D}{VR}}$, après quelques manipulations, on peut isoler pour V :

$$V = \frac{\beta}{2} \left[\frac{D}{R\beta} + \frac{\rho_c}{\mu} - C_{\text{eq}} - \sqrt{\left(\frac{D}{R\beta} + \frac{\rho_c}{\mu} - C_{\text{eq}} \right)^2 - \frac{4D}{\beta R} (C_\infty - C_{\text{eq}})} \right].$$

En résolvant l'équation quadratique, on a pris le signe $(-)$ de manière à ce que la réponse s'approxime pour retrouver la forme correcte $V \approx \beta(C_\infty - C_{\text{eq}})$ quand la croissance est

contrôlée par la cinétique d'attachement ($D \gg R\beta(\frac{\rho_c}{\mu} - C_{eq})$). On remarque que l'on peut considérablement simplifier le problème dans les deux cas extrêmes où la diffusion se fait très rapidement par rapport à la réaction, ou bien le contraire. Si l'on considère que la diffusion d'une molécule pour atteindre le noyau se fait sur une échelle de temps beaucoup plus courte que le processus d'attachement à la surface, alors le taux de réaction est entièrement déterminé par la cinétique d'attachement, et vice-versa. Il est toutefois important de noter que le taux de croissance est rarement entièrement contrôlé par l'un ou l'autre des processus; une combinaison des deux mécanismes est certainement plus réaliste. De plus, la vitesse de la réaction étant affectée par les conditions du système, telle la température, qui peuvent elles-mêmes évoluer, le processus limitant le taux n'est pas nécessairement le même tout au long de la cristallisation.

Croissance contrôlée par la réaction

Dans le cas où la réaction se fait significativement plus lentement que la diffusion, ce qui peut être dû à une très faible sursaturation, cette étape devient le processus limitant. On suppose que le matériel est disponible en quantité suffisante. On peut alors approximer $\frac{D}{\beta R|\frac{\rho_c}{\mu} - C_{eq}} \gg 1$. Au premier ordre, on obtient $C(r) = C_0 = C_\infty$, c'est-à-dire un profil de concentration constant jusqu'à l'interface du cristal. Le taux de croissance est alors

$$V = \beta(C_\infty - C_{eq}). \quad (2.17)$$

Pour une meilleure précision, on obtient au second ordre

$$V = \beta(C_\infty - C_{eq}) \left(1 - (\rho_c/\mu - C_{eq}) \frac{R\beta}{D} \right). \quad (2.18)$$

Croissance contrôlée par la diffusion

Si le système est plus fortement sursaturé, ou si la diffusion se fait plus lentement, les particules s'attachent rapidement à l'interface et la diffusion devient le facteur limitant en restreignant l'apport de matériel. Une telle situation est aussi favorisée dans le cas de surfaces rugueuses, où de nombreux sites propices à l'attachement facilitent l'adsorption. Ce mécanisme prend donc de l'importance avec la température en favorisant les processus à l'interface plus rapidement que la diffusion.

Dans ce cas, la diffusion se fait lentement par rapport à l'échelle de temps de la réaction

et on peut utiliser l'approximation $\frac{\beta R |\frac{\rho_c}{\mu} - C_{eq}|}{D} \gg 1$. Au premier ordre, on obtient

$$C_0 = C_{eq} + \frac{D}{\beta R} \frac{(C_{\infty} - C_{eq})}{(\rho_c/\mu - C_{eq})} \quad (2.19)$$

$$V = \frac{D}{R(\rho_c/\mu - C_{eq})} (C_{\infty} - C_{eq}) \quad (2.20)$$

Se rappelant que l'hypothèse de quasi état stationnaire requiert $\frac{VR}{D} \ll 1$, on doit imposer $C_{\infty} \ll \frac{\rho_c}{\mu}$.

La croissance contrôlée par la diffusion a été associée dans certains cas à la formation de dendrites, une texture cristalline particulière caractérisée par une croissance directionnelle. Il en résulte un motif ramifié, à la manière d'un arbre, manifestant une géométrie fractale.

Autres mécanismes de croissance

Lorsque la croissance se produit à partir d'une surface lisse, l'absence de décrochements empêche la croissance normale, imposant un mode différent. Puisqu'il n'y a pas de sites d'attachement, pour qu'il y ait croissance, il doit y avoir un défaut présentant une bordure. Il est alors énergiquement favorable pour les molécules de s'attacher au coin formé par la paroi et la surface, permettant une croissance latérale. Nous n'approfondirons pas ces mécanismes, mais il est intéressant de noter leur existence.

Croissance en couches par nucléation 2D en surface

Ce mécanisme, dont Gibbs a été le premier à mentionner le principe (Gibbs 1876), nécessite la formation de noyaux 2D sur la surface lisse lorsque la sursaturation est suffisamment élevée. La croissance se fait alors latéralement, les molécules s'attachant aux parois du noyau, de manière à former une nouvelle couche. La croissance peut alors être limitée par deux facteurs : la nucléation des noyaux à la surface, facilitée par les impuretés, ou bien la vitesse de propagation de la couche. Lorsque la croissance se fait plus rapidement que la nucléation, de nouveaux noyaux se créent successivement sur la surface en train de croître, ce qui mène à la formation de surfaces pyramidales.

Croissance en spirale

Ce type de croissance, décrit par la théorie Burton-Cabrera-Frank (Burton, Cabrera & Frank 1951), se produit sur une surface lisse présentant des dislocations en vis et s'effectue à faibles sursaturations. La dislocation offre un site d'attachement et la croissance se fait

latéralement, créant une nouvelle bordure perpendiculaire à la première. Lorsque cette bordure dépasse la longueur critique, celle-ci se met à croître aussi, créant une nouvelle bordure et ainsi de suite. Il se forme alors une pyramide en spirale.

2.2.4 Mûrissement d'Ostwald

Une troisième étape peut s'ajouter au processus de cristallisation. Dans les modèles de postnucléation, on ne considère plus la tension de surface comme nulle, ce qui crée une rétroaction entre la concentration d'équilibre, qui dépend alors de la taille des noyaux, la diffusion et le taux de croissance. C'est cette rétroaction qui peut causer l'apparition des bandes.

Ce phénomène de mûrissement a d'abord été observé par Ostwald en 1896 (Ostwald 1897), d'où son nom. Lifshitz et Slyozov (1961) fournissent une première analyse du phénomène, déterminant le comportement asymptotique du système. Quoique critiqué par la suite, cet article jette les bases du traitement analytique du problème, repris par Feeney et al. (Feeney et al. 1983) qui établissent le modèle de croissance compétitive (MCC), un modèle mathématique simple du mûrissement d'Ostwald combiné avec le processus de croissance.

Tel que vu plus haut, les effets de la différence de potentiel chimique entre les phases liquide et solide augmentent lorsque le rayon diminue. En conséquence, la concentration à l'équilibre est plus grande lorsque le rayon des particules est plus petit. Les petites particules auront donc tendance à se dissoudre plus facilement et le matériel est transféré des petits cristaux aux plus gros par diffusion. En conséquence, un amas de cristaux un peu plus gros que la moyenne aura plus de facilité à croître, ce qui causera un gradient de concentration et entraînera une réduction du matériel aux alentours de l'amas, ce qui à son tour provoquera la dissolution des plus petits cristaux à cet endroit et ainsi de suite. Ainsi, même dans un système homogène, le mûrissement peut causer des bandes, dû aux fluctuations statistiques.

On utilisera ici la méthode développée dans Chacron et L'Heureux (1999), basée sur le MCC. Tel que vu à l'équation 2.12, la dépendance sur la taille des cristaux r_i de la concentration à l'équilibre est donnée par

$$C_{i,\text{eq}}(r_i) = C_\infty \exp\left(\frac{2v\sigma\psi(r_i)}{r_i kT}\right)$$

où $\psi(r)$ représente la dépendance du rayon sur la tension de surface et C_∞ est la concentration à l'équilibre pour un cristal de rayon infini (i.e. une surface plane), donnée par l'inverse du liquidus (équation 2.5) :

$$C_\infty = \frac{1}{v} \exp \left[\frac{\Delta h_i}{kT_{Li0}} \left(1 - \frac{T_{Li0}}{T_{Li}} \right) \right].$$

On peut alors mettre les deux dernières équations ensemble et les inverser afin de trouver l'équation du liquidus selon la concentration et le rayon des cristaux :

$$T_{Li}(C_i, r_i) = \frac{T_{Li0} \left(1 - \frac{2v\sigma_i\psi(r_i)}{\Delta h_i r_i} \right)}{1 - \frac{kT_{Li0}}{\Delta h_i} \log(vC_i)}. \quad (2.21)$$

Il est essentiel de tenir compte de $\psi(r)$ afin d'éviter l'inflation artificielle de la concentration à l'équilibre à des petits rayons ; de façon plus réaliste, la tension de surface diminue avec le rayon selon

$$\begin{aligned} \psi(r) &= \exp \left[- \int_0^{\delta/r} \frac{2(1+x+x^2/3)}{1+2x(1+x+x^2/3)} dx \right] \\ &\approx \frac{r^2 + \delta r}{r^2 + 3\delta r + \delta^2/q} \end{aligned} \quad (2.22)$$

où $q = 0.304359$ et δ caractérise l'épaisseur de la surface de Gibbs et est de l'ordre du rayon critique (Koenig 1950, Chacron & L'Heureux 1999). Le paramètre δ contrôle l'importance du mûrissement ; par exemple, si $\delta \rightarrow \infty$, alors $\psi \rightarrow 0$, $C_{eq}(r) = C_\infty \quad \forall r$, et l'équation 2.21 se réduit au liquidus 2.5.

Il a été suggéré que le mûrissement d'Ostwald joue un rôle majeur dans la formation de motifs et qu'il est nécessaire pour expliquer certaines caractéristiques observées dans les roches ignées. Notamment, le mécanisme de postnucléation favoriserait la formation de doublets, les bordures d'une bande se développant au profit de son centre (Boudreau 1995, Fee-ney et al. 1983, L'Heureux 2008).

Le chapitre 5 est consacré à l'étude de l'effet du mûrissement ; les résultats présentés jusqu'à ce point ne considèrent que le mécanisme de prénucléation.

2.3 Diffusion et réaction

Deux processus contrôlent l'évolution du système. D'une part, le magma cristallise, ce qui inclut la nucléation, croissance/dissolution et potentiellement le mûrissement. D'autre part, la concentration de chaque composante C_i , définie comme le nombre de molécules à l'état liquide dans le volume de magma, ainsi que la température T peuvent varier selon leur position par diffusion et conduction. Il est à noter que la matière ne diffuse que dans le magma, alors que la température diffuse autant dans les solides que dans les liquides. On néglige aussi le transport de matière et de chaleur par advection et convection. Cette section détaille la manière dont ces processus seront traités.

2.3.1 Technique des moments

La cristallisation du magma étant le résultat d'un processus aléatoire, on peut étudier le système et son évolution de manière simple et efficace en étudiant la distribution de taille de la population d'amas (DTA). Il s'agit d'une technique communément utilisée depuis plusieurs décennies, tant théoriquement qu'expérimentalement, pour des systèmes naturels ou dans l'industrie lorsqu'une détermination précise des caractéristiques du solide cristallisé est nécessaire.

On définit donc les trois premiers moments de la DTA afin d'étudier leur évolution temporelle. Cette approche, qui fournit une information complète et précise, simplifie grandement le calcul de l'état du système, puisque celui-ci est établi par un ensemble d'équations intégral-différentielles qui sera défini plus loin. Il s'agit de la technique utilisée notamment par Chacron et L'Heureux (1999) et Toramaru et Matsumoto (2001).

Tel qu'explicité plus loin, $\phi = \phi_A + \phi_B$ représente la fraction de volume solidifié par rapport au volume total. La DTA sera donnée par le taux de nucléation J_i pondéré par la porosité $1 - \phi$, soit le ratio volume de liquide/volume total, afin de reporter le calcul au volume total du système. On cherche donc à évaluer les moments de $(1 - \phi)J_i$ par rapport à la taille des cristaux donnée par leur rayon r .

$$\begin{aligned} \langle r^k \rangle_i &= \frac{\int_0^t r^k (1 - \phi) J_i dt'}{\int_0^t (1 - \phi) J_i dt'} \\ n_i &\equiv \int_0^t (1 - \phi) J_i dt' \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\rho_i}{n_i} &\equiv \langle r \rangle = \frac{\int_0^t r(1-\phi)J_i dt'}{\int_0^t (1-\phi)J_i dt'} \\
\frac{\Sigma_i}{n_i} &\equiv \langle r^2 \rangle = \frac{\int_0^t r^2(1-\phi)J_i dt'}{\int_0^t (1-\phi)J_i dt'} \\
\frac{\phi_i}{n_i} &\equiv \frac{4\pi}{3} \langle r^3 \rangle = \frac{4\pi}{3} \frac{\int_0^t r^3(1-\phi)J_i dt'}{\int_0^t (1-\phi)J_i dt'}
\end{aligned}$$

On intègre sur le temps t' qui représente le moment de la nucléation, à partir du moment où la cristallisation débute jusqu'à l'instant t . Physiquement, n_i représente le nombre d'amas par unité de volume total, $\langle r \rangle_i = \frac{\rho_i}{n_i}$ le rayon moyen, Σ_i est relié à la surface moyenne et ϕ_i , tel que mentionné plus haut, est la fraction de volume de solide qui est simplement le nombre d'amas par unité de volume total multiplié par le volume moyen d'un cristal. Tous ces moments sont fonction de la position et du temps et nous informent sur l'état du système. Un motif dans la distribution spatiale en grosseur des cristaux ou en composition de la roche sera représenté dans $\langle r \rangle_i$ et ϕ_i , respectivement.

2.3.2 Équations d'évolution

On s'intéresse donc à l'évolution de 11 variables, soit la température $T(x, t)$ et, pour A et B, la concentration $C_i(x, t)$ et les quatre valeurs définies dans la section précédente $n_i(x, t)$, $\rho_i(x, t)$, $\Sigma_i(x, t)$ et $\phi_i(x, t)$. Le modèle présenté dans ce document comprend une seule dimension spatiale, nous ne considérons donc que la direction x .

La température est affectée par la conduction, décrite par l'équation de Fourier, et par le dégagement de chaleur latente dû à la cristallisation. On obtient donc

$$\partial_t T = \underbrace{\kappa \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}}_{\text{transport}} + \underbrace{\frac{H_A}{\rho c_p} \partial_t \phi_A + \frac{H_B}{\rho c_p} \partial_t \phi_B}_{\text{réaction}} \quad (2.23)$$

où κ est la diffusivité thermique, H_i est la chaleur latente associée à la transition de i de l'état liquide à l'état solide par unité de volume, c_p est la chaleur spécifique et ρ est la densité.

Par simplicité, on suppose que les propriétés thermiques des composantes A et B sont identiques et ne dépendent pas de leur phase, d'où l'absence d'indice indiquant leur état.

La concentration est aussi affectée par deux composantes : la diffusion de la matière, déterminée par l'équation de la diffusion, et un terme de réaction dû au passage de la matière de l'état liquide à l'état solide. C_i représentant le nombre de molécules de i par unité de volume de magma, on reporte par volume total en multipliant par la porosité $1 - \phi$.

Le puits, quant à lui, consiste en volume de magma devenu cristal. Au départ, alors que le système est composé uniquement de magma, la concentration est donnée par C_{i0} . Le terme de réaction est donc déterminé à partir de la conservation de la matière :

$$(1 - \phi)C_i = C_{i0} - \phi_i/v,$$

$$\partial_t((1 - \phi)C_i)\Big|_{\text{rx}} = -\frac{1}{v}\partial_t\phi_i.$$

Le tout ensemble donne

$$\partial_t((1 - \phi)C_i) = \underbrace{\frac{\partial}{\partial x} \left[(1 - \phi)\hat{D}_i(\phi)\frac{\partial}{\partial x}C_i \right]}_{\text{transport}} \underbrace{-\frac{1}{v}\partial_t\phi_i}_{\text{réaction}}. \quad (2.24)$$

Le coefficient de diffusion $\hat{D}$ doit tenir compte de la tortuosité $f(\phi)$ (Boudreau 1997), facteur qui n'est pas considéré dans l'étude de Toramaru et Matsumoto (2012). Une molécule se déplaçant dans un milieu partiellement solidifié doit contourner les cristaux, ce qui résulte en une augmentation de son parcours par le facteur qu'on définit par la tortuosité. Ceci a pour effet que dans un magma avec un niveau de cristallisation avancé, la diffusion se fera beaucoup plus difficilement. De nombreuses lois empiriques ont été établies pour calculer ce facteur ; on utilisera ici la loi d'Archie $f(\phi) = (1 - \phi)^{m-1}$, avec $m = 2.14$:

$$f(\phi) = (1 - \phi)^{1.14}.$$

Le coefficient de diffusion $\hat{D}$ est alors donné par

$$\hat{D}_i = D_{00i}f(\phi) \exp\left(-\frac{\Delta U_i}{kT}\right).$$

D_{00i} est le préfacteur du coefficient de diffusion. Le facteur de Boltzmann tient compte de la barrière d'énergie due au transport visqueux de manière à ce que, à basse température, la diffusion se fasse évidemment plus difficilement.

Détaillons les taux de changement des différents moments définis plus haut. La variation

de la fraction de solide de chaque composante est donnée par

$$\begin{aligned}\partial_t \phi_i &= \frac{4\pi}{3} \frac{\partial}{\partial t} \int_0^t (1 - \phi(x, t')) J_i(x, t') r^3(x, t, t') \, dt', \\ &= \frac{4\pi}{3} J_i r_{ci}^3 (1 - \phi) + 4\pi \int_0^t (1 - \phi) J_i r^2 V_i \, dt'\end{aligned}$$

où l'on a appliqué la règle de Leibniz. On se rappelle aussi que $\frac{\partial r_i}{\partial t} = V_i$ et $r(x, t, t) = r_c$, le rayon moyen critique (voir équation 2.8). Physiquement, le premier terme considère l'apparition de nouveaux cristaux de rayon critique et le deuxième calcule l'addition de solide due à la croissance des cristaux. On approxime $V_i(r, t) \approx V_i(< r >_i)$, ce qui nous permet de sortir V de l'intégrale sur le temps. Avec les moments définis plus haut, on peut simplifier le problème, qui s'écrit alors

$$\partial_t \phi_i = (1 - \phi) \frac{4\pi}{3} J_i r_{ci}^3 + 4\pi \Sigma_i V_i. \quad (2.25)$$

De la même manière, on obtient l'évolution dans le temps des autres moments :

$$\partial_t n_i = J_i (1 - \phi), \quad (2.26)$$

$$\begin{aligned}\partial_t \Sigma_i &= (1 - \phi) J_i r_{ci}^2 + 2 \int_0^t (1 - \phi) J_i r V_i \, dt', \\ \partial_t \Sigma_i &= (1 - \phi) J_i r_{ci}^2 + 2 V_i \rho_i,\end{aligned} \quad (2.27)$$

$$\begin{aligned}\partial_t \rho_i &= (1 - \phi) J_i r_{ci} + \int_0^t (1 - \phi) J_i V_i \, dt', \\ \partial_t \rho_i &= (1 - \phi) J_i r_{ci} + V_i n_i.\end{aligned} \quad (2.28)$$

Les équations 2.23 à 2.28 forment donc un ensemble d'équations différentielles partielles non linéaires couplées qu'on résoudra numériquement.

2.4 Adimensionalisation

Afin de simplifier le problème et d'en définir les paramètres critiques, on cherche à adimensionaliser le problème. On définit les variables sans dimension :

$$\begin{aligned}x' &= x/L, \\t' &= t/\tau, \\ \theta &= T/T_{LA0}, \\C'_i &= C_i v, \\r' &= r/r^*.\end{aligned}$$

L représente donc l'échelle de distance, τ l'échelle de temps, T_{LA0} l'échelle de température et r^* l'échelle de grandeur microscopique. Les quantités L , τ et r^* seront définies plus loin.

D'abord, nous pouvons redéfinir le coefficient de diffusion afin de séparer le terme constant de sa dépendance en porosité et température :

$$\begin{aligned}\hat{D}_i &= D_{00i} f(\phi) \exp\left(-\frac{\Delta U_i}{kT_{LA0}\theta}\right), \\ &= \underbrace{D_{0i} \exp\left(-\frac{\Delta U_i}{kT_{LA0}}\right)}_{\equiv D_{00i}} \underbrace{f(\phi) \exp\left(\frac{\Delta U_i}{kT_{LA0}}\left(1 - \frac{1}{\theta}\right)\right)}_{\equiv d_i}.\end{aligned}$$

En remplaçant ces variables dans les équations 2.23 et 2.24, on obtient

$$\begin{aligned}\frac{\partial \theta}{\partial t'} &= \frac{\kappa \tau}{L^2} \frac{\partial^2 \theta}{\partial x'^2} + \frac{H_A}{\rho c_p T_{LA0}} \partial_{t'} \phi_A + \frac{H_B}{\rho c_p T_{LA0}} \partial_{t'} \phi_B, \\ \frac{\partial}{\partial t'} [(1 - \phi) C'_i] &= \frac{\tau}{L^2} D_{0i} \frac{\partial}{\partial x'} \left[(1 - \phi) d_i \frac{\partial C'_i}{\partial x'} \right] - \partial_{t'} \phi_i.\end{aligned}$$

En imposant $\frac{D_{0A}\tau}{L^2} = 1$, de manière à ce que L soit la distance sur laquelle une molécule diffuse dans le temps caractéristique, on simplifie le problème de manière à ce qu'il ne reste que deux paramètres sans dimensions, les nombres de Stefan et de Lewis :

$$\begin{aligned}St_i &\equiv \frac{H_i}{\rho c_p T_{LA0}}, \\ Le &\equiv \frac{\kappa}{D_{0A}}.\end{aligned}$$

On peut alors écrire la forme finale, avec $D_i = D_{0i}/D_{0A}$:

$$\begin{aligned}\partial_{t'}\theta &= Le\partial_{x'}^2\theta + St_A\partial_{t'}\phi_A + St_B\partial_{t'}\phi_B, \\ \partial_{t'}[(1-\phi)C'_i] &= D_i\partial_{x'}[(1-\phi)d_i\partial_{x'}C'_i] - \partial_{t'}\phi_i.\end{aligned}$$

Cette dernière équation peut être réécrite :

$$\partial_{t'}C'_i = \frac{D_i}{1-\phi}\partial_{x'}[(1-\phi)d_i\partial_{x'}C'_i] + C'_i\frac{\partial_{t'}\phi}{1-\phi} - \frac{\partial_{t'}\phi_i}{1-\phi}.$$

r^* est donné par la grandeur du rayon critique typique

$$r^* = \frac{2\sigma_A v}{kT_{LA0}}$$

et le temps caractéristique τ est donné par le temps de croissance du rayon caractéristique, considérant le taux de croissance caractéristique V_0 défini comme étant le maximum de $V_A(\theta)$ (voir équation 2.16) :

$$\begin{aligned}\tau &= \frac{r^*}{V_0} = \frac{2\sigma v}{kT_{LA0}V_0}, \\ V_0 &= \beta_A \exp(-\epsilon_A) \left(\frac{\delta_A}{\epsilon_A + \delta_A} \right) \left(\frac{\epsilon_A}{\epsilon_A + \delta_A} \right)^{\epsilon_A/\delta_A}\end{aligned}$$

où nous avons simplifié l'écriture en définissant $\epsilon_i = \frac{\Delta U_i}{kT_{LA0}}$ et $\delta_i = \frac{\Delta h_i}{kT_{LA0}}$. Se rappelant que $L = \sqrt{D_{0A}\tau}$, on obtient alors

$$L = \sqrt{\frac{2D_{0A}\sigma v}{kT_{LA0}V_0}}.$$

Les moments adimensionalisés sont donnés par

$$\begin{aligned}\rho'_i &= \rho_i r^{*2}, \\ \Sigma'_i &= \Sigma_i r^*, \\ n'_i &= n_i r^{*3}, \\ \phi'_i &= \phi_i.\end{aligned}$$

Les liquidus 2.5 ou 2.21, le taux de nucléation 2.14 et le taux de croissance 2.16 de-

viennent alors

$$\begin{aligned}
\theta_{Li}(C'_i) &= T_{Li}/T_{LA0}, \\
&= \frac{T_{Li0}}{T_{LA0}} \frac{1}{1 - \frac{kT_{Li0}}{\Delta h_i} \log(C'_i)}, \\
\theta_{Li}(C'_i, < r >_i) &= \frac{T_{Li0}}{T_{LA0}} \frac{1 - \frac{n'_i \psi k T_{LA0} \Gamma_i}{\rho'_i \Delta h_i}}{1 - \frac{kT_{Li0}}{\Delta h_i} \log(C'_i)} \quad (\text{avec mûrissement}), \\
J'_i &= J_i \tau r^{*3}, \\
&= \alpha \sqrt{\theta \Gamma_i} C_i'^2 \exp \left[\epsilon_i \left(1 - \frac{1}{\theta} \right) \right] \exp \left[-\frac{\eta \Gamma_i}{\delta_i^2} \frac{\theta_{Li}^2}{\theta (\theta_{Li} - \theta)^2} \right] \\
V'_i &= V_i/V_0, \\
&= \frac{\beta_i}{\beta_A} \exp(\epsilon_A - \epsilon_i/\theta) \frac{(\epsilon_A + \delta_A)^{1+\epsilon_A/\delta_A}}{\delta_A \epsilon_A^{\epsilon_A/\delta_A}} \left[1 - \exp\left(-\frac{\delta_i(\theta_{Li} - \theta)}{\theta \theta_{Li}}\right) \right]
\end{aligned}$$

où on a utilisé $\alpha_i = \frac{32v^3\lambda}{hV_0} \exp(-\epsilon_i) \left(\frac{\sigma_A}{kT_{LA0}} \right)^{9/2} kT_{LA0}$, $\eta = \frac{16\pi}{3} \frac{\sigma_A^3 v^2}{(kT_{LA0})^3}$, $\theta_{Li} = T_{Li}/T_{LA0}$ et $\Gamma_i = \sigma_i/\sigma_A$. Considérant tout cela, les équations d'évolution 2.23 à 2.28 restent les mêmes en termes adimensionalisés. L'évolution du système est donc résumée par :

Transport et réaction

$$\partial_{t'} \theta = \underbrace{Le \partial_{x'}^2 \theta}_{\text{transport}} + \underbrace{St_A \partial_{t'} \phi_A + St_B \partial_{t'} \phi_B}_{\text{réaction}} \quad (2.29)$$

$$\partial_{t'} C'_i = \underbrace{\frac{D_i}{1-\phi} \partial_{x'} [(1-\phi) d_i \partial_{x'} C'_i]}_{\text{transport}} + \underbrace{C'_i \frac{\partial_{t'} \phi}{1-\phi} - \frac{\partial_{t'} \phi_i}{1-\phi}}_{\text{réaction}} \quad (2.30)$$

Réaction pure

$$\partial_{t'} \phi'_i = (1 - \phi') \frac{4\pi}{3} J'_i r_{ci}'^3 + 4\pi \Sigma'_i V'_i (\rho_i/n_i) \quad (2.31)$$

$$\partial_{t'} \rho'_i = (1 - \phi') J'_i r_{ci}' + V'_i (\rho_i/n_i) n'_i \quad (2.32)$$

$$\partial_{t'} \Sigma'_i = (1 - \phi') J'_i r_{ci}'^2 + 2V'_i (\rho_i/n_i) \rho'_i \quad (2.33)$$

$$\partial_{t'} n'_i = J'_i (1 - \phi') \quad (2.34)$$

Pour le reste du document, afin d'alléger l'écriture, les «'» seront omis et on considérera que les variables sont adimensionalisées à moins qu'il en soit indiqué autrement.

Ce modèle présente certaines améliorations par rapport à celui de Toramaru et Mat-

sumoto (2012). En plus de l'expression du liquidus différente et du coefficient de diffusion comprenant la tortuosité, la formulation est quelque peu différente : les expressions des taux de nucléation et de croissance sont plus précis, les définitions des variables ne sont pas les mêmes et l'expression de l'évolution de la concentration tient compte plus exactement de la porosité. De plus, les échelles sont choisies de manière plus cohérente. Tandis que Toramaru base arbitrairement son choix de grandeurs caractéristiques sur la longueur du système, notre choix est dicté par les propriétés physico-chimiques intrinsèques au système. Pour ce qui est des moments, Toramaru les évalue en intégrant sur le rayon plutôt que le temps, ce qui devrait mener à une formulation équivalente.

2.5 Particularités géométriques du système à l'étude

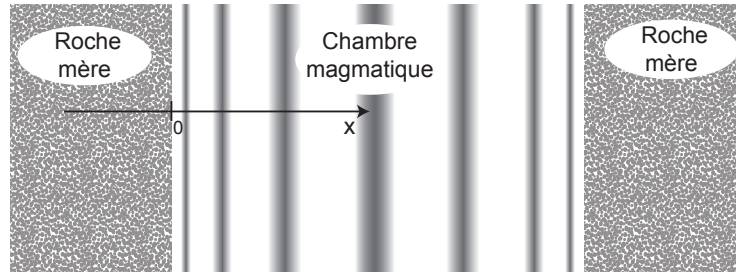


FIGURE 2.6 – Schéma de la géométrie de l'intrusion.

Dans le présent document, nous étudierons un système magmatique cristallisant à partir des extrémités au contact d'une surface plus froide (roche-mère) et formant un motif parallèlement à l'interface, tel qu'illustré à la figure 2.6. La symétrie du problème nous permet de réduire le système en une dimension. Une intrusion de magma entre deux couches de roche, tel un dyke, est un bon exemple d'une telle situation. La cristallisation se faisant symétriquement par rapport au milieu, on ne considère que la moitié du système. On définit alors l'interface roche-magma à $x = 0$ initialement, le front de cristallisation x_f se déplaçant jusqu'à atteindre le milieu de l'intrusion à x_N . La roche plus froide, d'épaisseur infinie, s'étend vers x négatifs. La température de la roche est T_c , celle du magma est T_0 et la concentration initiale du magma en i est C_{i0} . Le front de cristallisation n'est pas à une position fixe, de sorte que le problème devient sujet à une condition limite de type Stefan. Considérant tout cela, on peut établir les conditions suivantes :

Conditions initiales :

$$\begin{aligned} T &= T_c & x < 0, \\ T &= T_0 & x > 0, \\ C_i &= C_{i0}. \end{aligned}$$

Les moments sont nuls initialement puisque le magma est entièrement liquide.

Conditions aux limites :

$$\begin{aligned} T(-\infty) &= T_c \\ \left. \frac{\partial T_i}{\partial x} \right|_{x_N} &= 0, \\ \left. \frac{\partial C_i}{\partial x} \right|_{x_N} &= 0, \\ \left. \frac{\partial C_i}{\partial x} \right|_{x_f} &= 0. \end{aligned}$$

Le front de cristallisation x_f est défini par la position à partir de laquelle le magma est presque entièrement solidifié, i. e. dès que la fraction de volume de magma est inférieure à 1%. La cristallisation se faisant à partir de ce point, il démarque l'endroit à partir duquel plus rien ne se passe. La dernière condition suit du fait que, au front de cristallisation, il y a un mur solide et donc qu'il ne peut y avoir de courant de matériel liquide. Le déplacement du front étant très lent par rapport à la dynamique de cristallisation, on peut négliger le courant qu'il crée au fur et à mesure que le magma se solidifie.

Il est aussi possible de se représenter une masse de magma semi-infinie en contact sur un mur de roche-mère plus froid, auquel cas la cristallisation ne se fait que par un côté. On a alors plutôt

$$\begin{aligned} T(\infty) &= T_0, \\ C(\infty) &= C_{i0}. \end{aligned}$$

Les granites orbiculaires se forment selon une géométrie différente. Il s'agit plutôt d'une intrusion de magma chaud dans une poche à l'intérieur d'une bouillie partiellement cristallisée ayant une température légèrement moins élevée, et se solidifiant à partir d'un xénolite plus froid au milieu de la poche. Cette situation sera élaborée dans le chapitre 6.

Chapitre 3

Aspects numériques

La résolution numérique du problème détaillé au chapitre précédent pose certaines difficultés. Des techniques particulières doivent en conséquence être utilisées afin d’assurer la stabilité et l’exactitude de la solution tout en permettant un temps de calcul raisonnable. Les algorithmes choisis pour solutionner le système d’équations 2.29 à 2.34 sujet aux conditions frontières spécifiques seront d’abord présentés, puis certaines astuces permettant de réduire la lourdeur du calcul seront proposées.

Le code utilisé est présenté à l’annexe A.

3.1 Traitement temporel

Lors de la résolution numérique du système d’équations 2.29 à 2.34, on fait face à un obstacle important : les échelles de temps sur lesquelles s’opèrent les réactions varient sur plusieurs ordres de grandeur. On dit alors du système qu’il est raide. Il s’agit d’une problématique commune à plusieurs systèmes géochimiques dont la cinétique contrôle la réaction, par exemple en diagenèse. Ce type de problème engendre des équations comportant des termes caractérisés par une large plage d’échelles de temps.

Avec les méthodes numériques traditionnelles, afin d’assurer la stabilité de la solution, il faut alors utiliser un pas temporel suffisamment petit pour traiter adéquatement des variations très rapides, ce qui augmente drastiquement le temps de calcul nécessaire pour considérer les réactions plus lentes, ou lorsque le système atteint un état stationnaire. Différents algorithmes ont été développés afin de traiter des systèmes raides de manière efficace, tout en conservant une stabilité satisfaisante. À moins de pouvoir réduire le problème

en trouvant une solution asymptotique, des méthodes particulières, impliquant des algorithmes implicites ou semi-implicites, sont nécessaires. Certaines techniques s'appliquent aux cas, tel que celui présent, où la réaction et le transport sont couplés. Pour des fins d'illustration, considérons la diffusion d'une composante, sans advection, représentée par une équation parabolique de la forme

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \underbrace{\frac{\partial^2 C}{\partial x^2}}_{\mathcal{T}(C)} + \mathcal{R}(C) \quad (3.1)$$

où $\mathcal{T}$ désigne l'étape de transport, soit la diffusion, et $\mathcal{R}$ l'étape de réaction affectant la concentration en question.

3.1.1 Méthode des lignes

Nous discrétisons l'espace par un pas uniforme de grandeur Δx et la position est paramétrisée par l'indice j , avec $x_j = j\Delta x$, j allant de 0 à N pour $N + 1$ noeuds. On utilise alors la notation $C_j = C(j\Delta x, t)$.

La méthode des lignes consiste à réécrire le problème de manière à réduire l'équation différentielle partielle par un système d'équations différentielles ordinaires du premier ordre. On s'affranchit de la dérivée spatiale en utilisant la différence centrée, et l'équation 3.1 devient (Boudreau 1997) :

$$\frac{dC_j}{dt} = D \frac{C_{j+1} - 2C_j + C_{j-1}}{\Delta x^2} + \mathcal{R}(C_j).$$

Ceci mène au système d'équations différentielles ordinaires

$$\begin{aligned} \frac{dC_1}{dt} &= D \frac{C_2 - 2C_1 + C_0}{\Delta x^2} + \mathcal{R}(C_1) \\ \frac{dC_2}{dt} &= D \frac{C_3 - 2C_2 + C_1}{\Delta x^2} + \mathcal{R}(C_2) \\ &\vdots \\ \frac{dC_{N-1}}{dt} &= D \frac{C_N - 2C_{N-1} + C_{N-2}}{\Delta x^2} + \mathcal{R}(C_{N-2}) \end{aligned}$$

pouvant être résolu par les méthodes traditionnelles. Les équations pour le premier et dernier noeud sont déterminées par les conditions aux limites. Plusieurs progiciels disponibles pour solutionner ce type de problème proposent des algorithmes de résolutions appropriés pour des équations raides.

3.1.2 Approche globale implicite

Pour cette méthode, nous devons discrétiser le temps en plus de l'espace en utilisant un pas temporel Δt tel que $t = n\Delta t$.

L'approche globale implicite consiste en la résolution directe du problème, considérant simultanément $\mathcal{T}$ et $\mathcal{R}$. Elle fonctionne bien pour des systèmes simples, à une composante ou sans couplage entre les différentes espèces, mais devient rapidement trop peu efficace autrement.

Écrivons la version implicite de la différence finie de l'équation 3.1 :

$$\frac{C_j^{m+1} - C_j^m}{\Delta t} = D \frac{C_{j+1}^{m+1} - 2C_j^{m+1} + C_{j-1}^{m+1}}{\Delta x^2} + \mathcal{R}(C_j^{m+1}).$$

Regroupant les termes, on obtient (Tsandev 2005) :

$$\underbrace{C_j^m + \Delta t \mathcal{R}(C_j^{m+1})}_{d_j} = - \underbrace{\frac{D\Delta t}{\Delta x^2} C_{j+1}^{m+1}}_{c_j} + \underbrace{\left(\frac{2D\Delta t}{\Delta x^2} + 1 \right) C_j^{m+1}}_{b_j} - \underbrace{\frac{D\Delta t}{\Delta x^2} C_{j-1}^{m+1}}_{a_j}.$$

Le terme réactif peut être évalué avec une approximation explicite $\mathcal{R}(C_j^{n+1}) \approx \mathcal{R}(C_j^n)$, ce qui peut être problématique pour un système raide, ou par itération. Le problème peut être résolu simplement en réécrivant le système d'équations sous forme matricielle. On peut alors calculer directement les concentrations résultantes :

$$\begin{pmatrix} C_0 \\ C_1 \\ \vdots \\ C_{N-1} \\ C_N \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} b_0 & c_0 & & & \\ a_1 & b_1 & c_1 & & \\ & & \ddots & & \\ & & & a_{N-1} & b_{N-1} & c_{N-1} \\ & & & a_N & b_N & \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} d_0 \\ d_1 \\ \vdots \\ d_{N-1} \\ d_N \end{pmatrix}.$$

On remarque que la matrice précédente est tridiagonale, c'est-à-dire que seuls les éléments de la diagonale, ceux au-dessous et ceux au-dessus, sont non nuls. L'algorithme de Thomas (Press, Tevkoisky, Vetterling & Flannery 2007) nous permet d'inverser rapidement une matrice tridiagonale, ce qui rend le calcul des concentrations évoluées direct.

Toutefois, le système nous intéressant ici est bien plus complexe que la simple équation 3.1 puisque nous avons plusieurs variables couplées à évaluer ; avec la méthode globale implicite, nous devrions alors résoudre ensemble un système de 11 matrices. Considérant que l'équation est implicite, on peut utiliser une méthode telle que Raphson-Newton pour

résoudre le problème. La mémoire alors requise par l'algorithme augmente très rapidement et le problème devient très lourd à résoudre. C'est pourquoi cette méthode a été délaissée au profit de techniques plus efficaces.

3.1.3 Approche séquentielle non itérative (ASNI)

Une approche plus efficace consiste à séparer les opérateurs de transport et de réaction. Ce type de méthode permet d'utiliser un algorithme approprié à chaque étape et ainsi réduire le temps de calcul, tout en conservant une bonne précision. Le schéma le plus simple est l'approche séquentielle non itérative et consiste à d'abord appliquer la diffusion, puis traiter la réaction sur l'ensemble diffusé. Identifiant par C^* la concentration à l'étape intermédiaire, on résout subséquemment les deux étapes :

$$\begin{aligned}\frac{C_i^* - C_i^n}{\Delta t} &= \mathcal{T}(C_i^*, C_i^n) \\ \frac{C_i^{n+1} - C_i^*}{\Delta t} &= \mathcal{R}(C_i^{n+1}).\end{aligned}$$

Chaque étape peut être ensuite traitée séparément en utilisant un algorithme semi-implicite ou implicite, selon le niveau de stabilité requis et les caractéristiques spécifiques du problème. Le défaut majeur de cette approche est que l'on considère que le transport se termine avant que l'étape de réaction ne s'enclenche, ce qui engendre une certaine erreur (Steeffel & MacQuarrie 1996).

3.1.4 Algorithme de Strang

Afin de pallier le risque d'erreur associé au fait de traiter le système comme s'il ne réagissait qu'après l'achèvement de l'étape de temps, Strang (1968) propose un schéma de séparation d'opérateurs quelque peu différent : on considère que le transport s'effectue sur une demi-étape de temps, puis la réaction s'opère et finalement le transport se termine. Les étapes se séparent donc ainsi :

$$\frac{C^* - C^n}{\Delta t/2} = \mathcal{T}(C^n, C^*) \tag{3.2}$$

$$\frac{C^{**} - C^*}{\Delta t} = \mathcal{R}\left(\frac{1}{2}(C^{**} + C^*)\right) \tag{3.3}$$

$$\frac{C^{n+1} - C^{**}}{\Delta t/2} = \mathcal{T}(C^{n+1}, C^{**}). \tag{3.4}$$

La somme des trois opérations correspond alors à la version discrète de l'équation différentielle d'intérêt. On a deux étapes intermédiaires, C^* et C^{**} . Ceci permet une représentation plus réaliste du processus, lorsque le transport et la réaction sont en fait simultanés. Il s'agit de l'approche choisie dans le présent document. Plus spécifiquement, la technique utilisée est présentée ici.

Transport

On résout les deux demi-étapes de transport par Crank-Nicolson. Ceci s'applique seulement à la concentration et à la température, qui ne sont pas couplées entre elles, ce qui simplifie leur calcul. Ce schéma semi-implicite assure une stabilité inconditionnelle pour le processus de transport.

Considérons par exemple la concentration de la composante i , dont la première étape de transport s'écrit (équation 3.2)

$$\mathcal{T}(C_i) = \frac{D_i}{(1-\phi)} \frac{\partial}{\partial x} \left[(1-\phi) d_i(\phi) \frac{\partial C_i}{\partial x} \right].$$

Utilisant l'algorithme de Crank-Nicolson, on obtient

$$C_{i,j}^* - C_{i,j}^n = \lambda_+ (C_{i,j+1}^* - C_{i,j}^*) - \lambda_- (C_{i,j}^* - C_{i,j-1}^*) + \lambda_+ (C_{i,j+1}^n - C_{i,j}^n) - \lambda_- (C_{i,j}^n - C_{i,j-1}^n)$$

où

$$\lambda_{\pm} = \frac{D_i \Delta t (1 - \phi_{j\pm 1/2}^{n+1/2})}{4 \Delta x^2 (1 - \phi_j^{n+1/2})} d_{j\pm 1/2}^{n+1/2}.$$

On définit alors

$$\phi_{j\pm 1/2}^{n+1/2} = \frac{\phi_j^{n+1/2} + \phi_{j\pm 1}^{n+1/2}}{2}$$

et on utilise un schéma approximatif pour estimer les variables au temps intermédiaire $(n + 1/2)\Delta t$. Réécrivant le tout sous forme de matrices, on trouve

$$\mathbf{A}C^{n+1} = \mathbf{B}C^n \tag{3.5}$$

avec

$$\mathbf{A} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & & & \\ -\lambda_- & 1 + \lambda_+ + \lambda_- & & -\lambda_+ & \\ & -\lambda_- & 1 + \lambda_+ + \lambda_- & -\lambda_+ & \\ & & & \ddots & \\ & & & -\lambda_- & 1 + \lambda_+ + \lambda_- & -\lambda_+ \\ & & & & 0 & 1 \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & & & \\ \lambda_- & 1 - \lambda_+ - \lambda_- & & \lambda_+ & \\ & \lambda_- & 1 - \lambda_+ - \lambda_- & \lambda_+ & \\ & & & \ddots & \\ & & & \lambda_- & 1 - \lambda_+ - \lambda_- & \lambda_+ \\ & & & & 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Les éléments laissés vides étant nuls, on peut facilement résoudre l'équation 3.5 en utilisant l'algorithme de Thomas. Les premières et dernières lignes, quant à elles, sont déterminées par le type de conditions frontières.

La condition Dirichlet s'applique lorsque la valeur aux limites est fixée, par exemple pour la température de la roche-mère loin de l'interface. La valeur au noeud spatial extrême est alors constante, c'est-à-dire $\theta_0^{n+1} = \theta_0^n$, $\theta_N^{n+1} = \theta_N^n$. Ceci justifie la première et dernière ligne des matrices $\mathbf{A}$ et $\mathbf{B}$.

La condition Neumann est utilisée lorsque l'on spécifie la valeur de la dérivée. Ceci représenterait alors un flux de chaleur ou de matériel constant aux limites du système. Si le système est isolé, par exemple à une interface à $j = 0$ où le matériel frappe un mur et ne peut s'échapper, son flux est nul. Dans ce cas, la dérivée spatiale étant nulle, on peut poser $C_{-1} = C_1$. La première ligne de $\mathbf{A}$ prend alors la forme $(1 + \lambda_+ + \lambda_- \quad -(\lambda_+ + \lambda_- \quad 0 \quad \dots)$, et ainsi de suite.

Réaction

L'étape de réaction consiste à résoudre une équation de la forme 3.3. On remarque que celle-ci s'effectue sur chaque élément spatial indépendamment de ses voisins. On peut alors résoudre subséquemment pour chaque indice l'ensemble des 11 équations couplées pour la réaction en utilisant l'algorithme de Newton-Raphson.

Appelons $\mathbf{v}^n$ le vecteur des variables d'intérêt, soit θ , C_A , C_B , ϕ_A , ϕ_B , σ_A , σ_B , ρ_A , ρ_B ,

n_A et n_B , évaluées au temps $t = n\Delta t$. Celles-ci sont calculées comme suit :

$$\mathbf{v}^{k+1} = \mathbf{v}^k - \mathbf{J}^{-1}\mathbf{f}(\mathbf{v}^k)$$

où k indique le numéro d'itération et $\mathbf{f}(\mathbf{v}^k)$ est défini par

$$\mathbf{f}(\mathbf{v}^k) = \mathbf{v}^* - \mathbf{v}^k + \Delta t \mathcal{R}\left(\frac{\mathbf{v}^* + \mathbf{v}^k}{2}\right).$$

La matrice jacobienne est définie par

$$\mathbf{J} = \frac{\partial \mathbf{f}(\mathbf{v}^k)}{\partial \mathbf{v}^k}$$

et ses éléments sont évalués avec

$$\mathbf{J}_{ij} = \frac{1}{h_j} [\mathbf{f}_i(\mathbf{v} + \mathbf{h}) - \mathbf{f}_i(\mathbf{v})]$$

où $\mathbf{h}$ est un petit vecteur constant parallèle à $\mathbf{v}$. $\mathbf{J}^{-1}$ est évalué par décomposition LU de $\mathbf{J}$ (Press et al. 2007).

3.1.5 Approche séquentielle itérative (ASI)

L'ASI permet d'atteindre une meilleure précision grâce à un processus d'itération entre les étapes de transport et de réaction. Ceci permet de réduire l'erreur due à la séparation des opérateurs tout en conservant les avantages. On répète donc les étapes suivantes, m indiquant le numéro d'itération (Steeffel & MacQuarrie 1996) :

$$\begin{aligned} \frac{C^{n+1,m+1} - C^n}{\Delta t} - \mathcal{T}(C^{n+1,m+1}) &= \mathcal{R}(C^{n+1,m}) \\ \frac{C^{n+1,m+2} - C^n}{\Delta t} - \mathcal{R}(C^{n+1,m+2}) &= \mathcal{T}(C^{n+1,m+1}). \end{aligned}$$

Toutefois, cette approche pose parfois des problèmes de stabilité : il arrive que le processus d'itération ne converge pas, notamment lorsque la matière transportée réagit fortement à l'intérieur d'un même pas temporel. Évidemment, elle requiert aussi un plus grand temps de calcul.

D'autres schémas de séparation d'opérateurs existent, mais nous nous limitons à résumer ceux pertinents dans le cadre d'équations paraboliques telles que celles nous intéressant

ici. Le choix de la séparation des étapes dépend du contexte spécifique du problème et est crucial pour assurer une bonne stabilité (Press et al. 2007).

Steeffel et MacQuarrie (1996) proposent une comparaison des différents schémas de résolution. Nous choisissons l'algorithme de Strang puisqu'il semble fournir des résultats suffisamment précis avec un temps de calcul raisonnable. Considérant aussi les arguments de stabilité mentionnés plus haut, pour le type de problèmes traité dans cette étude, ceci constitue un choix approprié.

3.2 Maillage non homogène

Proche du contact entre la roche-mère et le magma, le gradient de température est bien plus prononcé. Ceci, combiné à l'effet des lois d'échelle, résulte en une structure des oscillations beaucoup plus fine près de l'interface. La résolution spatiale nécessaire y est donc bien plus grande. En termes de temps de calcul, il est alors plus efficace d'utiliser un maillage non homogène. C'est pourquoi nous reprenons la technique utilisée par Toramaru et Matsumoto (2012).

L'espace réel sans dimensions x est relié à l'espace de calcul ζ par l'application suivante :

$$x = p \sinh(\zeta/p) \quad (3.6)$$

où $\zeta = i\Delta\zeta$ est uniforme, avec i le numéro du noeud et $\Delta\zeta$ leur espacement. Ainsi, dans l'espace réel, proche du contact, à $x = 0$, le maillage est très fin, assurant une résolution suffisante de la structure fine, mais pas plus loin, alors que les variations se font à plus grande échelle. Le paramètre p contrôle la forme de l'application : plus il est petit, plus le maillage dans l'espace réel devient grossier en s'éloignant de l'interface.

De plus, afin d'optimiser le temps de calcul, on considère que certains processus s'interrompent lorsque le magma est figé. On définit donc le front de cristallisation x_f comme la position à partir de laquelle le magma n'est pas encore entièrement solidifié, c'est-à-dire lorsque $\phi \leq 0.99$. Puisqu'il n'y a plus de cristallisation ni de transport de matériel, la conduction de chaleur est le seul processus actif dans le système solidifié. On suppose que la température ne s'y élèvera pas suffisamment pour que la roche refonde.

Chapitre 4

Motifs dans une intrusion ignée : résultats et analyse

Ce chapitre présente les résultats obtenus pour les simulations concernant le problème de l'intrusion schématisé à la figure 2.6. Considérons une coulée de magma de température initiale T_{m0} pénétrant entre deux couches de roche-mère plus froide, à T_{r0} , et cristallisant à partir de celles-ci, résultant en une stratification y étant parallèle. Le système est réduit en une dimension et se limite au centre de l'intrusion, dû à sa symétrie. L'interface entre le magma et la roche-mère est posée à $x = 0$ et le milieu de l'intrusion est à $x = L_m$. La concentration initiale du magma est homogène et donnée par C_{A0} pour A et $C_{B0} = 1 - C_{A0}$ pour B. La concentration respecte une condition de type Neumann aux limites de l'espace contenant encore du magma liquide, le flux de matériel étant nul à ces bornes, et la température est considérée fixe à $x = -L_r$, soit très loin dans la roche-mère, et, par symétrie, son gradient est nul au centre de l'intrusion. Les simulations fournissent la composition de la roche une fois cristallisée, via la fraction de volume de solide $\phi_{A/B}$ pour A ou B et la taille moyenne des grains $r_{A/B}$.

4.1 Constantes

On utilise des constantes représentatives d'un magma basaltique (voir 4.1). Celles-ci sont basées sur celles choisies par Toramaru et Matsumoto (2012). V_0 , n'y étant pas spécifié, celui-ci est déterminé à partir des valeurs de Brandeis et al. (1984). De plus, il est à noter que la tension superficielle σ est artificiellement réduite par rapport aux valeurs de la littérature pour ce type de magma, afin de tenir compte de la possibilité de

nucléation hétérogène. Pour des raisons de simplicité, on utilise les mêmes valeurs pour les composantes A et B. Ceci permet d'étudier l'influence des paramètres d'intérêt sans effet d'asymétrie dû à la nature des composantes.

TABLE 4.1 – Constantes représentatives d'un magma basaltique utilisées pour les simulations

Constante	Symbole	Valeur	Unités
tension superficielle	σ	0.12	J m ⁻² molécule ⁻¹
enthalpie de fusion	Δh	1×10^{-19}	J molécule ⁻¹
barrière d'énergie	ΔU	1.33×10^{-19}	J molécule ⁻¹
préfacteur du coefficient de diffusion	D_0	4×10^{-9}	m ² s ⁻¹
température de fusion	T_{L0}	1650	K
taux de croissance caractéristique	V_0	1×10^{-11}	m s ⁻¹
libre parcours moyen	λ	1×10^{-9}	m
volume moléculaire	v	1×10^{-28}	m ³

4.2 Présentation des résultats

4.2.1 Cas de référence

Les paramètres variables sont le nombre de Lewis Le , le nombre de Stefan St (considérant $St_A = St_B$), la concentration initiale C_{A0} , la température du magma T_{m0} , celle de la roche-mère T_{r0} , l'épaisseur de la demi-couche de magma L_m et celle de la roche-mère L_r . Le cas de référence est présenté à la table 4.2.

TABLE 4.2 – Paramètres du cas de référence pour les simulations

Paramètre	Symbole	Valeur	Unités
nombre de Lewis	Le	100	-
nombre de Stefan	St	0.1	-
concentration initiale en A	C_{A0}	60	%
température initiale du magma	T_{m0}	1400	K
température initiale de la roche-mère	T_{r0}	1100	K
épaisseur de la demi-couche de magma	L_m	4	m
épaisseur de la roche-mère	L_r	1	m

Quelques étapes intermédiaires de la cristallisation sont présentées à la figure 4.1, de 8.5 à 18.3 jours après le début de la cristallisation. On assiste à la création d'une bande : après 10.98 jours, la composante A commence à solidifier autour de $x = 0.37$ m, la température à ce point favorisant la nucléation. On remarque que la pente du profil de température subit

un changement à ce même endroit, la chaleur latente libérée par la cristallisation n'étant pas encore tout à fait dissipée. La cristallisation à ce site se poursuit jusqu'à ce que la roche soit totalement solide, tel que visible à 13.42 jours, emprisonnant une couche de magma là où la nucléation ne s'est pas encore amorcée. La cristallisation se poursuit aux abords de la bande nouvellement formée jusqu'à ce que la couche encore liquide n'existe plus. Tout ce processus ayant déstabilisé le profil de concentration, une forte teneur en A permet alors la création des bandes satellites, clairement visibles après 18.30 jours. Une nouvelle bande est en train de se former plus loin.

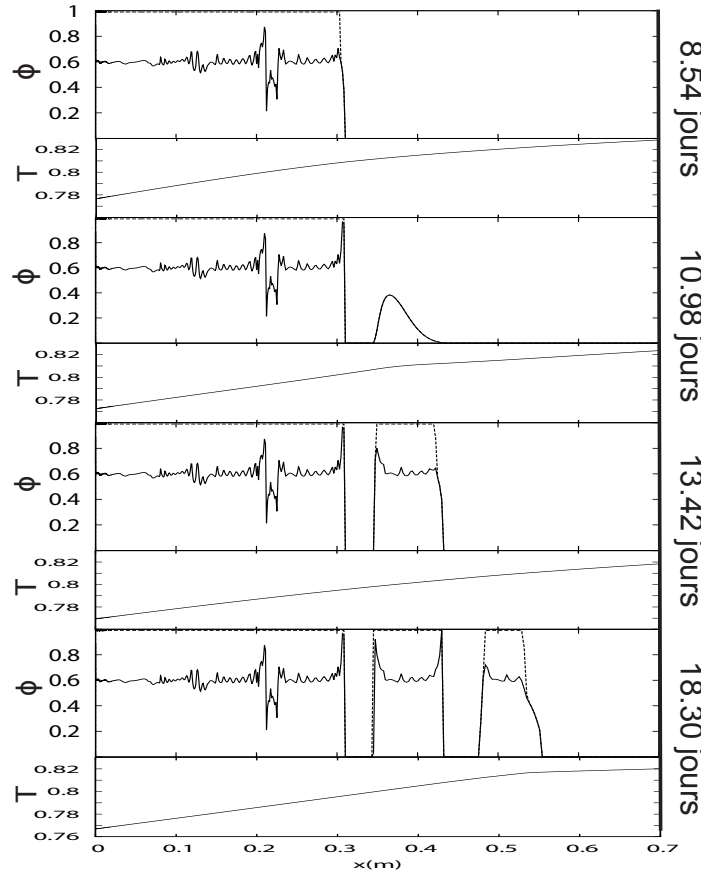


FIGURE 4.1 – Fraction de solide de A (courbe solide) et totale (pointillé) et température à différentes étapes de la solidification du magma pour le cas de référence.

Brandeis, Jaupart et Allègre (1984) ont étudié un système semblable au nôtre, dans lequel le contact avec une surface froide déclenche la cristallisation du magma. Ils ont démontré que, étant donné un ensemble de paramètres qui permet une rétroaction appropriée entre le refroidissement et la libération de chaleur latente, les trajectoires dans le plan taux de croissance - température sont telles qu'il existe deux points fixes, un foyer stable et un point de selle. Les trajectoires formant un cycle amorti autour du point fixe stable, des

oscillations de l'ordre du centimètre sont générées pour des conditions initiales adéquates. On observe cette tendance pour notre cas de référence, tel qu'illustré à la figure 4.2.

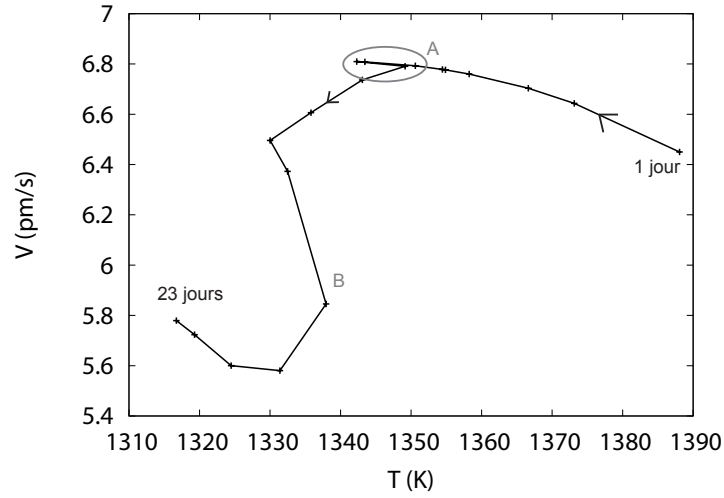


FIGURE 4.2 – Exemple de trajectoire dans le plan température - taux de croissance lors de la formation d'une bande, pour le cas de référence pour $x = 0.465$ m et $1 < t < 23$ jours. Ce point est choisi entre deux bandes de A, où la solidification s'amorce assez lentement pour distinguer les différentes étapes du processus. 1.22 jour s'écoulent entre chaque point.

On peut suivre la trajectoire à la surface de la figure 2.5. Le taux de croissance augmente avec la température qui descend, à concentration constante, vers le sommet de la courbe $V(T)$. Au point A, de la chaleur latente est libérée aux alentours du point d'intérêt, causant une augmentation de température, toujours sur la même courbe. Au point B, la cristallisation s'amorçant au point d'intérêt et dans son environnement, la température subit une autre augmentation, alors que la concentration commence à chuter et on passe à une courbe $V(T)$ plus basse, dont le maximum est défini à une température plus basse. Lorsque la température recommence à descendre, on remonte donc à nouveau vers le maximum.

Les résultats finaux pour le cas de référence sont représentés ci-dessous. Le magma termine de cristalliser 368.2 jours après que celui-ci entre en contact avec la roche-mère. On observe l'apparition de bandes distantes d'une dizaine de centimètres dans la composition et dans la grosseur des grains, tant pour A que pour B. La composition est représentée à la figure 4.3 et de manière plus visuelle à la figure 4.4. Cette dernière représentation se compare aux intrusions réelles illustrées à la figure 1.1. La taille des cristaux est représentée à la figure 4.5.

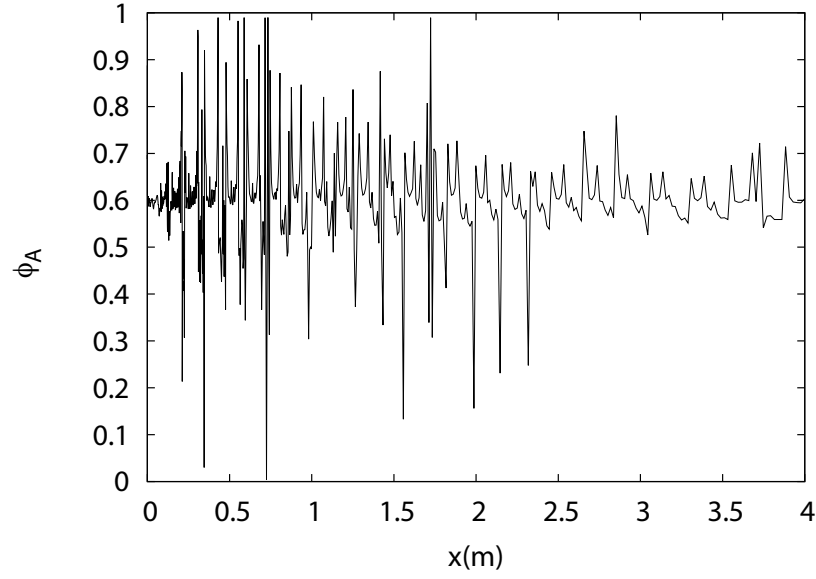


FIGURE 4.3 – Composition finale du magma cristallisé pour le cas de référence. La courbe indique la fraction de solide de A (ϕ_A) dans la roche, la fraction de solide totale $\phi_A + \phi_B$ étant égale à 1. Le temps requis pour la cristallisation est 368.2 jours.

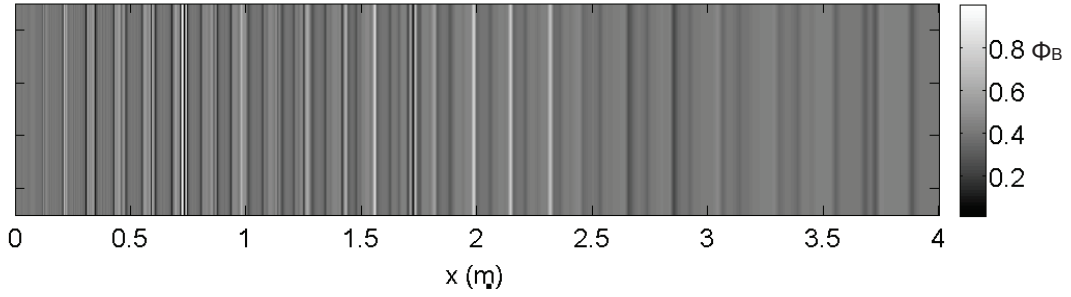


FIGURE 4.4 – Autre représentation de la composition de la roche résultante pour le cas de référence. Le minéral A est représenté en noir et le minéral B en blanc. La présence de bandes satellites (doublets) est mise en évidence dans cette représentation.

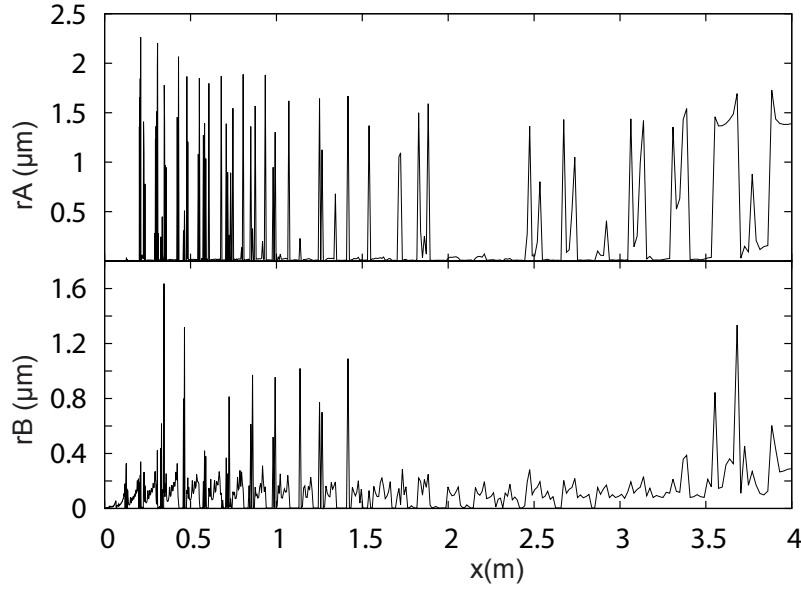


FIGURE 4.5 – Taille des cristaux de A (en haut) et de B (en bas) dans la roche finale pour le cas de référence.

On observe la présence de bandes satellites : les bords des bandes de A sont plus fortement prononcés. Le même phénomène est observable pour les régions où B est plus favorisé, soit pour les bandes faibles en A du graphique 4.3, mais de manière moins nette. Dans la figure 4.4, ceci se traduit par des doublets de bandes minces plus visibles. Jusqu'à maintenant, cette caractéristique n'a été constatée que dans des modèles incluant le mûrissement (Chacron & L'Heureux 1999). La formation de ces doublets semble provenir du fait que la croissance des noyaux aux abords des bandes fait en sorte que le matériel disponible se retire de leur centre.

4.2.2 Influence des paramètres

Afin d'obtenir une caractérisation complète de l'influence des différents paramètres, des simulations ont été effectuées en variant chacun d'entre eux autour du cas de référence décrit au tableau 4.2. Afin de simplifier l'écriture, on suppose que les paramètres non spécifiés sont les mêmes que ceux du cas de référence. Ces graphiques sont produits lorsque le magma est entièrement cristallisé sur la zone représentée. Dans les cas où elle serait très longue, on interrompt parfois la simulation avant que le magma ne soit solidifié sur toute la longueur du système, par exemple pour des nombres de Lewis petits alors que la température diminue très lentement. L'intégralité des résultats est présentée à l'annexe B. Certains résultats représentatifs sont reproduits ici afin d'illustrer les différents types d'oscillations obtenus.

Effet des nombres de Lewis et Stefan

Alors que les valeurs réalistes du nombre de Stefan varient d'environ 0.1 à 0.3 (Toramaru 2001), celles du nombre de Lewis varient sur plusieurs ordres de grandeur, les coefficients de diffusion thermique et du matériel dépendant très fortement de la nature de la coulée (Ahrens & Thomas 1995).

La figure 4.6 représente la composition finale de la roche lorsque $Le = 10$. Par rapport au cas de référence, la diffusion de la chaleur se fait donc plus lentement, causant un gradient de température prononcé pendant plus longtemps. Il est à noter que ce graphique a été agrandi afin de distinguer les détails proche de l'interface. On observe deux échelles pour les oscillations : une ayant un caractère semblable aux plus fortes bandes du cas de référence (type long L), de même qu'une à très courte échelle (type court C).

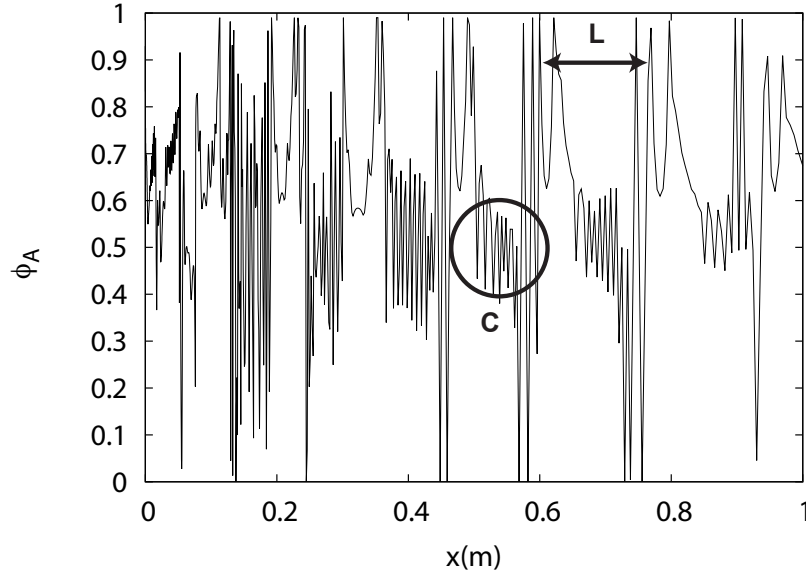


FIGURE 4.6 – Fraction de volume de A du magma cristallisé pour le cas avec $Le = 10$. Remarquez l'échelle en x : le graphique a été agrandi afin de voir les oscillations à plus petite échelle. Les lettres L et C mettent en évidence les oscillations de types long et court.

La figure 4.7, représentant la composition pour un système avec $Le = 1$, illustre la variété d'oscillations qu'il est possible d'obtenir. Celles-ci, de très forte amplitude – la composition variant entre pratiquement 0 et 100 % de A – sont très rapprochées, à l'échelle du centimètre ou même du millimètre.

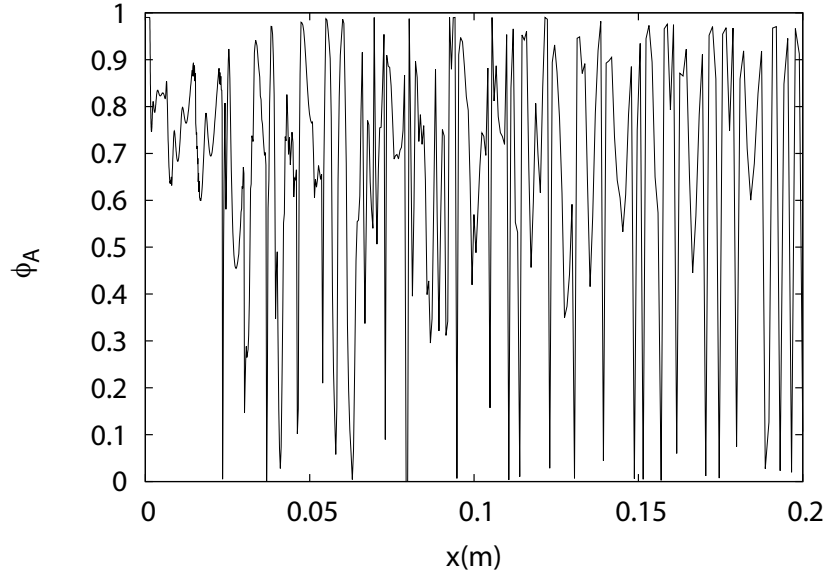


FIGURE 4.7 – Fraction de volume de A du magma cristallisé pour le cas avec $Le = 1$. Le graphique a été fortement agrandi en x afin de mettre en évidence l'oscillation de type court.

Les oscillations ne sont présentes que pour une plage restreinte de paramètres. À la frontière de cette zone dans l'espace des paramètres, on obtient des résultats tels que ceux représentés à la figure 4.9, pour $Le = 1000$ et $St = 0.3$. Des bandes de faible amplitude à petite échelle sont encore visibles, de même que celles distantes d'environ 30 cm, mais on voit que le motif perd en importance. À l'extérieur de la zone en question, pour $Le \geq 10000$ et $St \leq 0.1$, le mécanisme de sursaturation permettant la formation des bandes ne s'effectue plus et la roche atteint une composition homogène correspondant à celle du magma initial. Il arrive aussi parfois que des bandes soient formées proche de l'interface, mais lorsque le gradient de température s'adoucit, plus loin, le motif disparaît, tel qu'illustré à la figure 4.8.

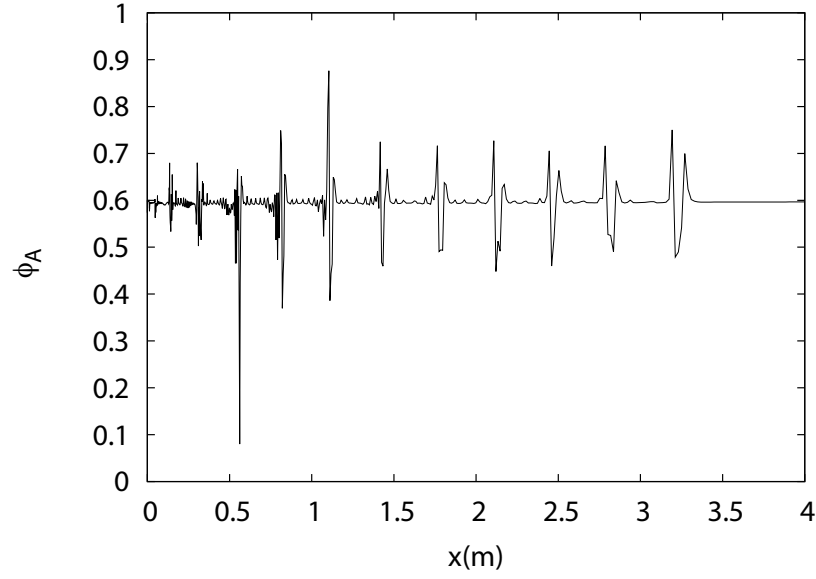


FIGURE 4.8 – Fraction de volume de A du magma cristallisé pour le cas avec $Le = 1000$ et $St = 0.3$. Le magma est entièrement solidifié après 80.5 jours.

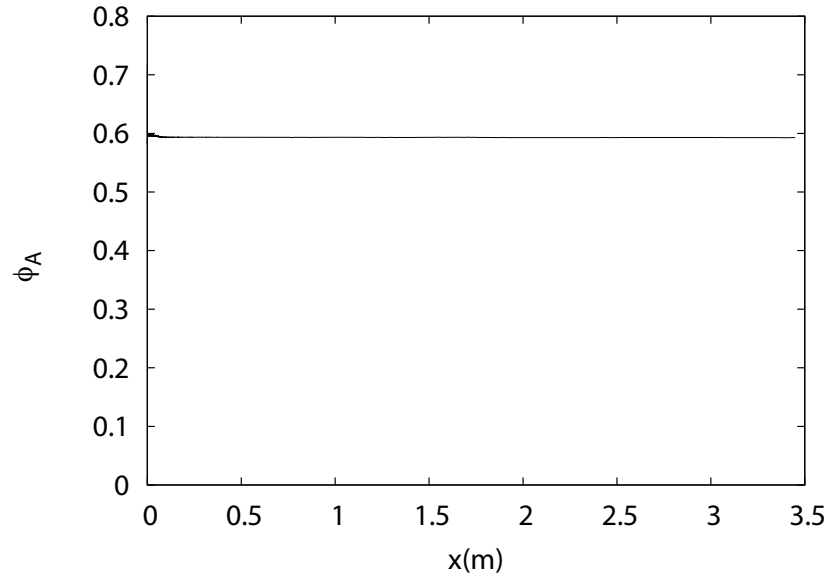


FIGURE 4.9 – Fraction de volume de A du magma cristallisé pour le cas avec $Le = 100000$ et $St = 0.1$. Les bandes ne sont pas formées pour cet ensemble de paramètres.

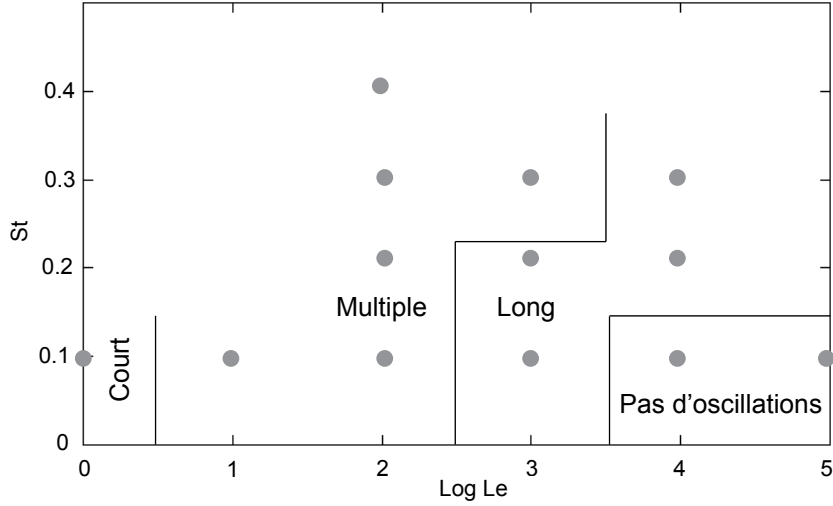


FIGURE 4.10 – Types d’oscillations obtenues en variant Le et St , les autres paramètres étant ceux du cas de référence. Les points gris indiquent les simulations.

Toramaru et Matsumoto (2012) distinguent trois types de bandes : court (C), long (L) et multiple (M). On peut associer ces types à ceux décrits ci-dessus : les bandes de l’ordre du décimètre présentées à la figure 4.3 seraient du type long, celles de la figure 4.7, de l’ordre du centimètre ou millimètre, du type court et la combinaison de bandes de la figure 4.6 représenteraient le type multiple. Les simulations faites en variant les nombres de Lewis et Stefan autour du cas de référence, représentées à la figure 4.10, corroborent dans l’ensemble l’identification des zones établies par Toramaru et Matsumoto (2012), considérant que l’association des résultats à un type est quelque peu subjectif. Les détails de la roche résultante varient, notre modèle étant quelque peu différent, mais l’allure générale demeure la même. Il est à noter qu’aucune bande n’est générée quand Le est grand et St est petit, puisque la faible chaleur latente libérée est alors trop rapidement dissipée.

Les minéraux A et B ayant les mêmes propriétés, lorsqu’ils sont en quantité égale dans le magma, on obtient une roche homogène et les bandes n’apparaissent que lorsqu’on brise cette symétrie. Creuser l’écart entre les concentrations initiales de A et B a un effet semblable à augmenter le nombre de Lewis : seule l’oscillation plus large demeure, avec des forts satellites, puis elle diminue en amplitude jusqu’à ce qu’on obtienne une roche homogène, à $C_{0(A \text{ ou } B)} \geq 80\%$. À ce point, la cristallisation de la composante plus concentrée étant fortement facilitée, celle-ci se solidifie complètement et de manière homogène, avant la seconde composante.

La variation du gradient initial de température entre le magma et la roche-mère, de même que celle de la longueur du système, n’affecte que les détails de la courbe, mais pas

sa forme générale (voir annexe [B](#)).

Effet de la concentration initiale du magma

Considérons le cas de référence, avec $C_{A0} = 60\%$, dont le motif appartient au type M. L'augmentation de la concentration initiale de A à 70% a pour effet de favoriser sa cristallisation, permettant aux bandes satellites de se développer de manière plus prononcée. On observe aussi une diminution de l'amplitude des bandes de type C et une augmentation de celles de type L. Toutefois, si on augmente trop la concentration, par exemple à 80%, A cristallise en bloc avant B et les bandes ne sont plus générées du tout. Par symétrie entre les composantes, puisque nous avons choisi des paramètres égaux pour A et B, les mêmes résultats pour les bandes de B seraient obtenues avec une concentration initiale de A de 30% ou 20%.

Considérons à présent un système dont la concentration initiale est de 50% A et 50% B. Par symétrie entre les composantes, on obtient un profil de fraction de solide final également homogène. Ajoutons alors une petite fluctuation dans le profil de concentration initial, de manière à ce que le magma soit localement un peu plus concentré en A, à 55% sur $1 < x < 2$ cm. La figure [4.11](#) illustre la fraction de solide finale de la roche dans ce cas. Entre 1 et 2 cm, à l'endroit de la fluctuation, trois bandes plus prononcées sont générées. Il est intéressant de remarquer que la fluctuation crée une instabilité qui se propage et des bandes de type M, présentant des satellites, apparaissent même là où la concentration était initialement homogène. Celles-ci sont toutefois d'assez faible amplitude. Le même motif est observable en termes de la taille des cristaux.

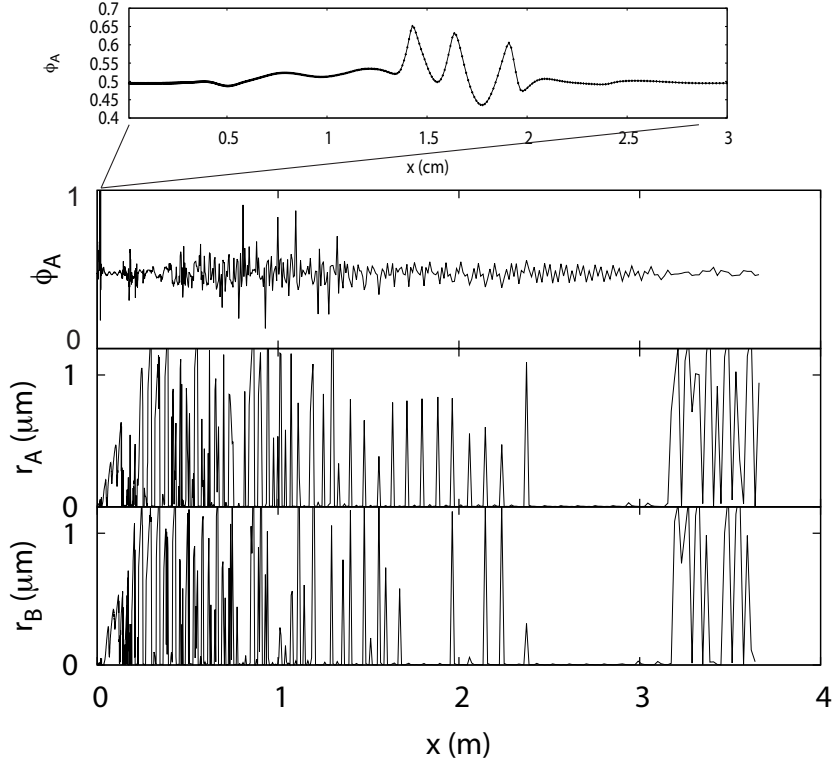


FIGURE 4.11 – Fraction de volume de A et rayons moyens de A et B de la roche résultante lorsque $C_{A0} = 50\%$ sauf pour $1 < x < 2$ cm, où $C_{A0} = 55\%$. Les autres paramètres sont ceux du cas de référence.

Effet de la température initiale du magma

On observe à la figure 4.12, représentant la fraction de solide de A résultante pour le cas de référence avec différentes T_{m0} , que la température initiale du magma n'affecte pas le type de bandes produit. Certaines différences qualitatives sont visibles, particulièrement proche de l'interface, où la cristallisation, qui se fait assez tôt, est affectée par le gradient de température plus ou moins prononcé. Plus loin, les différences s'atténuent et la cristallisation se fait à l'atteinte du liquidus, peu importe la température initiale.

On en conclut donc que la température initiale du magma n'est pas un facteur déterminant à l'apparence des bandes produites. Même pour des très hautes températures initiales, on peut s'attendre à ce que, lorsque la chaleur se dissipe, on retrouve un profil de température semblable à celui créant les bandes illustrées ici et menant donc à un résultat similaire.

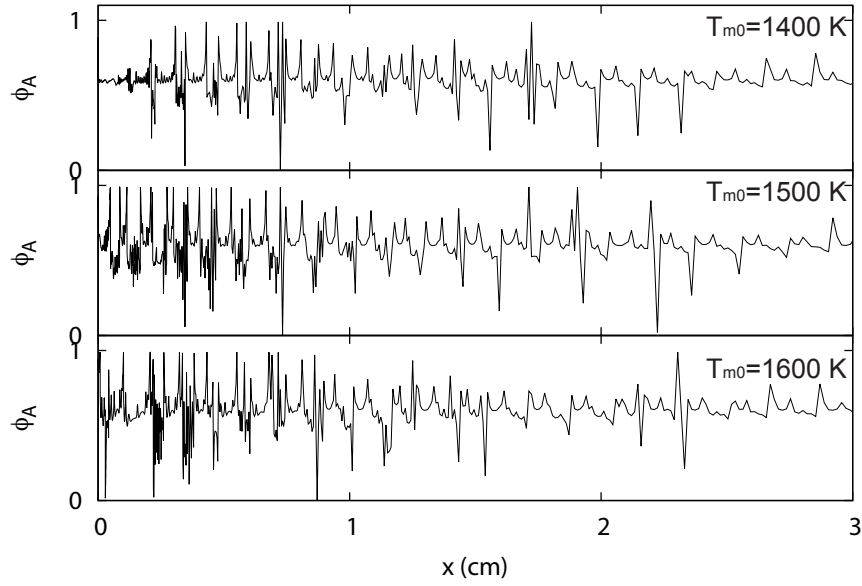


FIGURE 4.12 – Fraction de volume de A lorsque le système est complètement cristallisé pour différentes températures initiales du magma ($T_{m0} = 1400, 1500, 1600$ K).

4.3 Lois d'échelle

Si le mécanisme de formation des bandes est apparenté à celui de Liesegang, on s'attend à ce que les lois d'échelle décrites à la section 2.1.1 soient représentées dans les résultats décrits précédemment. Examinons ces lois en succession.

Loi d'espacement

On définit la position X_n par la distance de l'interface avec la roche-mère de la n -ième bande observée dans la composition de la roche finale. Tel qu'indiqué à l'équation 2.1, $X_{n+1}(X_n)$ doit prendre la forme d'une droite de pente P et d'ordonnée à l'origine A. Il serait aussi possible de considérer les oscillations de la grosseur des cristaux, mais celles-ci suivent généralement la position des bandes en composition, qui sont bien mieux définies. Il n'est toutefois pas toujours possible d'identifier clairement les bandes et leur position, par exemple lorsqu'elles sont essentiellement absentes ou lorsque la composition est trop désordonnée. Les bandes étudiées sont celles qui ressortent le plus clairement, par exemple, pour un motif de type M, on utilise généralement les bandes L. Pour un motif de type C, les bandes sont trop désordonnées pour qu'on identifie clairement leur position. Seules les séries de bandes suffisamment définies, dont les positions peuvent être établies avec une

incertitude raisonnable, sont utilisées pour la mesure des lois d'échelles.

La figure 4.13 démontre à titre d'exemple que $X_{n+1}(X_n)$ tend vers une relation linéaire pour le cas de référence. Le tableau 4.3 indique la pente, l'ordonnée à l'origine et le coefficient de détermination de la droite $X_{n+1}(X_n)$ pour la position des bandes de la composante A, en variant différents paramètres. Une grande partie de l'incertitude sur P vient de l'identification quelque peu subjective des bandes. En particulier pour les bandes de type long, on obtient seulement quelques bandes de faible amplitude, dont la position n'est pas toujours clairement définie.

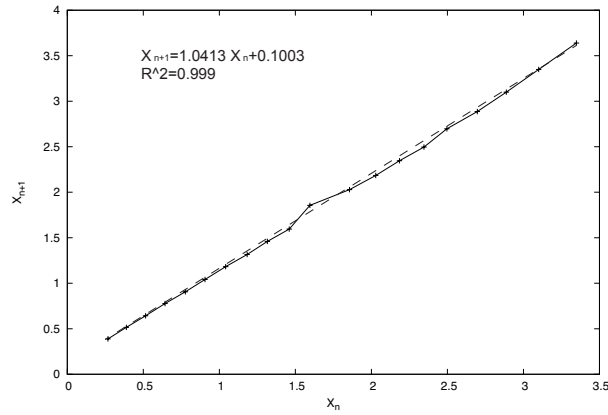


FIGURE 4.13 – Démonstration de la loi d'espacement pour le cas de référence, pour les bandes de A. Effectivement, on constate que $X_{n+1}(X_n)$ s'approche d'une droite.

TABLE 4.3 – Analyse de la loi d’espacement appliquée aux bandes de A selon différents paramètres. P est la pente de X_{n+1}/X_n , A l’ordonnée à l’origine, R^2 le coefficient de détermination et N indique le nombre total de bandes identifiées.

Paramètres	$P(-)$	$A(m)$	$R^2(-)$	N	Paramètres	$P(-)$	$A(m)$	$R^2(-)$	N
Nombre de Lewis avec $St = 0.1$					Nombre de Stefan avec $Le = 10000$				
1	bandes non définies				0.1	bandes non définies			
10	1.089	0.107	0.998	8	0.2	1.555	0.086	0.994	5
100	1.041	0.100	0.999	20	0.3	1.464	0.167	0.999	4
1000	1.173	0.107	0.999	9	Concentration initiale de A				
10000	bandes non définies				60%	1.041	0.100	0.999	20
100000	bandes non définies				70%	1.052	0.105	0.9996	19
					80%	bandes non définies			
Nombre de Stefan avec $Le = 100$					Longueur du système				
0.1	1.041	0.100	0.999	20	1 m	1.334	0.041	0.999	4
0.2	1.054	0.113	0.9989	19	4 m	1.041	0.100	0.999	20
0.3	1.084	0.097	0.999	16	10 m	1.025	0.116	0.999	23
0.4	1.105	0.108	0.999	15	100 m	1.055	0.118	0.997	10
Nombre de Stefan avec $Le = 1000$					Température du magma				
0.1	1.173	0.107	0.999	9	1400 K	1.041	0.100	0.999	20
0.2	1.085	0.222	0.9998	8	1500 K	1.036	0.105	0.999	20
0.3	1.062	0.228	0.999	10	1600 K	1.043	0.094	0.999	21

On remarque que, pour tous les cas, $P > 1$, ce qui indique que les bandes sont de plus en plus espacées en s’éloignant de l’interface. Il s’agit donc d’un motif normal, par opposition à un motif inversé, pour lequel les bandes se rapprocheraient, causant $P < 1$.

Les observations du sill de picrite illustré à la figure 1.1b fournissent des valeurs de comparaison pour P (Toramaru, Ishiwatari, Matsuzawa, Nakamura & Arai 1996, Toramaru, Ishiwatari, Matsuzawa, Nakamura & Arai 1997). La loi d’espacement mesurée est la suivante :

$$\log \Delta x_n = \alpha + 0.003n, \quad (4.1)$$

où $\Delta x_n = x_{n+1} - x_n$ et α est une contante. On obtient donc

$$P = \frac{\Delta x_n}{\Delta x_{n-1}} = \exp(0.003) \approx 1.003. \quad (4.2)$$

Cette valeur, quoique plus petite que celles calculées à partir des simulations, présente tout de même une erreur relative aussi basse que 2.5% dans le cas le plus favorable. Une justification théorique de la valeur de P est proposée Toramaru et Al. (1996), selon laquelle celle-ci ne dépend que du nombre de Lewis. Toutefois le système étudié concerne la formation de vésicules, et ne se transpose pas directement au cas à l'étude ici.

L'ordonnée à l'origine n'a pas de cadre théorique. En outre, la définition de la première bande est relativement arbitraire, puisqu'il est difficile de distinguer les bandes très proches de l'interface. Ceci affectant directement A , il est alors aussi difficile d'interpréter sa signification.

Interprétation de la loi de Matalon-Packter

La loi de Matalon-Packter a été établie dans le cadre d'un électrolyte de concentration a_0 diffusant dans un gel qui contient une substance selon une concentration b_0 avec lequel l'électrolyte réagit pour former un précipité. Dans ce contexte, la pente P de la droite $X_{n+1}(X_n)$ serait déterminée par une équation de forme (voir équation 2.2) :

$$P = F(b_0) + \frac{G(b_0)}{a_0}.$$

Toutefois, la situation à l'étude ici étant plus complexe que celle décrite précédemment, il n'est pas possible d'y appliquer directement la loi de Matalon-Packter. Plusieurs paramètres contrôlent la réaction, en plus de subir de la rétroaction, générant les différents types de motifs et leurs détails parfois plus élaborés. On peut toutefois s'attendre à un comportement cohérent avec celui décrit par la loi de Matalon-Packter. Aussi, lorsque la force motrice de la réaction augmente, par exemple si la concentration du réactant augmente via son influence sur la sursaturation, P diminue et les bandes se rapprochent. Dans notre système, P devrait donc diminuer quand le nombre de Lewis diminue et quand le nombre de Stefan augmente, puisqu'un faible Le ou grand St favorise un fort gradient de température. En examinant le tableau 4.3, on remarque que cette tendance est respectée dans la zone de la figure 4.10 qui correspond au type long et on peut directement associer l'influence du gradient de température à celle du gradient de concentration dans la loi de

Matalon-Packter. Pour les zones multiples et courtes, où d'autres phénomènes affectent le système, ce dernier est trop complexe pour une telle interprétation.

Loi de largeur

Selon la loi de largeur définie à l'équation 2.3, le coefficient

$$R_n = \frac{X_n}{W_n}$$

devrait tendre vers une constante lorsque n est suffisamment grand. Cette tendance est effectivement observée pour toutes les simulations où il est possible d'identifier les bandes et leur largeur. Quelques exemples sont illustrés à la figure 4.14. On observe que les premières bandes n'obéissent généralement pas la loi de largeur, le système ne s'étant pas encore stabilisé lors de leur formation. Aussi, il est souvent plus difficile de définir les bandes de manière précise, particulièrement proche de l'origine. La valeur de la constante vers laquelle R tend n'a pas d'interprétation théorique. On remarque toutefois qu'elle est toujours du même ordre de grandeur et ne varie pas systématiquement avec les différents paramètres.

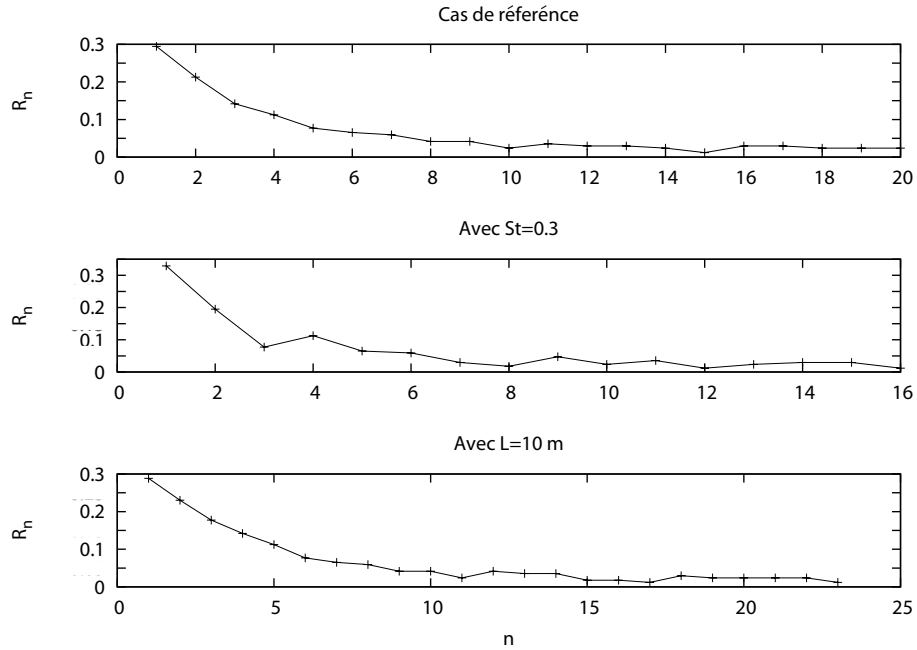


FIGURE 4.14 – Démonstration de la loi de largeur avec différents paramètres pour des bandes de A. Tel qu'attendu, on constate que le coefficient R_n tend vers une constante pour n suffisamment grand.

Loi temporelle

Selon l'équation 2.4, le ratio du temps de formation de la bande et du carré de sa position

$$Q_n = \frac{T_n}{X_n^2}$$

tend aussi vers une constante pour n suffisamment grand. On définit le temps de formation de la bande comme le moment où le centre de la bande est totalement cristallisé. Encore ici, pour les cas où les bandes sont présentes, les résultats corroborent la théorie. Comme pour R , la constante vers laquelle Q tend n'a pas d'interprétation théorique. Des exemples sont illustrés à la figure 4.15.

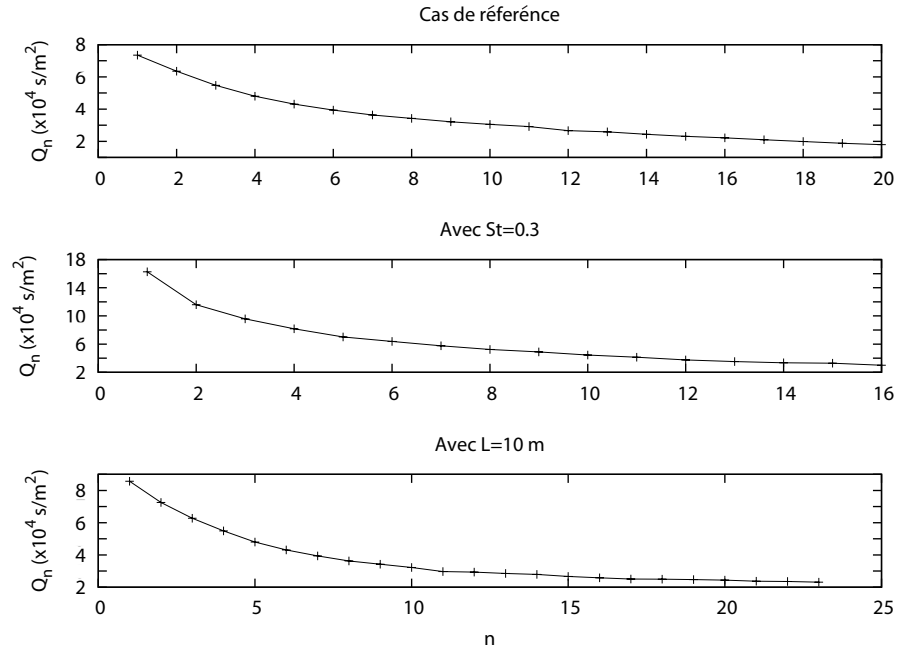


FIGURE 4.15 – Démonstration de la loi temporelle pour différents paramètres pour des bandes de A. Encore ici, tel qu'attendu, le coefficient Q_n tend vers une constante pour n suffisamment grand.

4.4 Résumé

En résumé, les résultats obtenus pour l'intrusion corroborent ceux obtenus par Toramaru et Matsumoto (2012). Notre modèle présentant certaines modifications par rapport

au leur, on retrouve certaines différences dans le détail. Entre autres, on remarque la présence des bandes satellites, caractéristique émergente intéressante dans un système sans mûrissement. De plus, l'étude des lois d'échelle indique qu'un mécanisme de Liesegang est bien derrière la formation des bandes, du moins celles de type L, puisqu'on retrouve les caractéristiques empiriques y étant propres. Ceci étant établi, on peut maintenant passer à la prochaine étape et incorporer de nouveaux éléments à notre modèle.

Chapitre 5

Motifs dans une intrusion ignée : mûrissement d'Ostwald

Tel que discuté à la section [2.2.4](#), une troisième étape peut s'ajouter au mécanisme de cristallisation. Le mûrissement d'Ostwald, processus par lequel la croissance des plus gros cristaux est favorisée au détriment de celle des plus petits, dû à leur plus grande stabilité, a été négligé dans le modèle de Toramaru et Matsumoto (2012). Cette section est dédiée à l'étude de l'effet du mûrissement sur l'intrusion détaillée au chapitre [4](#).

Le mûrissement a pour effet d'abaisser la courbe du liquidus, tel qu'établi aux équations [2.21](#) et [2.22](#). L'intensité relative de cet effet peut être contrôlée en variant le paramètre δ , son influence devenant négligeable lorsque $\delta \rightarrow \infty$. Étant de l'ordre du rayon critique, en termes adimensionnalisés, $\delta \approx 1$.

Quelques cas typiques étudiés à la section précédente sont repris et analysés en ajoutant divers degrés de mûrissement. L'intégralité des résultats est présentée à l'annexe [C](#).

5.1 Cas de référence avec mûrissement

Dans cette section, le cas de référence détaillé au chapitre précédent (tableau [4.2](#)) est analysé avec différents degrés de mûrissement.

5.1.1 Présentation des résultats

Les résultats de la fraction de solide finale pour $\delta = 1$ et $\delta = 3$ sont illustrés à la figure [5.1](#). Pour fins de comparaison, le résultat correspondant au cas sans mûrissement se

trouve à la figure 4.3. On observe une transition dans le comportement du système entre ces points. Pour le système avec le plus fort mûrissement ($\delta = 1$), le système à l'interface est beaucoup plus instable, causant de fortes oscillations proche de $x = 0$. Celles-ci s'estompent toutefois plus rapidement, lorsque la force thermodynamique s'atténue et que l'équilibre est atteint, et le motif n'est plus présent après $x \approx 1.7$ m. Les bandes satellites sont toujours présentes dans le motif, mais de manière moins prononcée. Les résultats avec $\delta = 3$, bien que différents dans le détail du cas sans mûrissement (figure 4.3), sont qualitativement semblables et présentent les mêmes caractéristiques.

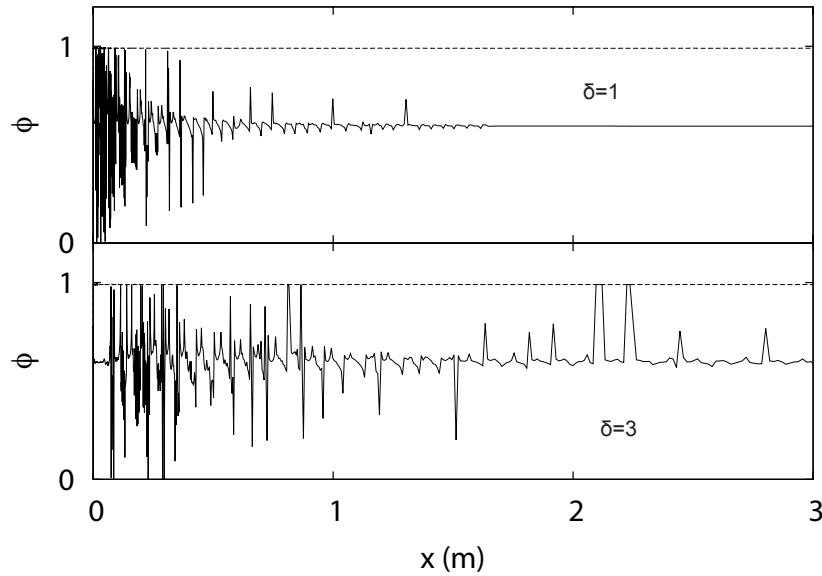


FIGURE 5.1 – Fraction de solide de A (courbe solide) et totale (pointillé) du magma cristallisé pour le cas de référence avec mûrissement. Le graphique du haut représente les résultats pour $\delta = 1$ et, celui du bas, ceux pour $\delta = 3$.

En considérant la taille des grains, la transition entre les deux régimes est encore plus flagrante. La figure 5.2 illustre le rayon moyen des cristaux de A pour $\delta = 1$ et $\delta = 3$, pour le cas de référence. On remarque deux changements majeurs dans le comportement de ces graphiques.

D'abord, pour $\delta = 1$, on remarque que le rayon est de l'ordre de la dizaine de nanomètres, alors que celui pour $\delta = 3$ est de l'ordre de la centaine de nanomètres. Le rayon continue de grossir avec δ pour atteindre l'ordre du micromètre lorsque $\delta \rightarrow \infty$ (voir figure 4.5). Contrairement à ce que l'on aurait pu s'attendre, l'ajout du mûrissement au modèle n'implique donc pas une augmentation du rayon moyen des grains, au contraire. Ce même phénomène est observable dans Chacron et L'Heureux (1999). Ceci s'explique par le fait que la température du liquidus diminue lorsqu'on considère la présence de mû-

risement. Ce décalage est plus prononcé pour les petits cristaux, mais existe tout de même pour les plus gros, ralentissant leur croissance par rapport au système sans mûrissement.

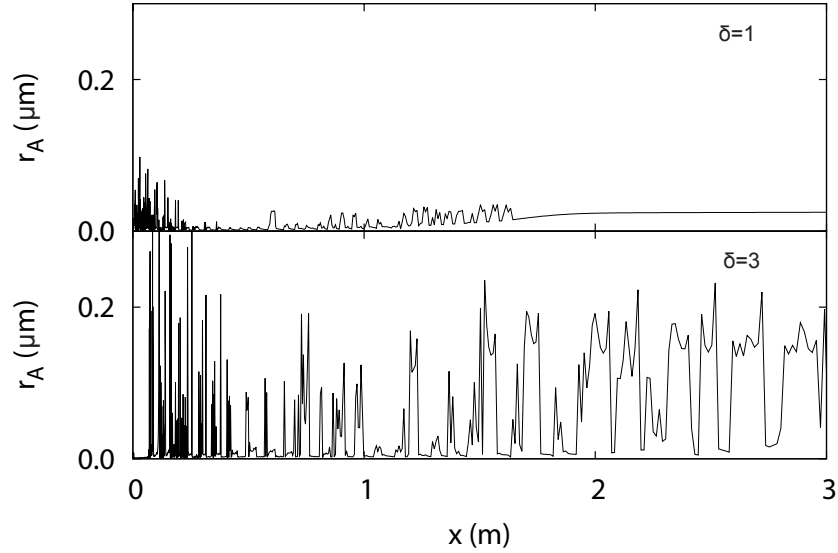


FIGURE 5.2 – Taille moyenne des cristaux de A dans la roche résultante pour le cas de référence avec mûrissement. Le graphique du haut représente les résultats pour $\delta = 1$ et, celui du bas, ceux pour $\delta = 3$.

De plus, on observe une transition dans la forme générale de la courbe. Pour $\delta = 1$, outre la zone de transition proche de $x = 0$, la taille des cristaux augmente avec la distance de l'interface. Ce comportement est observable dans certains cas sans mûrissement, lorsque les oscillations sont faibles, mais apparaît systématiquement lorsque le mûrissement est suffisant. On peut donc en déduire qu'il s'agit d'une tendance générale, de petite échelle, qui devient négligeable en comparaison des oscillations de forte amplitude qu'on retrouve lorsque $\delta \rightarrow \infty$. Plus loin, tout comme pour la fraction de solide, pour $\delta \leq 1$ le système se stabilise après une certaine distance et le profil de rayon devient plat.

Il est aussi à noter que la cristallisation du système entier prend significativement plus de temps quand le degré de mûrissement est élevé (soit de l'ordre de 500 jours pour $\delta = 1$ versus 400 jours pour $\delta = 3$, tendance qui se maintient avec δ qui augmente). Ceci s'explique par la diminution de la courbe du liquidus : avec le mûrissement, la température doit être plus basse pour amorcer la solidification, ce qui prend un certain temps supplémentaire.

La figure 5.3 représente la trajectoire dans le plan taux de croissance - température pour $\delta = 1$ et $x = 0.465$ m. Comparant celle-ci avec la figure 4.2, sans mûrissement, on remarque que pour la même température, le taux de croissance est plus petit avec mûrissement, ce qui

est cohérent avec la baisse du liquidus. De plus, la forme générale de la courbe est différente. Tout comme pour le cas sans mûrissement, au point A, on observe un petit retour sur la courbe lors de la libération de chaleur latente dans les environs. Puis, s'ensuit une période de transition à B lorsque la cristallisation s'amorce ; toutefois, avec le mûrissement, celle-ci se fait bien plus brusquement. Au point C, le magma s'étant partiellement solidifié, on retrouve une forte fraction de solide, associée à une augmentation de la taille des cristaux et une baisse de la concentration. L'augmentation de la taille des grains cause une hausse de la température du liquidus et donc du taux de croissance. On observe en conséquence une hausse soudaine de $V(T)$ au point C, contrairement au cas sans mûrissement, où $V(T)$ subissait une baisse due uniquement à la baisse de la concentration.

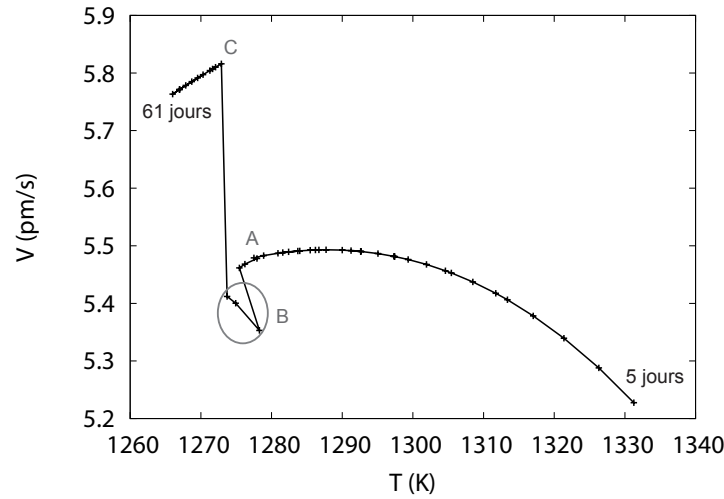


FIGURE 5.3 – Exemple de trajectoire dans le plan température - taux de croissance lors de la formation d'une bande, pour le cas de référence pour $x = 0.465$ m et $5 < t < 61$ jours, avec $\delta = 1$. 1.22 jour s'écoule entre chaque point.

5.1.2 Effet du mûrissement sur la loi d'espacement

Le tableau 5.1 présente les résultats de la loi d'espacement pour le cas de référence avec différents degrés de mûrissement. Les bandes de B sont utilisées lorsqu'elles sont plus clairement définies que celles de A.

TABLE 5.1 – Analyse de la loi d’espacement pour le cas de référence selon différents degrés de mûrissement. P est la pente de X_{n+1}/X_n , A est l’ordonnée à l’origine, R^2 est le coefficient de détermination et N indique le nombre total de bandes identifiées.

δ	$P(-)$	$A(m)$	$R^2(-)$	N
0.136	1.005	0.040	0.9998	14
0.25	1.001	0.048	0.999	24
0.5	1.022	0.032	0.9997	22
0.75	1.018	0.035	0.9996	28
1	1.004	0.046	0.999	26
3	1.016	0.063	0.9995	23
5	1.049	0.064	0.996	15
7	1.027	0.080	0.9998	24
10	1.022	0.093	0.9998	22
∞	1.041	0.100	0.999	20

La constante P est, encore ici, plus grande que 1, ce qui indique des bandes normales. On observe que P augmente généralement avec δ . Autrement dit, lorsque le mûrissement diminue, les bandes s’éloignent davantage les unes des autres. Cette tendance n’est toutefois pas toujours bien définie, surtout considérant la précision de P pour chaque simulation.

Se rappelant que, pour le sill de picrite mentionné plus haut, on obtient expérimentalement $P = 1.003$, tel que justifié à l’équation 4.2 (Toramaru et al. 1996), on constate que l’ajout de mûrissement semble faire tendre P vers des valeurs plus réalistes. Ceci nous permet de supposer que le mûrissement a effectivement un rôle à jouer dans la formation de ces motifs.

On remarque aussi que l’ordonnée à l’origine A augmente constamment avec δ , sauf pour $\delta \leq 0.25$. On peut interpréter A comme étant la distance minimale entre deux bandes. Les bandes sont alors plus proches les unes des autres lorsque le mûrissement est plus fort. Considérant que A doit tendre asymptotiquement vers A_∞ lorsque le mûrissement diminue, on trouve empiriquement que $A(\delta)$ suit la courbe

$$A = A_\infty(1 - \exp[-(c + a\delta)])$$

où $a = 0.0487$ et $c = 0.225$, avec $R^2 = 0.95$. Cette relation, quoique clairement définie, demande à être interprétée puisqu’il n’existe pas de cadre théorique pour A . L’erreur majeure sur A provient du fait qu’il est souvent difficile d’identifier la première bande, ce qui augmente artificiellement la valeur de A . Toutefois, ce biais est moindre lorsque la pente

P est plus petite. Ceci peut expliquer que la relation $A(\delta)$ est moins claire pour les très faibles δ , où les bandes sont trop proches pour être distinctes, de même que l'absence de tendance de A selon les différents paramètres lorsque le mûrissement est absent, alors que P était plus grand (voir tableau 4.3).

5.2 Effet du mûrissement pour différents cas

5.2.1 Effet sur les types de bandes

À la figure 4.10, différentes zones ont été identifiées dans l'espace (St, Le) où l'on retrouve certains types de motifs. Bien que l'apparence des bandes soit parfois grandement modifiée par le mûrissement, ces zones, représentées à la figure 5.4, sont peu modifiées.

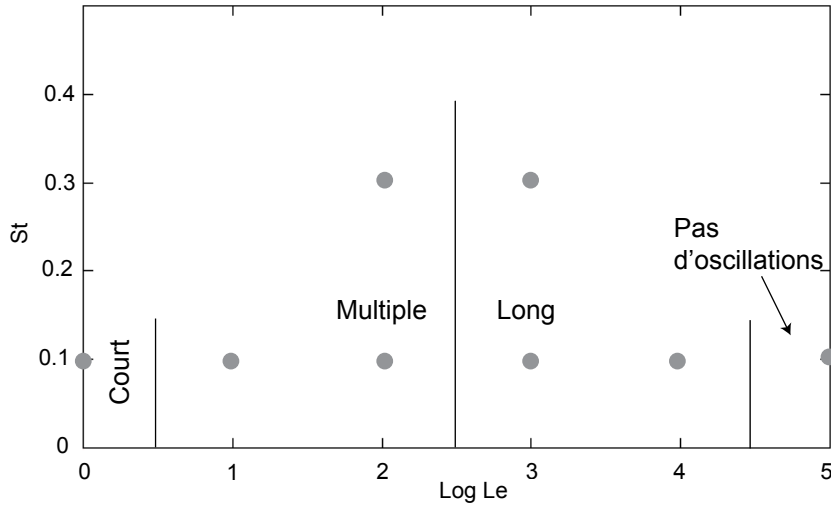


FIGURE 5.4 – Types d'oscillations obtenues en variant Le et St , les autres paramètres étant ceux du cas de référence, avec mûrissement ($\delta = 1$). Les points gris indiquent les simulations.

On remarque que la zone où les oscillations sont absentes débute à un nombre de Lewis plus élevé. Ceci s'explique par le fait que, par exemple pour $Le = 10000$, le mûrissement permet à des bandes qui seraient trop faibles pour être observées de se développer.

Il est toutefois intéressant de noter que le type d'oscillation ne change souvent pas avec l'ajout du mûrissement même si son aspect qualitatif peut être très différent. Comparons par exemple le cas avec les oscillations courtes, lorsque $Le = 1$ et $St = 0.1$, tel qu'illustré à la figure 5.5. Ici, le mûrissement a pour effet d'augmenter l'amplitude des bandes, causant

une alternance de bandes pratiquement pures en A et B. Le profil est alors beaucoup moins élaboré que le cas sans mûrissement, la cristallisation lente permettant aux bandes de se développer complètement.

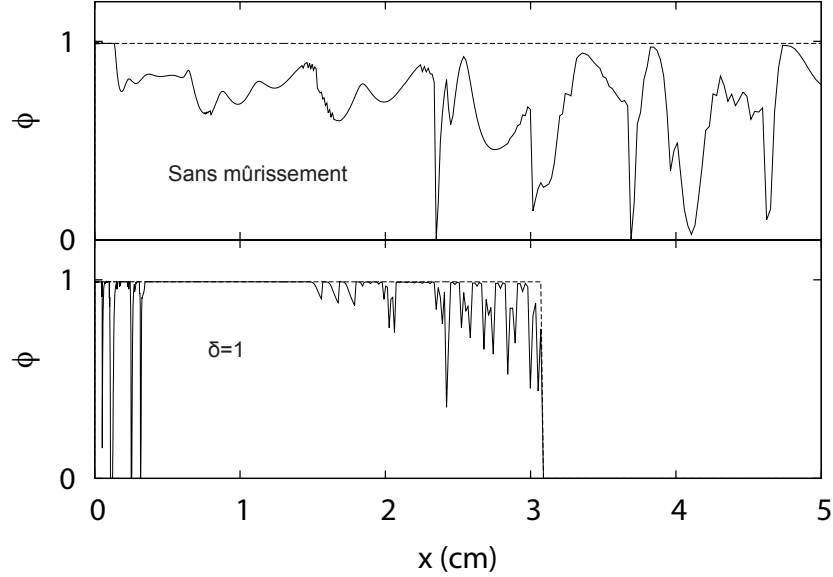


FIGURE 5.5 – Comparaison de la fraction de solide de A (courbe solide) pour une oscillation de type court, en l’occurrence pour $Le = 1$ et $St = 0.1$, sans mûrissement (figure du haut) et pour $\delta = 1$ (figure du bas). La courbe pointillée représente la fraction de solide totale au moment de l’arrêt de la simulation.

5.2.2 Profil initial de concentration homogène, avec mûrissement

Considérons le même système qu’à la section 4.2.2, soit avec les paramètres du cas de référence sauf pour $C_{A0} = 55\%$ sur $1 < x < 2$ cm et $C_{A0} = 50\%$ ailleurs. Nous avons vu que, même sans mûrissement, la fluctuation dans le profil de concentration génère des oscillations dans la fraction de solide de la roche finale. La figure 5.6 représente la même situation, avec mûrissement ($\delta = 1$). On observe que l’amplitude des bandes est beaucoup plus grande : sans mûrissement, l’amplitude maximale des variations dans la composition de la roche est d’environ 15%, alors qu’ici, elle est de l’ordre de 90%. Ces oscillations sont atténuées assez rapidement, et disparaissent vers 40 cm. On remarque aussi un changement du type de bandes avec l’ajout du mûrissement. Il s’agit à présent d’un motif de type C, plutôt que M, donc avec des bandes beaucoup plus rapprochées et ne présentant pas de satellites. Le profil de la taille du grain suit celui de la fraction de solide. Les cristaux sont beaucoup plus petits que ceux obtenus sans mûrissement (figure 5.6).

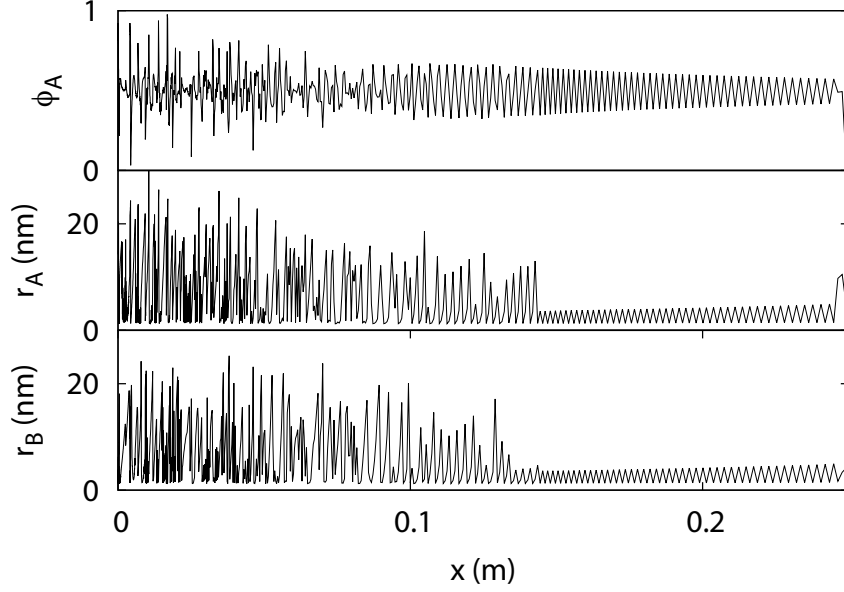


FIGURE 5.6 – Fraction de volume de A et rayons moyens de A et B de la roche finale lorsque $C_{A0} = 50\%$ sauf pour $1 < x < 2$ cm, où $C_{A0} = 55\%$, avec $\delta = 1$.

5.3 Résumé

En bref, notre modèle permet d'étudier l'effet qualitatif du mûrissement d'Ostwald sur les roches résultantes. L'inclusion de mûrissement cause une transition dans la forme globale des résultats, particulièrement en ce qui concerne la taille des grains, à partir de $\delta \approx 1$. De manière générale, avec le mûrissement, on observe une réduction du rayon des cristaux, l'atteinte d'un état stable après une certaine distance, et un rapprochement des bandes, tendance qui n'est pas encore entièrement comprise théoriquement. La diminution vers des valeurs du paramètre P de la loi d'espacement, qui concordent mieux avec les observations, porte à croire que le mûrissement est effectivement actif dans les systèmes naturels.

Outre ces différences dans l'apparence générale des courbes, les types de bandes sont représentés pour des nombres de Stefan et de Lewis quelque peu différents. À cette échelle, St n'a pas d'influence significative sur le type de bandes résultant. De plus, on obtient des bandes jusqu'à un plus grand nombre de Lewis, alors que, sans mûrissement, la diffusion rapide de la température ne permettait pas aux bandes de se développer.

Chapitre 6

Granites orbiculaires

6.1 Introduction

La seconde géométrie à l'étude dans ce document est celle du granite orbiculaire. Il s'agit d'une roche ignée grossièrement sphérique, d'une dizaine de centimètres de diamètre, possédant une stratification minéralogique en couches concentriques. Un exemple est illustré à la figure 6.1. À notre connaissance, il n'existe pas d'étude numérique de leur formation dans le contexte d'un système eutectique binaire.

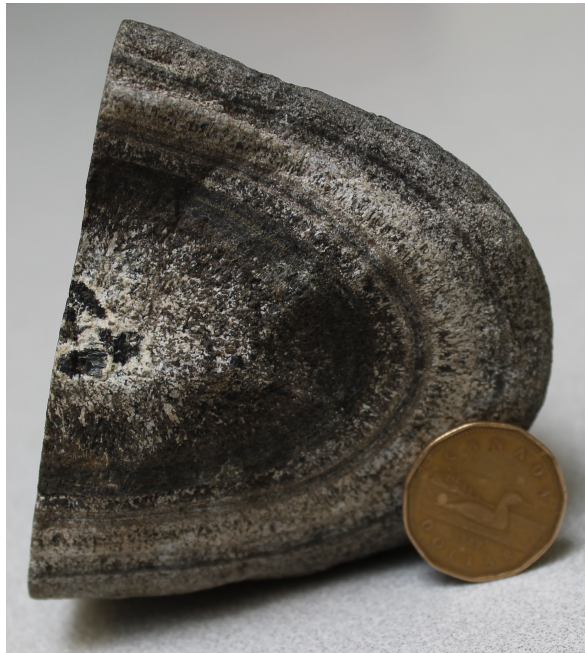


FIGURE 6.1 – Exemple d'un granite orbiculaire, Fisher Lake, Californie.

Leveson (1966) présente une revue des granites orbiculaires retrouvés à travers le monde. Malgré qu'il s'agisse d'un type de roche assez rare, la très grande diversité des contextes géologiques dans lesquels on les retrouve semble indiquer que leur formation est due à un phénomène indépendant de leur composition et de facteurs extérieurs. Bien qu'aucune proposition sur l'origine des roches orbiculaires ne soit satisfaisante pour complètement expliquer l'ensemble des occurrences connues, leurs ressemblances avec des anneaux de Liesegang portent à croire qu'un processus d'auto-organisation, dans lequel la diffusion dans un système sursaturé aurait un rôle majeur, serait en cause. Les granites orbiculaires pourraient donc être formés selon un processus tel que celui modélisé dans ce document. Selon Wang et Merino (1993), qui proposent un modèle quantitatif pour une cristallisation de biotite-amphibole à partir d'une solution, le mûrissement serait essentiel à la formation de bandes dans les granites orbiculaires. Considérant leur petite taille, la température s'homogénéiserait trop rapidement pour qu'un modèle de prénucléation explique à lui seul l'apparition de motifs.

L'analyse de différents sites (Durant & Fowler 2002, Decitre, Gasquet & Marignac 2002, Grosse, Toselli & Rossi 2009) semble indiquer que ces roches se forment à partir de l'intrusion de magma dans une cavité, laquelle s'est formée à l'intérieur d'une bouillie rhyolitique refroidie de quelques dizaines de degrés et partiellement cristallisée. La présence d'un noyau plus froid au centre de la cavité facilite la cristallisation en offrant un site de nucléation hétérogène. Celui-ci est souvent un xénolithe présentant une pétrographie distincte de la matrice granitique. La cristallisation se fait rapidement à partir de ce centre, puis les anneaux peuvent se former par précipitation périodique, comme en témoigne parfois la progression géométrique de la position des bandes à partir du centre, dans le cadre d'environnements stables. D'autres observations, par exemple la texture cristalline, corroborent la théorie selon laquelle la cristallisation se fait assez rapidement, à partir du centre de la cavité.

6.2 Modifications au modèle

La résolution de ce système se fait de manière similaire à celle des chapitres précédents, à deux différences près.

D'abord, le granite orbiculaire possédant une géométrie sphérique, il est encore possible de le résoudre en une dimension radiale, en modifiant les équations de diffusion de manière appropriée. Ainsi, par exemple, l'équation [2.24](#) devient

$$\partial_t C_i = \underbrace{\frac{1}{r^2(1-\phi)} \frac{\partial}{\partial r} \left[r^2(1-\phi) \hat{D}_i(\phi) \frac{\partial}{\partial r} C_i \right]}_{\text{transport}} \underbrace{- \frac{1}{v} \frac{\partial_t \phi_i}{1-\phi} + C_i \frac{\partial_t \phi}{1-\phi}}_{\text{réaction}}.$$

Deuxièmement, les différences dans la géométrie du système imposent différentes conditions initiales et aux frontières. Un schéma de ce système est présenté à la figure 6.2. L'axe d correspond à un point entre la cavité magmatique et le noyau. d_m est donc l'épaisseur de la cavité magmatique. $r = 0$ correspond au centre du noyau plus froid, de rayon r_n et de température T_{n0} . Le magma chaud, de température T_{m0} , remplit la cavité dont le rayon est défini par $r_c = r_n + d_m$, puis la bouillie de magma partiellement refroidie à T_{b0} se poursuit sur une grande distance, jusqu'à r_b . La diffusion du matériel ne se fait que dans le magma, supposant que l'évolution de la bouillie n'affecte pas le processus de cristallisation dans la cavité autrement qu'en offrant un contact plus froid. Par symétrie du système, la température au centre du noyau est sujet à une condition Neumann, alors que la température très loin est considérée constante. La concentration, quand à elle, est aussi sujette à une condition Neumann au front de cristallisation, défini tel que précédemment, et à l'interface avec la bouillie. Autrement dit,

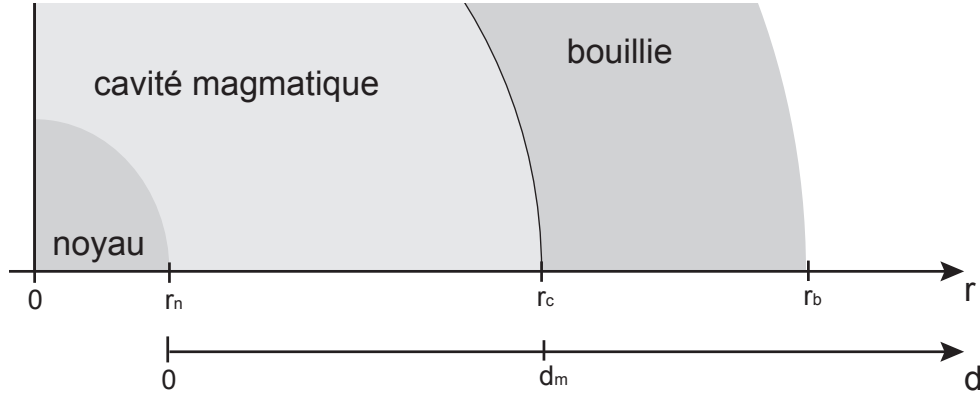


FIGURE 6.2 – Schéma de la géométrie utilisée pour la simulation du granite orbiculaire.

Conditions initiales :

$$\begin{aligned} T &= T_{n0} & 0 < r < r_n, \\ T &= T_{m0} & r_n < r < r_c, \\ T &= T_{b0} & r_c < r < r_b, \\ C_i &= C_{i0}. \end{aligned}$$

où $T_{n0} < T_{b0} < T_{m0}$.

Conditions aux limites :

$$\begin{aligned}\left. \frac{\partial T_i}{\partial r} \right|_0 &= 0, \\ T(\infty) &= T_{b0} \\ \left. \frac{\partial C_i}{\partial r} \right|_{r_n} &= 0, \\ \left. \frac{\partial C_i}{\partial r} \right|_{r_c} &= 0.\end{aligned}$$

6.3 Résultats des simulations

Les résultats des simulations pour le modèle de granite orbiculaire, tels que présentés ci-dessus, sont décrits dans cette section. Le modèle de prénucléation seul est d'abord considéré, suivi de celui incorporant le mûrissement d'Ostwald, afin de vérifier l'hypothèse selon laquelle ce dernier est nécessaire à la formation de ces motifs.

6.3.1 Cas de référence – sans mûrissement

Le tableau 6.1 indique les valeurs des constantes et paramètres utilisés pour les simulations du cas de référence de granites orbiculaires. Les constantes non spécifiées sont les mêmes que celles utilisées tout au long des chapitres précédents, et données au tableau 4.1. On remarque qu'on utilise une valeur de tension superficielle significativement plus petite, afin de tenir compte du rôle prédominant de la nucléation hétérogène dans ce type de géométrie. Un magma rhyolitique plutôt que basaltique peut aussi contribuer à justifier cette différence.

Le nombre de Lewis Le choisi pour le cas de référence est aussi plus bas que précédemment, valeur qui demeure réaliste. Ceci s'explique par le fait que l'on peut s'attendre à obtenir des résultats optimaux lorsque la diffusion de la chaleur se fait tranquillement.

Il est à noter que la taille du noyau et l'épaisseur de la bouillie ont été choisies de manière à être un chiffre rond dans l'espace non homogène adimensionalisé ζ , tel que défini à la section 3.2, ce qui explique que leurs valeurs dans l'espace réel semblent acquérir une précision arbitraire.

TABLE 6.1 – Constantes et paramètres utilisés pour les simulations de granites orbiculaires.

Paramètre	Symbole	Valeur	Unités
tension superficielle	σ	0.08	$\text{J m}^{-2} \text{ molécule}^{-1}$
volume moléculaire	v	1×10^{-28}	m^3
nombre de Lewis	Le	1	-
nombre de Stefan	St	0.1	-
concentration initiale en A	C_{A0}	60	%
température initiale du magma	T_{m0}	1400	K
température initiale de la bouillie	T_{b0}	1350	K
température initiale du noyau	T_{n0}	500	K
rayon de la cavité	r_c	7	cm
rayon du noyau	r_n	1.65	cm
épaisseur de la bouillie	$r_b - r_c$	2.57	m

La figure 6.3 illustre l'évolution de la fraction de solide dans le granite orbiculaire. Celle-ci se fait en deux étapes.

D'abord, assez rapidement, le noyau froid cause la solidification au centre de la cavité, proche de son interface avec le magma à $r = r_n$ (i.e. $d = 0$). La composante A subit une forte nucléation, due au choc thermique, causant une haute fraction de solide associée à des petits cristaux. Ceci cause un gradient de concentration qui permet la formation de bandes par précipitation périodique jusqu'à environ 1 cm du noyau. Durant ce temps, le contact avec la bouillie autour de la cavité cause aussi une forte nucléation sur la couche extérieure de la cavité, associée à quelques oscillations de très faible amplitude. La composante A commence aussi partiellement à cristalliser sur l'ensemble de la cavité, la température initiale du magma étant légèrement en bas de la température du liquidus. Toutefois, si l'on augmente T_{m0} afin d'éviter cet effet, l'effet du noyau froid est beaucoup moindre et il est difficile d'observer la formation des bandes.

Dans un deuxième temps, la chute de température due au noyau s'estompe assez rapidement et le gradient de température dû au contact avec la bouillie devient la seule force causant la cristallisation. Le front de cristallisation initié à la bouillie progresse tranquillement vers l'intérieur de la cavité, permettant aux oscillations de faible amplitude de se propager vers la gauche. Ce front rejoint éventuellement l'instabilité initialement causée par le contact avec le noyau et crée les oscillations les plus fortement prononcées.

Il est à noter que T_{b0} doit être suffisamment haute pour ne pas causer trop brutalement la solidification de la cavité et rendre négligeable les bandes d'intérêt proches du noyau. Elle doit toutefois aussi être assez basse pour que la température du système à l'équilibre soit sous le liquidus sur son ensemble, même après cristallisation partielle de la composante

sursaturée. Si l'on considère une température trop haute de la bouillie, de manière à ce que le contact à l'extérieur de la cavité ne soit pas suffisant pour engendrer la cristallisation par la périphérie, le système en entier ne cristallisera que partiellement. On obtiendrait alors une roche dont l'état final sera semblable à la deuxième étape de temps représentée à la figure 6.3 (1.95 h), sans la bande à 5 cm.

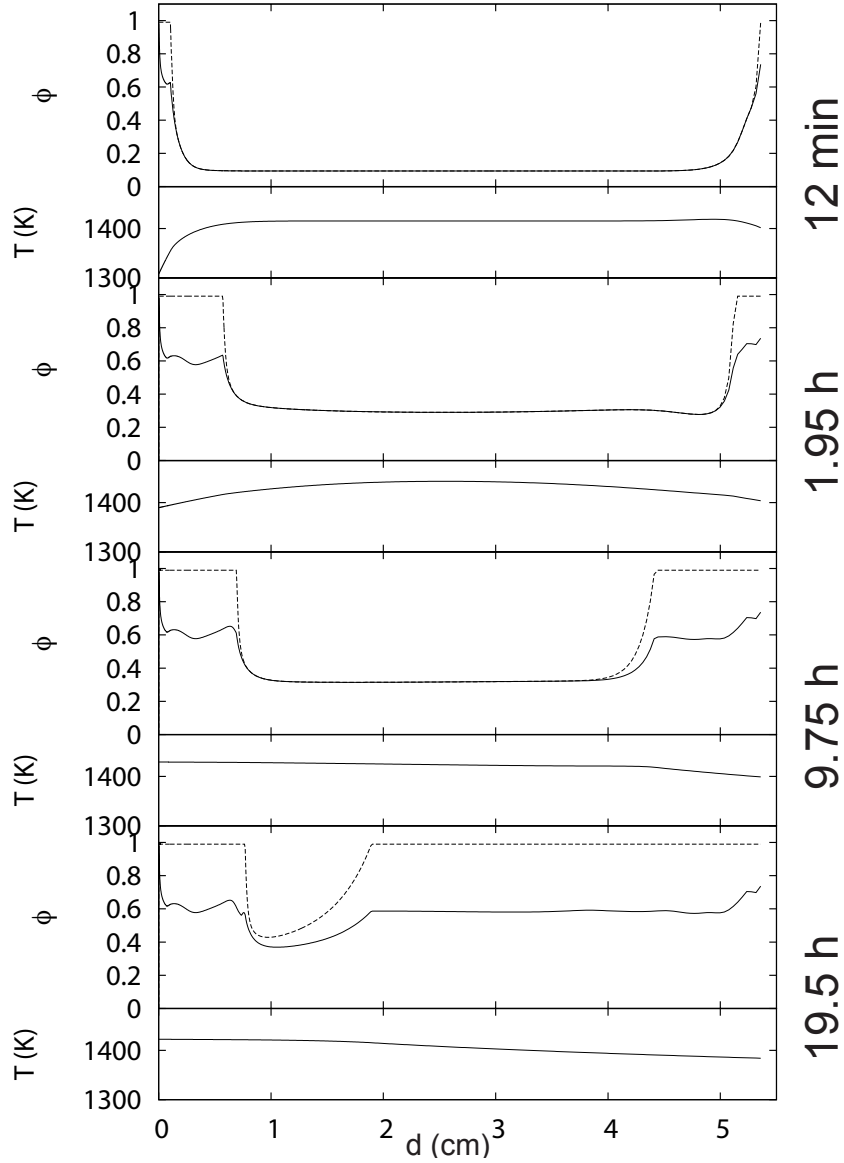


FIGURE 6.3 – Fraction de solide de A (courbe solide) et totale (courbe pointillée) et température à différentes étapes de la solidification du granite orbiculaire, pour le cas de référence.

Le profil final de la taille des grains et de la fraction de solide pour le cas de référence est représenté à la figure 6.4a. La fraction de solide est illustrée plus visuellement à la

figure 6.4b. On observe des oscillations significatives, mais faibles, de la composition proche du centre de la cavité, de l'ordre de 10%. Deux bandes claires sont formées par le contact avec le noyau, avant l'endroit de la rencontre entre les deux fronts de cristallisation. Ce petit nombre rend difficile l'analyse de leurs propriétés (p.ex. position, largeur, temps de formation).

D'autres oscillations, illustrées à la partie agrandie, résultent de la propagation lente du front de réaction partant de l'extérieur de la cavité et se dirigeant vers l'intérieur, d'amplitude très faible de l'ordre de 2%. Celles-ci sont toutefois très bien définies (tel que visible à la section agrandie) et suffisamment nombreuses (5 bandes de B) pour faire l'analyse des lois d'échelle. Pour ce qui est de la loi d'espacement, on obtient une droite bien définie, avec $R^2 = 0.996$:

$$X_{n+1} = 1.918X_n - 0.000355$$

où X_n représente la distance de la n -ième bande avec le contact avec la bouillie, à l'extérieur de la cavité. Ceci témoigne du mécanisme de Liesegang à leur origine.

Observant le profil de la taille des grains, on remarque d'abord que les rayons de A sont environ un ordre de grandeur plus petits que ceux de B. Ceci s'explique par le fait que la solidification de A se fait de manière beaucoup plus soudaine que celle de B. De plus, tel que mentionné précédemment, les cristaux au centre et à l'extrémité de la cavité sont beaucoup plus petits, dû au choc thermique avec le noyau ou la bouillie plus froids. Finalement, on constate la présence des bandes en termes de taille des grains de B, leur cristallisation lente ayant permis leur croissance lorsqu'une quantité de matériel était suffisante. Ces bandes suivent celles de la fraction de solide, avec un pic à l'endroit de la rencontre des fronts de cristallisation, i.e. à l'endroit où la solidification s'est fait le plus lentement.

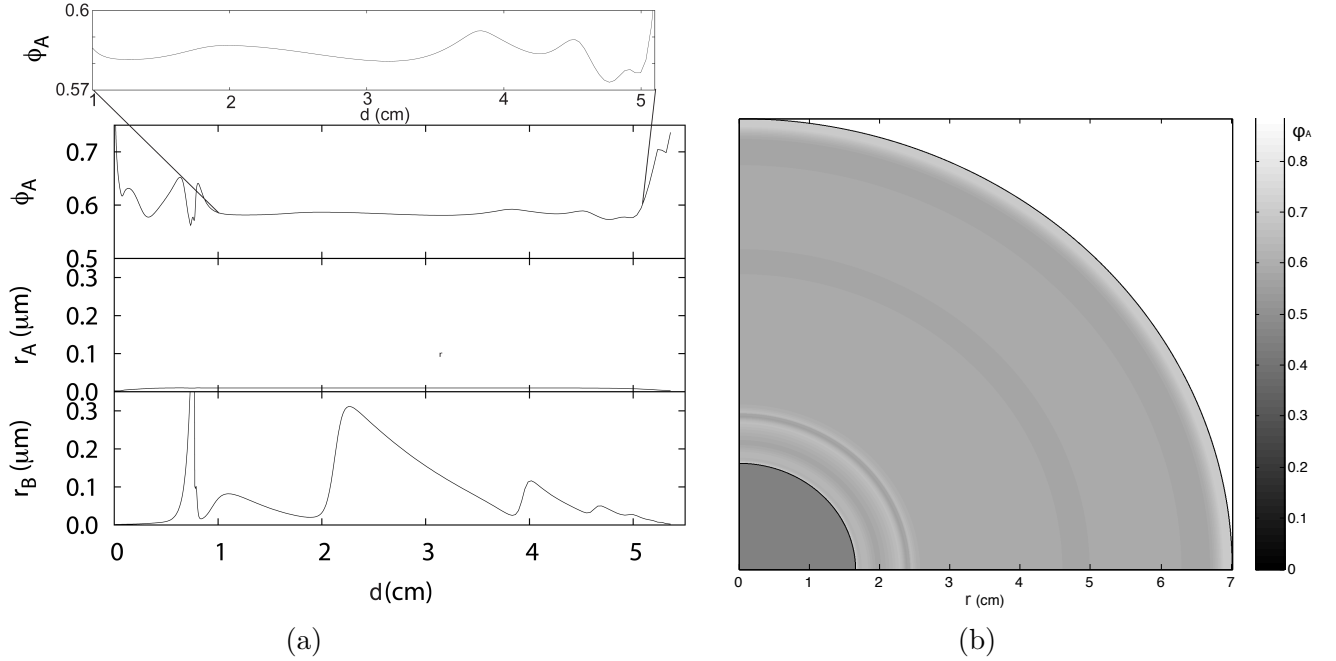


FIGURE 6.4 – Résultats finaux de la simulation pour le granite orbiculaire, avec les paramètres du cas de référence donnés au tableau 6.1. (a) Fraction de solide finale de A et taille des cristaux de A et B. L’agrandissement de ϕ_A met en évidence les oscillations de faible amplitude provenant de l’extérieur de la cavité. À des fins de comparaison, l’échelle pour les rayons de A et de B est la même, bien que la taille de A soit largement plus petite. (b) Représentation de la coupe du granite orbiculaire selon sa composition. Le minéral A est représenté en blanc, le B en noir. Les lignes noires à $r=1.65$ et 7 cm indiquent les limites du noyau et du granite orbiculaire.

6.3.2 Influence des paramètres – sans mûrissement

Pour le granite orbiculaire, la plage de paramètres menant à des résultats réalistes est beaucoup plus petite que pour l’intrusion. Par exemple, tel que mentionné précédemment, les valeurs de température sont assez restreintes, afin de permettre la génération de bandes autour du noyau : une trop basse température cause une solidification trop soudaine pour leur développement, et une trop haute température ne permet pas la cristallisation de l’ensemble du système. De plus, différentes valeurs de concentration initiale du magma ont été examinées. Si C_{A0} est trop grand, la cristallisation de A est trop rapidement enclenchée. Si elle est trop petite, la faible différence de sursaturation entre les composantes rend difficile l’observation des bandes. $C_{A0} = 60\%$ semble donc la valeur idéale, dans les conditions choisies du système. Dans cette section, on restreindra donc l’étude à un changement dans les nombres de Lewis et Stefan.

La figure 6.5 représente différents cas. On remarque que, de manière générale, l’ampli-

tude des oscillations est très faible, et augmente avec le nombre de Lewis qui diminue et le nombre de Stefan qui augmente. Cette tendance s’explique par le fait que, tel qu’attendu, Le bas implique une variation lente du gradient de température, permettant aux bandes de se développer. Il est aussi cohérent que les oscillations soient favorisées par une grande libération de chaleur latente, soit un grand St , puisque ceci cause une instabilité dans le profil de température.

Le temps de cristallisation t_f du système entier varie très fortement selon les valeurs de St et Le choisies. Celui-ci augmente avec Le qui diminue et St qui augmente, tout comme l’amplitude des bandes, ce qui est cohérent avec le fait que les oscillations plus prononcées sont celles ayant eu le temps de croître. Pour $Le = 10000$ et $St = 0.1$, $t_f \approx 1.5$ heure, alors que pour $Le = 1$ et $St = 3$, $t_f \approx 188$ jours. Ceci peut sembler très long pour la cristallisation d’une petite cavité d’une dizaine de centimètres de diamètre, mais il ne faut pas oublier que l’on considère que celle-ci est entourée d’une bouillie à température constante de 1350 K ; une telle chaleur ne favorise pas une solidification rapide.

On constate toutefois que le nombre de bandes d’amplitude significative demeure bas pour tous les cas, atteignant un maximum pour le cas de référence. L’instabilité causée par le contact avec le noyau froid ne se propage pas suffisamment pour causer une série de bandes jusqu’à l’extérieur de la cavité, peu importe les paramètres choisis. De plus, la bande la plus fortement prononcée est toujours celle se formant à la rencontre entre les fronts de cristallisation, où le profil de concentration est le plus perturbé. Cette forte bande n’est donc pas due à un processus de Liesegang provenant du noyau, mais d’un contact plus froid à l’extérieur de la cavité. Tout ceci, n’étant pas cohérent avec les observations d’occurrences naturelles, confirme qu’un processus de prénucléation seul ne peut expliquer la formation de granites orbiculaires.

6.3.3 Effet du mûrissement

Cas de référence

Les résultats des simulations pour le cas de référence du granite orbiculaire avec mûrissement ($\delta = 1$) sont présentés à la figure 6.6. Comparant ces résultats avec ceux sans mûrissement ($\delta = \infty$) à la figure 6.4, on remarque que, avec mûrissement, on obtient une roche dont la structure des bandes est moins détaillée, mais avec une amplitude bien plus grande.

La présente section vise à détailler cette transition et établir si le mûrissement pourrait

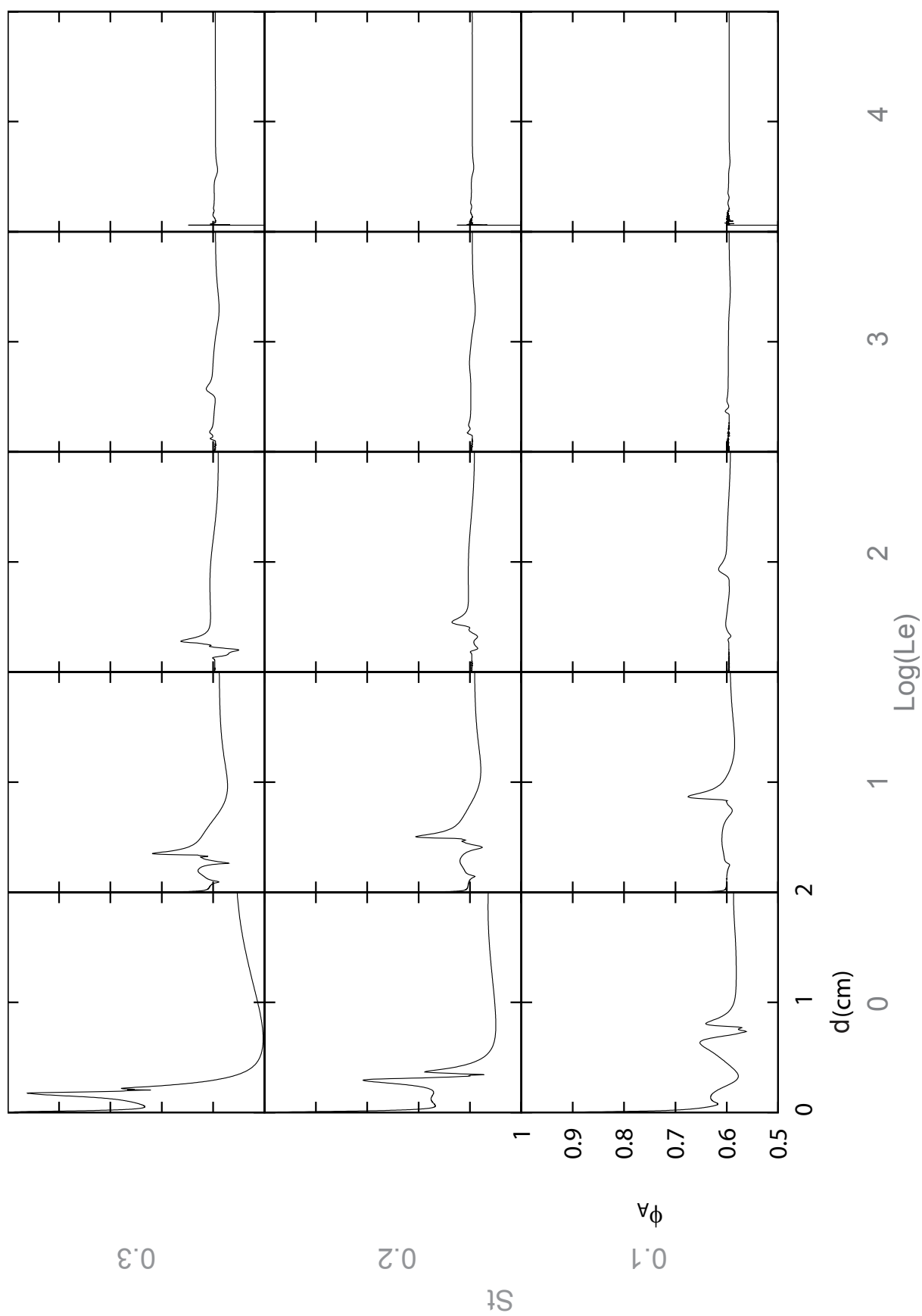


FIGURE 6.5 – Composition finale du granite orbiculaire pour différents nombres de Lewis et de Stefan, sans mûrissement.

expliquer l'apparition de bandes dans les granites orbiculaires, tel que postulé par Wang et Merino (1993).

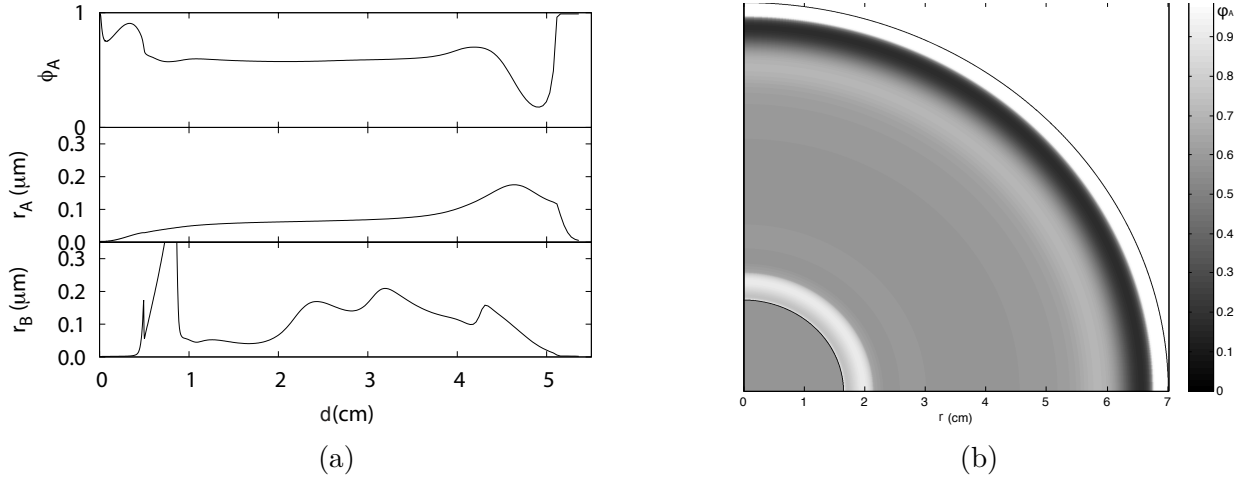


FIGURE 6.6 – Résultats finaux de la simulation pour le granite orbiculaire, avec les paramètres du cas de référence donnés au tableau 6.1 et $\delta = 1$. (a) Fraction de solide de A et taille des cristaux de A et B pour le granite orbiculaire résultant. (b) Représentation de la coupe du granite orbiculaire selon sa composition. Le minéral A est représentée en blanc, le B en noir. Les lignes noires à $r = 1.65$ et 7 cm indiquent les limites du noyau et du granite orbiculaire.

Considérons d'abord l'influence du degré de mûrissement sur la fraction de solide de A, toujours pour le cas de référence. La figure 6.7 représente ϕ_A pour la roche finale, pour différents δ . Contrairement au cas de l'intrusion, on ne constate pas de transition nette dans le comportement général du système. Alors que, au chapitre précédent, on observait deux régimes marqués par un différent ensemble de caractéristiques, on obtient ici un changement graduel de ces caractéristiques.

D'abord, on observe une diminution importante de la magnitude des bandes avec δ qui augmente. Pour $\delta = 1$, le changement dans la composition au centre et à la périphérie de la cavité est d'environ 45% et 85%, respectivement, alors que, sans mûrissement, celui-ci est de l'ordre de 10%. Cette transition se fait progressivement ; deux régimes distincts ne peuvent être identifiés. Tout comme pour l'intrusion, et conformément à nos attentes, le mûrissement favorise donc la croissance des bandes lorsque le système est grandement instable.

De plus, de manière semblable à l'intrusion, avec un mûrissement plus fort, les bandes ne se propagent pas et l'instabilité s'atténue rapidement, ce qui se traduit par un profil avec moins de structure. Ceci est particulièrement évident lorsqu'on considère les bandes

de Liesegang de faible amplitude générées par le contact avec la bouillie lorsque $\delta = \infty$ et dont nous avons discuté plus haut. Ce motif disparaît progressivement lorsque δ diminue, l'instabilité qui cause la forte bande à la paroi extérieure de la cavité ne permettant plus de générer une série de bandes mesurables.

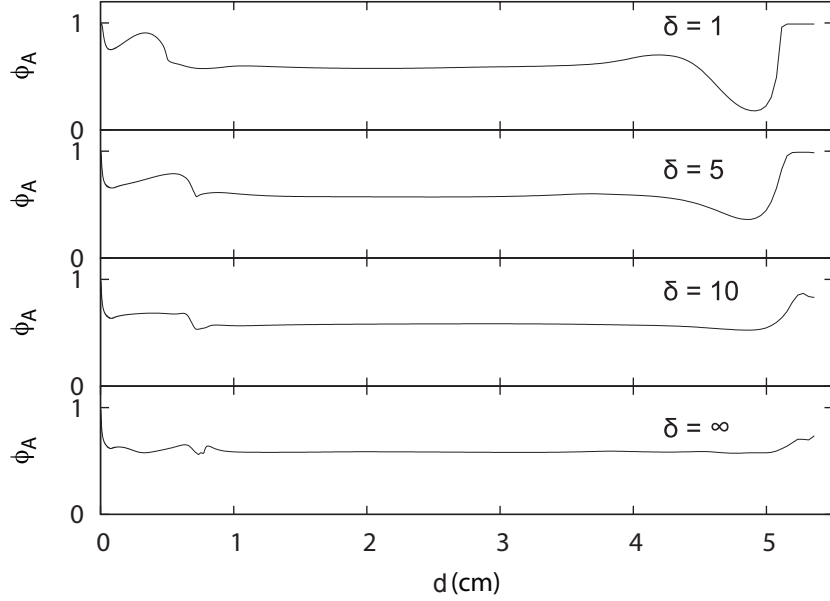


FIGURE 6.7 – Fraction de solide de A pour le cas de référence du granite orbiculaire une fois cristallisé, avec différents degrés de mûrissement ($\delta = 1, 5, 10, \infty$).

Examinons à présent la variation de la taille des grains selon le degré de mûrissement. Pour ce qui est de r_A , dont les profils pour différents δ sont présentés à la figure 6.8a, on observe deux changements significatifs. En premier lieu, la taille des rayons varie sur un ordre de grandeur. Lorsque le mûrissement est plus fort, les cristaux de plus grande taille sont stables, ce qui peut expliquer cette observation. En second lieu, lorsque δ diminue, les grains dans la région vers l'extérieur de la cavité sont plus gros, alors que le profil est relativement plat pour un mûrissement faible. Lorsque le mûrissement est fort, une bande de A pur est créée à la périphérie de la roche, appauvrissant le magma à ses abords. La cristallisation de A se fait donc plus tranquillement, permettant une croissance plus prononcée dans cette région spécifique.

Les profils de r_B pour différents δ (figure 6.8b) démontrent un comportement bien différent. D'abord, on remarque que l'ordre de grandeur moyen de la taille des cristaux de B varie moins que pour A. Le pic plus prononcé à la rencontre des fronts de cristallisation demeure aussi. Toutefois, on observe que celui-ci forme un doublet de mieux en mieux défini avec le mûrissement qui augmente. Aussi, les oscillations en r_B produites par le mécanisme de Liesegang à partir de l'extérieur de la cavité demeurent visibles, même

lorsque le mûrissement est suffisant pour que ces mêmes bandes en composition ne le soient plus. Leur forme change quelque peu, mais le motif est encore présent. Cela peut s'expliquer par le fait que les bandes du profil de ϕ_A deviennent de trop petite amplitude pour être perceptibles, mais le mûrissement permettra aux très petites variations de la taille des grains de B de se faire amplifier.

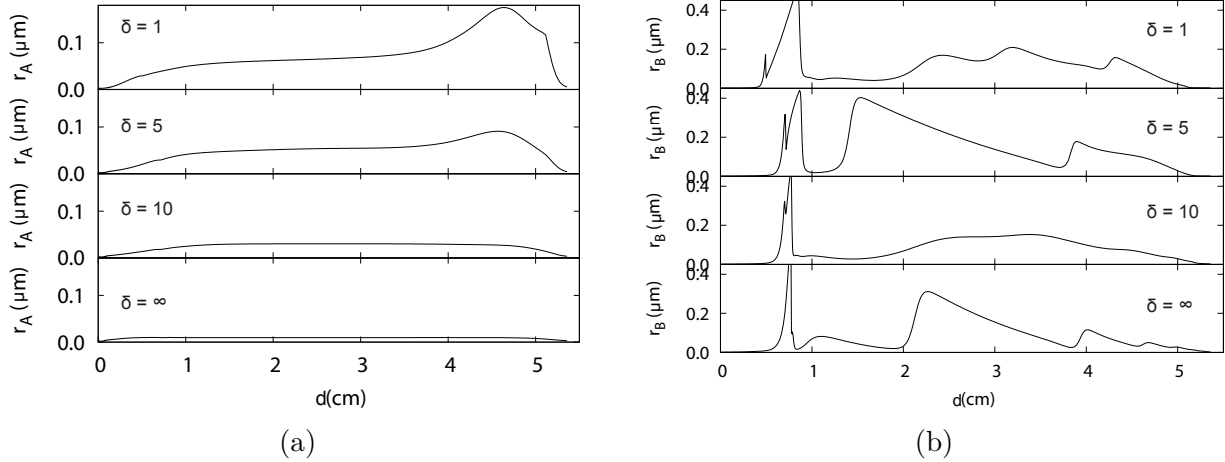


FIGURE 6.8 – Taille moyenne des cristaux pour le cas de référence du granite orbiculaire une fois cristallisé, avec différents degrés de mûrissement ($\delta = 1, 5, 10, \infty$). (a) Taille des cristaux de A. (b) Taille des cristaux de B.

Influence des paramètres

En variant les nombres de Lewis et Stefan, le comportement général de ϕ_A observé avec mûrissement ($\delta = 1$, illustré à la figure 6.9) demeure le même que celui observé sans mûrissement : l'amplitude des bandes augmente avec Le qui diminue et St qui augmente. L'intensité des bandes est toutefois ici beaucoup plus grande. En effet, sans mûrissement, pour les cas moins favorables (p.ex. $Le = 10^4$, $St = 0.1$), les seules variations visibles sont dues à la rencontre des fronts de cristallisation et sont d'environ 1%. Lorsque $\delta = 1$, pour le même cas, le mûrissement permet une amplification de l'instabilité créée par le gradient de température aux abords du noyau, créant une bande d'amplitude non négligeable, de plus de 40%.

Il demeure toutefois clair que, même en variant ces paramètres, les bandes ne se propagent pas au-delà de 1 cm.

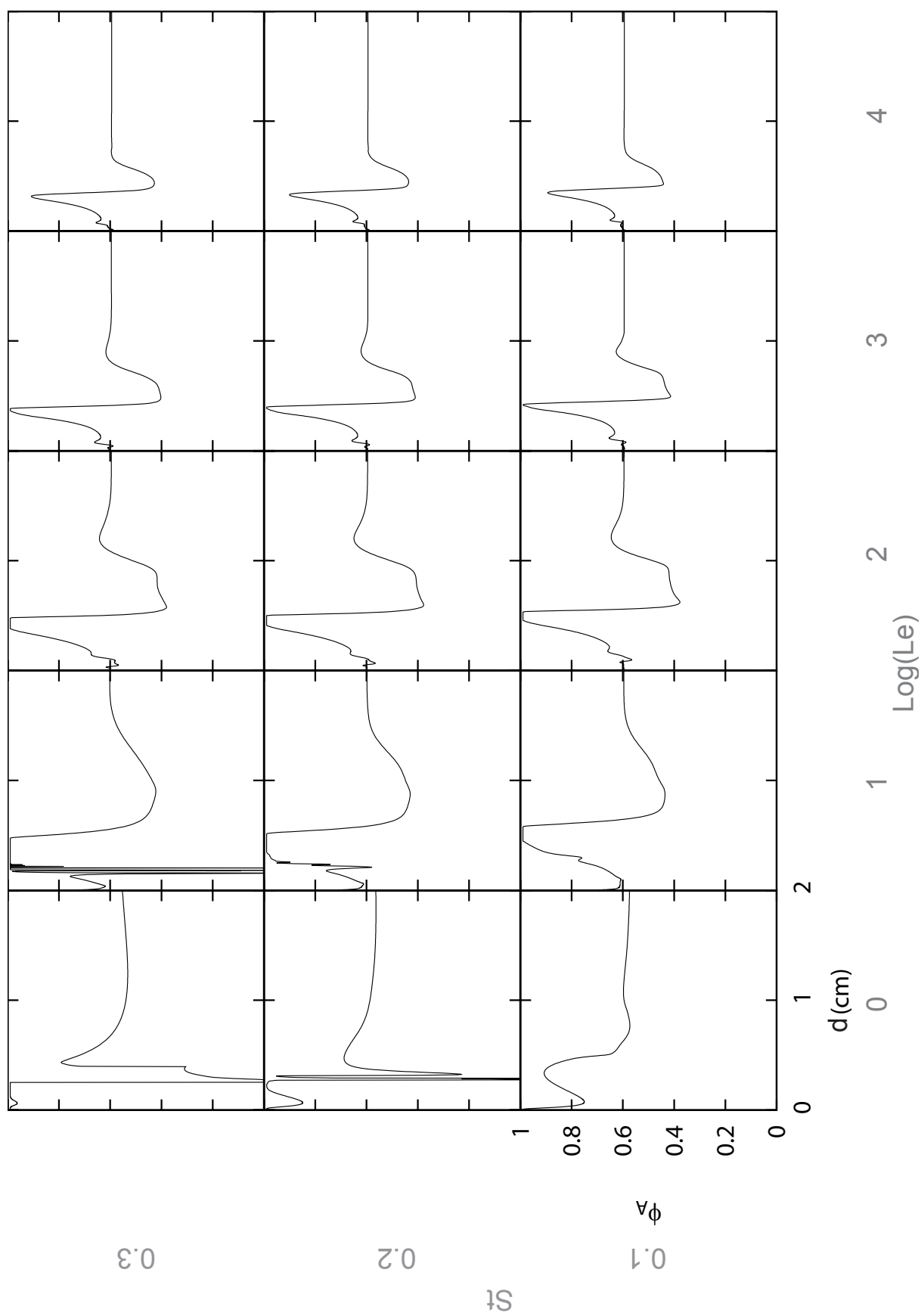


FIGURE 6.9 – Composition finale du granite orbiculaire pour différents nombres de Lewis et de Stefan, avec mûrissement ($\delta = 1$).

6.4 Résumé

Les résultats précédents démontrent qu'il est possible d'utiliser le modèle présenté dans ce document pour obtenir un motif auto-organisé dans les granites orbiculaires. Toutefois, de nombreuses caractéristiques observées dans les occurrences naturelles ne peuvent être reproduites. Les oscillations produites dans le profil de composition du granite orbiculaire sont de trop faible amplitude pour être réalistes. De plus, la présence d'un petit noyau froid devrait engendrer la cristallisation de l'ensemble du système sursaturé. Or, dans notre modèle, son impact se limite à l'ordre de 1 cm du noyau, le reste de la cavité cristallisant de l'extérieur vers l'intérieur, suite au refroidissement engendré par la bouillie.

Le mûrissement a été proposé comme solution potentielle à ces problèmes. Nos résultats nous démontrent que, effectivement, celui-ci permet non seulement le développement des bandes, mais produit aussi des bandes beaucoup plus claires, d'amplitude plus réaliste. Toutefois, conformément aux résultats obtenus pour l'intrusion, le mûrissement ne contribue pas à la propagation des bandes.

Une analyse de l'influence des paramètres démontre l'importance d'avoir un nombre de Lewis bas, et, dans une moindre mesure, un nombre de Stefan haut, afin de produire des bandes bien définies. Ceci est toutefois moins capital lorsque le mûrissement est actif.

Une explication possible de la divergence entre les résultats des simulations et les observations peut être reliée au traitement numérique. À la manière d'un verre d'eau sous-refroidi auquel on inflige un choc, les cristaux du granite orbiculaire devraient croître radialement à partir du noyau et causer une cristallisation assez rapide de l'intégralité de la cavité. Or, la croissance des cristaux est limitée à l'intérieur d'une cellule spatiale. Par exemple, il arrive qu'un cristal ait un plus grand volume que la cellule qui le contient. Physiquement, la cellule adjacente devrait donc incorporer une partie du cristal qui peut alors continuer d'y croître, mais la discrétisation de ce processus continu ne le permet pas. Les cellules sont numériquement traitées comme indépendantes au niveau de la réaction. Il est possible que ceci entrave l'avancement du cristal de manière critique à la solidification du système en entier.

En bref, le mécanisme proposé ici, particulièrement en considérant le mûrissement, semble donc viable et permet la formation de bandes de Liesegang dans un granite orbiculaire. Par contre, notre modèle semble incomplet : d'autres processus doivent être considérés afin de tenir compte des nombreuses observations naturelles, particulièrement quant à la propagation des bandes à partir du noyau. Par exemple, de nombreuses constantes et paramètres ont été considérés égaux pour les minéraux A et B. Une asymétrie entre

les composantes pourrait contribuer à l'instabilité permettant la formation des bandes. L'ajout de fluctuations stochastiques dans le système serait aussi plus réaliste, de même que la présence de volatiles affectant la température du liquidus.

Chapitre 7

Conclusion

Les résultats du chapitre 4 démontrent qu'un modèle simple de prénucléation suffit à justifier la formation de bandes dans une intrusion. La rétroaction entre la cinétique de cristallisation, soit la nucléation et croissance des cristaux, et la diffusion de la chaleur et du matériel mène à une ségrégation minéralogique et texturale visible dans les profils de composition et de taille moyenne des grains de la roche finale. Différents types de bandes sont formés, selon les paramètres contrôlant la réaction, soient les nombres de Lewis et de Stefan, variant sur plusieurs ordres de grandeur, du millimètre (type court) au décimètre (type long). Les deux types de bandes peuvent être simultanément observés dans une roche (type multiple). Ces résultats corroborent ceux obtenus par Toramaru et Matsumoto (2012) avec un modèle semblable, quoique moins précis. De plus, on remarque, dans certaines conditions, la formation de bandes satellites ou doublets. Toutes ces caractéristiques sont cohérentes avec celles observées dans les occurrences naturelles.

Les lois d'échelle observées dans les bandes de Liesegang classiques se retrouvent également dans les résultats de nos simulations. Bien que l'interprétation quantitative des différents paramètres caractéristiques de ces lois reste à établir, leur interprétation qualitative, dans le contexte d'un système magmatique, reste cohérente avec les relations connues. De plus, le paramètre P caractéristique de la loi d'espacement obtenu des simulations est comparable à celui mesuré sur le terrain.

La concordance sans précédent de ces résultats avec les observations indique que, non seulement un mécanisme de prénucléation peut être à l'origine des intrusions litées, mais aussi que notre modèle reproduit de manière satisfaisante ce processus et fournit donc une base solide pour étudier différents cas jusqu'à présent inexplorés.

L'effet des processus de postnucléation a pu être étudié au chapitre 5 grâce à l'ajout

du mûrissement à notre modèle, avec une intensité variable. Les types de bandes (court, long, multiple) selon les différents paramètres demeurent essentiellement les mêmes que précédemment, la différence principale concernant le nombre de Stefan qui n’affecte que les détails des profils, et non le type de motif produit. On observe tout de même que l’ajout de mûrissement affecte l’apparence qualitative des bandes, particulièrement au niveau du profil de la taille des cristaux, qui prend une forme caractéristique. On remarque aussi une atténuation des bandes et l’atteinte d’un état stable après une certaine distance, lorsque le mûrissement est suffisant. De plus, on constate que les bandes se rapprochent les unes des autres avec un mûrissement plus prononcé, tendance qu’il est possible d’étudier via la loi d’espacement. La valeur de P qui caractérise cette dernière prend aussi des valeurs plus proches des valeurs expérimentales, indiquant que le mûrissement doit effectivement jouer un rôle dans ces systèmes.

Au chapitre 6, le modèle a été appliqué aux granites orbiculaires afin d’étudier si un mécanisme de Liesegang peut justifier la formation de motifs s’y retrouvant. Les résultats obtenus sans tenir compte du mûrissement démontrent que, effectivement, un processus de prénucléation peut causer des oscillations dans les profils de concentration et de taille des grains. Toutefois, ces variations sont de faible amplitude, et ne se propagent pas sur toute la longueur du système à partir du noyau. Cependant, une grande partie de la solidification se fait de l’extérieur vers l’intérieur de la cavité. L’ajout de mûrissement cause l’augmentation de l’amplitude des bandes à une échelle plus réaliste, mais aussi leur rapprochement, et ne contribue pas à leur propagation à partir du noyau. On en conclut donc qu’un mécanisme de précipitation périodique doit contribuer à la création de motifs dans les granites orbiculaires, mais celui-ci n’est pas suffisant. Certains éléments négligés dans cette étude doivent jouer un rôle essentiel à leur formation.

De nombreuses suppositions et approximations ont été faites dans ce travail afin de simplifier notre analyse et la réduire à ses composantes essentielles. Bien qu’il semble raisonnable de considérer que plusieurs d’entre elles n’ont pas d’impact significatif sur les résultats, le développement de certaines autres pourraient mener à des observations intéressantes et compléter les conclusions tirées plus haut. Notamment, les paramètres caractérisant les composantes A et B ont été posés égaux, pour des raisons de simplicité. Or, il serait plus réaliste que A et B aient des propriétés différentes. Aussi, le système a été traité en une dimension. En vue d’incorporer au modèle certains processus qui ne sont pas spatialement symétriques, il serait pertinent de généraliser notre modèle en trois dimensions.

Toujours dans le contexte de l’étude de la formation de bandes de Liesegang dans les

corps ignés, certaines améliorations pourraient être apportées à notre modèle. D’abord, il serait intéressant d’étudier l’influence de fluctuations stochastiques dans le magma. Celles-ci, créant des instabilités pouvant être amplifiées par la rétroaction positive, ont le potentiel de générer des comportements intéressants (Katsev & L’Heureux 2001). Ensuite, de nombreuses roches ignées étant considérées comme constituant principalement un assemblage de trois minéraux, l’inclusion d’une troisième composante s’avèrerait une piste très prometteuse. Un modèle à trois composantes, plus réaliste, dont les résultats seraient plus facilement interprétables en termes géologiques, permettrait une meilleure évaluation du processus de Liesegang en assurant une comparaison plus directe avec les observations naturelles. Enfin, il serait aussi intéressant d’inclure la présence de volatiles et d’eau en solution dans le magma. Celles-ci, affectant la température du liquidus et la viscosité du magma (donc les coefficients de diffusion), pourraient contribuer à l’instabilité du système à l’origine du motif.

Les problèmes subsistants pour le granite orbiculaire pourraient, du moins en partie, être résolus par ces modifications.

L’implémentation de certaines de ces modifications, dont l’utilisation de différentes propriétés pour les composantes et l’ajout d’un troisième minéral, pourrait se faire assez directement dans le modèle numérique utilisé et devrait donc constituer la suite naturelle de ce travail.

Tel que discuté au chapitre 1, acquérir une meilleure connaissance du mécanisme de Liesegang dans le contexte des corps ignés n’est que la première étape vers une compréhension globale des processus oeuvrant dans les chambres magmatiques. Parmi les nombreux mécanismes dont il faudrait tenir compte dans un modèle complet et général figurent par exemple la précipitation des cristaux, la convection, les courants d’advection et la compression. Beaucoup de travail reste donc à accomplir dans le domaine.

ANNEXES

Annexe A

Code

Cette annexe contient un exemple du code en C++ utilisé pour les simulations, avec les fonctions pertinentes. Il s'agit du code pour le profil linéaire, sans mûrissement.

```
#include <iostream>
#include <cstdio>
#include <fstream>
#include <cstdlib>
#include <cmath>

using namespace std;

// définition des constantes
#define tsA 0.12 // tension de surface
#define dUA 1e-19 // énergie d'activation
#define dhA 1.33e-19 // enthalpie de fusion
#define DOA 4e-9 // coefficient de diffusion
#define betaBA 1 // rapport des coefficients cinétique (croissance)
#define TLA0 1.65e3 // température du liquidus pur
#define tsB 0.12
#define dUB 1e-19
#define dhB 1.33e-19
#define DOB 4e-9
#define TLB0 1.65e3
#define l 1e-9 // libre parcours moyen
#define v 1e-28 // volume d'une molécule
#define k 1.38e-23 // constante de Boltzmann
#define hp 6.62606957e-34 // constante de Planck

#define epsA double(dUA/(k*TLA0))
#define epsB double(dUB/(k*TLA0))
#define delA double(dhA/(k*TLA0))
#define delB double(dhB/(k*TLA0))
#define V0 1e-11 // taux de croissance caractéristique
#define eta double(16*M_PI/3*pow(tsA,3)*pow(v,2)/pow(k*TLA0,3))
#define alphaA double(32*pow(v,3)*1*exp(-epsA)/hp/V0 *pow(tsA,9.0/2.0)/
```

```

pow(k*TLA0, 7.0/2.0))
#define alphaB double(32*pow(v,3)*1*exp(-epsB)/hp/V0 *pow(tsa,9.0/2.0)/
pow(k*TLA0, 7.0/2.0))

// définition des parametres du système
#define T0 double(1400) // température du magma
#define TL double(1100) // température de la roche
#define Le 100 // nombre de Lewis
#define StA 0.1 // nombres de Stefan
#define StB 0.1 //
#define CA0 double(0.6) // concentration initiale
#define D 0.17 // étalement du gradient initial de T

// conditions numeriques
#define lroche 300 // longueur de la roche-mère
#define lmagma 1654 // longueur du magma
#define dt 0.001 // pas temporel
#define dz 0.01 // pas spatial
#define p 1.686 // distribution spatiale non-uniforme
#define pg 0.328 // à gauche de l'interface
#define tmax 1000000000 // temps maximal du programme
#define enr 1000 // frequence d'enregistrement - enr/dt doit être entier

#define N lmagma+lroche
#define M 11

void der(double d[]){
// dérivée de la fonction de distribution spatiale
double x;

for(int i=0;i<lroche; i++){
x=dz*(i-lroche)/pg;
d[i]=1/cosh(x);
}
for(int i=lroche;i<=N+1; i++){
x=dz*(i-lroche)/p;
d[i]=1/cosh(x);
}
x=dz*(-1-lroche)/p; //d[-1] va dans d[N+2]
d[N+2]=1/cosh(x);
return;
}

void cinetique( double cin[], double CA, double CB, double T, double phi){
// fonction qui calcule theta_L, rc, V et J (A et B)
if(CA<1e-8){cin[0]=0; cin[1]=0; cin[2]=0; cin[3]=0;}
//si concentration est nulle, pas de cristallisation
else{
if(phi<0.99) cin[0]=1.0/(1-k*TLA0*log(CA)/dhA);
else cin[0]=1/((1+k*TLA0/dhA*log(exp(dhA/(k*TLB0) *(1-TLB0/TLA0))+1)));
// si tout cristallisé, T_L=eutectique
cin[1]=1/delA *cin[0]/(cin[0]-T);
cin[2]=exp(epsA-epsA/T)*pow(epsA+delA,1+epsA/delA)/(delA*pow(epsA,epsA/delA))*
(1-exp(-delA*(cin[0]-T)/(T*cin[0])));

```

```

cin[3]=alphaA*sqrt(T)*pow(CA,2)*exp(epsA*(1-1/T))*exp(-eta/pow(delA,2)*
pow(cin[0],2)/(T*pow(cin[0]-T,2)));
}
if(CB<1e-8){cin[4]=0; cin[5]=0; cin[6]=0; cin[7]=0;}
else{
if(phi<0.99) cin[4]=TLB0/TLA0/(1-k*TLB0*log(CB)/dhB);
else cin[4]=1/(1+k*TLA0/dhA*log(exp(dhA/(k*TLB0) *(1-TLB0/TLA0))+1));
cin[5]=1/delB *cin[4]/(cin[4]-T);
cin[6]=betaBA*exp(epsA-epsB/T)*pow(epsA+delA,1+epsA/delA)/
(delA*pow(epsA,epsA/delA))*(1-exp(-delB*(cin[4]-T)/(T*cin[4])));
cin[7]=alphaB*sqrt(T*tsB/tsA)*pow(CB,2)*exp(epsB*(1-1/T))*exp(-eta*pow(tsB/tsA,3)/
pow(delB,2)*pow(cin[4],2)/(T*pow(cin[4]-T,2)));
}

if(cin[0]<T) cin[3]=0; //si T>TL, nucleation nulle
if(cin[4]<T) cin[7]=0;
if ((!isfinite(cin[0]))||(!isfinite(cin[1]))||(!isfinite(cin[2]))||
(!isfinite(cin[3]))){cout<<"cinétique a buggé!(1)\n"<<T; exit(1);} // débuggage
if ((!isfinite(cin[4]))||(!isfinite(cin[5]))||(!isfinite(cin[6]))||
(!isfinite(cin[7]))){cout<<"cinétique a buggé!(2)\n"; exit(1);} // débuggage
return;
}

void lambdapT(double d[], double lamdap[], double lamdam[]){
// calcule les lambda_+/- pour la température
double lam=Le*dt/(4*dz*dz); // tient compte de la demi-etape de temps

for(int i=1;i<=N;i++){
lamdam[i]=lam*d[i]*(d[i]+d[i-1])/2;
lamdap[i]=lam*d[i]*(d[i]+d[i+1])/2;
}
lamdam[0]=lam*d[0]*(d[0]+d[N+2])/2;
lamdap[0]=lam*d[0]*(d[0]+d[1])/2;
return;
}

void BT(double x[], double T[], double lp[], double lm[]){
// calcule la matrice B*T
x[0]=T[0]; //conditions dirichlet
//x[0]=(1-lm[0]-lp[0])*T[0]+(lm[0]+lp[0])*T[1]; //conditions neumann

for(int i=1; i<N; i++) x[i]=lm[i]*T[i-1]+(1-lm[i]-lp[i])*T[i]+lp[i]*T[i+1];

x[N]=(lm[N]+lp[N])*T[N-1]+(1-lm[N]-lp[N])*T[N]; //conditions neumann
return;
}

void tridagT(double T[], double r[], double lp[], double lm[]){
// inverse la matrice A pour résoudre AT^{n+1}=BT^n
double a[N+1], b[N+1], c[N+1];

b[0]=1; // conditions dirichlet
c[0]=0;
// b[N]=1;

```

```

// a[N]=0;

// b[0]=1+lm[0]+lp[0]; //conditions neumann
// c[0]=-lm[0]-lp[0];
b[N]=1+lm[N]+lp[N];
a[N]=-lm[N]-lp[N];

for(int i=1;i<N;i++){ // diagonales de A
a[i]=-lm[i];
b[i]=1+lm[i]+lp[i];
c[i]=-lp[i];
}

// algorithme de Thomas pour solutionner
double g[N], h[N], denom;

g[N-1]=-a[N]/b[N];
h[N-1]=r[N]/b[N];

for(int i=N-2;i>=0;i--){
denom=b[i+1]+c[i+1]*g[i+1];
if(abs(denom)<=1e-77) {cout<<"tridag a echoue\n";exit(1);}
g[i]=-a[i+1]/denom;
h[i]=(r[i+1]-c[i+1]*h[i+1])/denom;
}

T[0]=(r[0]-c[0]*h[0])/(b[0]+c[0]*g[0]);
for(int i=1;i<=N;i++){
T[i]=T[i-1]*g[i-1]+h[i-1];
}
return;
}

double inter(double xin[], double yin[], int end, double x){
// interpolation de Lagrange
double interr=0, lambda[end];
int i,j;

for(i=0;i<end; i++){
lambda[i]=1;
for(j=0;j<end;j++){
if(i!=j) lambda[i]=lambda[i]*((x-xin[j])/(xin[i]-xin[j]));
}
interr=interr+(yin[i]*lambda[i]);
}
return interr;
}

void lambdapmC(double var[][lmagma+1], double d[], double lambdaplus[],
double lambdamoins[], int zf){
// calcul de lambda_+/- pour la concentration (demie-étape de temps considérée)
int i, ln=10;
double dphi, phin[lmagma+3], dn[lmagma+3], cin[4], x, in[2][10];
double CA, CB, T;

```

```

for (i=zf; i<=lmagma; i++){ // calcul de ce qu'on a besoin pour calculer les lambda
CA=var[1][i]; CB=var[6][i]; T=var[0][i];
cinetique(cin, CA, CB, T, var[2][i]+var[7][i]);
dphi=4*M_PI/3 *pow((1-var[2][i]-var[7][i]),2)*(cin[3]*pow(cin[1],3)+cin[7]*
pow(cin[5],3))+4*M_PI*(cin[2]*var[3][i]+cin[6]*var[8][i])*(1-var[2][i]-var[7][i]);
phin[i]=(var[2][i]+var[7][i])+dt/2 *dphi; // phi estimé à l'étape suivante
if (phin[i]>=1) phin[i]=0.99; // si estimation pas réaliste
dn[i]=pow((1-phin[i]),1.14)*exp(dUA*(1-1/var[0][i])/(k*TLA0)); // d estimé à n+1/2

if((!isfinite(phin[i])) || (!isfinite(dn[i]))) {cout<<"erreur calcul phin
ou dn\n";exit(1);} // débuggage
}

for (i=zf+1; i<lmagma; i++){ // calcul des lambda pour tout i sauf extrémités
lambdaplus[i]=dt/(4*dz*dz)*(1-(phin[i]+phin[i+1])/2)*(dn[i]+dn[i+1])/2/
(1-phin[i])*d[i+lroche]*(d[i+lroche]+d[i+1+lroche])/2;
lambdamoins[i]=dt/(4*dz*dz)*(1-(phin[i]+phin[i-1])/2)*(dn[i]+dn[i-1])/2/
(1-phin[i])*d[i+lroche]*(d[i+lroche]+d[i-1+lroche])/2;
}

//extremities: on interpole pour trouver lambda+/-
for(i=1; i<=ln; i++) in[0][i-1]=(zf+i)*dz;
for(i=1; i<=ln; i++) in[1][i-1]=lambdaplus[zf+i];
lambdaplus[zf]=inter(in[0], in[1], ln, zf*dz);
for(i=1; i<=ln; i++) in[1][i-1]=lambdamoins[zf+i];
lambdamoins[zf]=inter(in[0], in[1], ln, zf*dz);

for(i=0; i<ln; i++) in[0][i]=(lmagma-ln+i)*dz;
for(i=0; i<ln; i++) in[1][i]=lambdaplus[lmagma-ln+i];
lambdaplus[lmagma]=inter(in[0], in[1], ln, lmagma*dz);
for(i=0; i<ln; i++) in[1][i]=lambdamoins[lmagma-ln+i];
lambdamoins[lmagma]=inter(in[0], in[1], ln, lmagma*dz);

for(i=zf; i<=lmagma; i++){
if(!isfinite(lambdamoins[i])|| !isfinite(lambdaplus[i])){cout <<
"lambdas ont bugge\n"; cout<<lambdaplus[i]<<"\t"<<lambdamoins[i]<<"\n";exit(1);}
if(lambdaplus[i]<0) lambdaplus[i]=0;
if(lambdamoins[i]<0) lambdamoins[i]=0;
} // débuggage
return;
}

void BC(double x[], double T[], double lp[], double lm[], int zf){
// calcule la matrice B*C
//x[zf]=T[zf]; //conditions limite dirichlet
x[zf]=(1-lm[zf]-lp[zf])*T[zf]+(lm[zf]+lp[zf])*T[zf+1]; //conditions limite neumann
for(int i=zf+1; i<lmagma; i++) x[i]=lm[i]*T[i-1]+(1-lm[i]-lp[i])*T[i]+lp[i]*T[i+1];
//x[N]=T[N]; //conditions limite dirichlet
x[lmagma]=(lm[lmagma]+lp[lmagma])*T[lmagma-1]+(1-lm[lmagma]-
lp[lmagma])*T[lmagma]; //conditions limite neumann
return;
}

```

```

void tridagC(double T[], double r[], double lp[], double lm[], int zf){
// inverse la matrice A pour résoudre  $AC^{-1}=BC^{-1}$ 
double a[lmagma+1], b[lmagma+1], c[lmagma+1];

// b[zf]=1; // conditions dirichlet
// c[zf]=0;
// b[lmagma]=1;
// a[lmagma]=0;

b[zf]=1+lm[zf]+lp[zf]; //conditions neumann
c[zf]=-lm[zf]-lp[zf];
b[lmagma]=1+lm[lmagma]+lp[lmagma];
a[lmagma]=-lm[lmagma]-lp[lmagma];

for(int i=zf+1;i<lmagma;i++){
a[i]=-lm[i];
b[i]=1+lm[i]+lp[i];
c[i]=-lp[i];
}
// algorithme de Thomas pour solutionner
double g[lmagma], h[lmagma], denom;

g[lmagma-1]=-a[lmagma]/b[lmagma];
h[lmagma-1]=r[lmagma]/b[lmagma];

for(int i=lmagma-2;i>=zf;i--){
denom=b[i+1]+c[i+1]*g[i+1];
if(abs(denom)<=1e-77) {cout<<"tridag a echoue\n";exit(1);}
g[i]=-a[i+1]/denom;
h[i]=(r[i+1]-c[i+1]*h[i+1])/denom;
}

T[zf]=(r[zf]-c[zf]*h[zf])/(b[zf]+c[zf]*g[zf]);
for(int i=zf+1;i<=lmagma;i++){
T[i]=T[i-1]*g[i-1]+h[i-1];
}
return;
}

void LUmethod(double A[][M], double d[], double x[]) {
// trouve la solution de  $A*x=d$  par la méthode LU
double mem;
double y[M]={0,0,0,0,0,0,0,0,0,0}, LU[M][M];
int i, j, r;

// décomposition en L et U
for (i=0; i<M; i++) {
for (j=0; j<M; j++) {

if(i<=j){
mem=0;
for (r=0; r<i; r++) mem=mem+LU[i][r]*LU[r][j];

```

```

LU[i][j]=A[i][j]-mem;
if(i==j && LU[i][j]==0){cout<<"matrice singuliere car element
de diagonale de LU = 0 "; exit(1);}
}

else {
mem=0;
for (r=0; r<j; r++) mem=mem+LU[i][r]*LU[r][j];
LU[i][j]=(A[i][j]-mem)/LU[j][j];
}
}
}

for(int q=0;q<M;q++){for(int s=0;s<M;s++){if(!isfinite(LU[q][s])){cout <<
"calcul de LU a buggé\n"; exit(1);}} //debuggage

// calcul du déterminant
mem=1;
for(int q=0;q<M;q++) mem=mem*LU[q][q];
if(mem==0){cout<<"matrice singuliere \nJ=\n"; for(int a=0; a<M;a++)
{for(int b=0;b<M;b++) cout<<A[a][b]<<"\t"; cout<<"\n";}; exit(1);}

// inversion avec L*y=d, y=U*x

for (i=0; i<M; i++) {
mem=0;
for (r=0; r<i; r++) mem+=LU[i][r]*y[r];
y[i]=d[i]-mem;
}
for(int q=0;q<M;q++) if(!isfinite(y[q])) {cout<<"inversion de LU a bugge (1)\n";
exit(1);}

for (i=M-1; i>=0; i--) {
mem=0;
for (r=i+1; r<6; r++) mem+=LU[i][r]*x[r];
x[i]=(y[i]-mem)/LU[i][i];
}

for(int q=0;q<M;q++) if(!isfinite(x[q])) {cout<<"inversion de LU a bugge(2)\n";
exit(1);}
};

void func(double f[], double x[], double var[]){
// calcule l'array de fonctions pour Newton-Raphson

double cin[8], memdphi=0, memdphiA=0, memdphiB=0;
double CA, CB, T, uphi;

CA=(var[1]+x[1])/2; CB=(var[6]+x[6])/2; T=(var[0]+x[0])/2; uphi=(1-(var[2]+x[2]
+var[7]+x[7])/2); // uphi=1-phi_tot
cinetique(cin,CA , CB, T , var[2]+var[7]);

```

```

memdphiA=4*M_PI/3*uphi*cin[3]*pow(cin[1],3) + 4*M_PI*cin[2]*(x[3]+var[3])/2; // memdphiA/B =d(phiA/B) / dt
memdphiB=4*M_PI/3*uphi*cin[7]*pow(cin[5],3) + 4*M_PI*cin[6]*(x[8]+var[8])/2; //memdphi = (dphi/dt) / (1-phi)
memdphi=(memdphiA+memdphiB)/uphi;

f[0]=var[0]-x[0]+dt*(StA*memdphiA +StB*memdphiB);
f[1]=var[1]-x[1]+dt*((x[1]+var[1])/2*memdphi-memdphiA/uphi);
f[2]=var[2]-x[2]+dt*memdphiA;
f[3]=var[3]-x[3]+dt*(uphi*cin[3]*pow(cin[1],2)+2*(var[4]+x[4])/2*cin[2]);
f[4]=var[4]-x[4]+dt*(uphi*cin[3]*cin[1]+cin[2]*(var[5]+x[5])/2);
f[5]=var[5]-x[5]+dt*(uphi*cin[3]);
f[6]=var[6]-x[6]+dt*((x[6]+var[6])/2*memdphi-memdphiB/uphi);
f[7]=var[7]-x[7]+dt*memdphiB;
f[8]=var[8]-x[8]+dt*(uphi*cin[7]*pow(cin[5],2)+2*(var[9]+x[9])/2*cin[6]);
f[9]=var[9]-x[9]+dt*(uphi*cin[7]*cin[5]+cin[6]*(var[10]+x[10])/2);
f[10]=var[10]-x[10]+dt*(uphi*cin[7]);

for(int q=0;q<M;q++) if(!isfinite(f[q])) {cout<<"calcul de f a bugge\n";
    exit(1);} // débucage
}

double trapezoidal(double f[]){
// estime aire sous la courbe dans espace réel
double A=0, dx[lmagma];
int i;

for(i=0; i<lmagma; i++) dx[i]=p*( sinh(dz/p * (i+1)) - sinh(dz/p *i) );

for(i=0; i<lmagma; i++) A+=dx[i]*(f[i]+f[i+1]);
A=A/2*sqrt(D0A*2*tsA*v/(k*TLA0*V0)); // mettre en m

return A;
}

int main() {
double var[M][lmagma+1], cin[8], lambdapC[lmagma+1], lambdamC[lmagma+1],
bufferC[lmagma+1];
double T[N+1], lambdapT[N+1], lambdamT[N+1], bufferT[N+1], d[N+3];
double Jac[M][M], f[M], memvar[M], delta, temp, fprime[M], guess[M], s[M], xh[M];
double limite=1e-15, prec=1e-8, mem; // limite des f[i] de ce qu'on considere
    comme une absence de reaction, precision N-R
double temps=tmax/dt, loit[4][lmagma+1], densite[2][lmagma+1]; //loit: enregistre l
    temps le formation de la bande
int enre=enr/dt;
int t,i,j,q,r, zf=1; //zf: front de reaction. rx et diffusion de C
se fait a partir de zf inclus

ofstream Tfile, cinfile, varfile, errfile; // données enregistrées dans
ces documents
Tfile.open("T.txt");
varfile.open("var.txt");
cinfile.open("cin.txt");
errfile.open("err.txt");
Tfile<<"# t \t x(-) \t x(m) \t zeta \t T \n";
varfile<<"# t \t x(-) \t x(m) \t zeta \t T\t CA\t phiA\t sigmaA \t rhoA\t nA \t CB
\t phiB \t sigmaB \t rhoB \t nB \t t fin formation A \t t fin formation B \n";

```

```

cinfile<<"# t \t x(-) \t x(m) \t zeta \t T \t TLA \t rcA \t VA \t JA \t TLB
\t rcB \t VB \t JB \n";

//----- enregistrement des echelles dans varfile (en comment) -----//
varfile<<"#r*="<<2*tsA*v/(k*TLA0)*1e9<<" nm\n";
varfile<<"#tau="<<2*tsA*v/(k*TLA0*V0)<<" s\n";
varfile<<"#L="<<sqrt(D0A*2*tsA*v/(k*TLA0*V0))*1e3<<" mm\n";
varfile<<"#epsA="<<epsA<<"\n";
varfile<<"#epsB="<<epsB<<"\n";
varfile<<"#delA="<<delA<<"\n";
varfile<<"#delB="<<delB<<"\n";
varfile<<"#eta="<<eta<<"\n";

//----- conditions initiales -----//
for(i=0;i<=N;i++) T[i]=(T0-TL)/(2*TLA0)*tanh(p*sinh((i+90-lroche)*dz/p)/D)+
(T0+TL)/(2*TLA0);
for(i=0; i<=lmagma; i++) {
var[0][i]=T[i+lroche];
var[1][i]=CA0;
for(j=2;j<M;j++) var[j][i]=0;
var[6][i]=1-var[1][i];
for(j=0;j<4;j++) loit[j][i]=0;
}
var[0][0]=(T0+TL)/(2*TLA0);

der(d);
lambdapmT(d,lambdapT,lambdamT);

//----- enregistrement des conditions initiales -----//
t=0;
for (i=0; i<=lmagma;i++) {densite[0][i]=var[1][i]*(1-var[2][i]-var[7][i])+
var[2][i];densite[1][i]=var[6][i]*(1-var[2][i]-var[7][i])+var[7][i];}
cout<<t*dt<<"\tvol total de A="<<trapezoidal(densite[0])<<" , vol total de B=
"<<trapezoidal(densite[1]) <<"\n";
for (i=0; i<=lmagma;i++) {
varfile<<t*dt<<"\t"<<p*sinh((dz*i)/p)<<"\t"<<p*sinh((dz*i)/p)*sqrt(D0A*2*tsA*v/
(k*TLA0*V0))<<"\t" << dz*i <<"\t";
for (j=0;j<M;j++) varfile<<var[j][i]<<"\t";
varfile<<"\t"<<loit[1][i]<<"\t"<<loit[3][i]<<"\t"<<densite[0][i]<<"\n";
}
for(i=0;i<lroche;i++)
Tfile<<t*dt<<"\t"<<p*sinh((i-lroche)*dz/pg)<<"\t"<<p*sinh((dz*(i-lroche))/pg)*
sqrt(D0A*2*tsA*v/(k*TLA0*V0))<<"\t"<<(i-lroche)*dz<<"\t"<<T[i]<<"\n";
for(i=lroche;i<=N;i++)
Tfile<<t*dt<<"\t"<<p*sinh((i-lroche)*dz/p)<<"\t"<<p*sinh((dz*(i-lroche))/p)*
sqrt(D0A*2*tsA*v/(k*TLA0*V0))<<"\t"<<(i-lroche)*dz<<"\t"<<T[i]<<"\n";

for(t=1; t<=temps; t++){
//cout<<t*dt<<"\n";

//----- etape 1 de strang -----//

```

```

for(i=0;i<=lmagma;i++) T[i+lroche]=var[0][i]; // diffusion de T
BT(bufferT, T, lambdapT, lambdamT);
tridagT(T, bufferT, lambdapT, lambdamT);
for(i=0; i<=N; i++) if(!isfinite(T[i])){cout << "diffusion de T (premiere partie) a buggé...\n"; exit(1);} //debuggage
for(i=0;i<=lmagma;i++) var[0][i]=T[i+lroche];

lambdapmC(var, d, lambdapC, lambdamC, zf); // diffusion de CA
BC(bufferC, var[1],lambdapC,lambdamC,zf);
tridagC(var[1], bufferC, lambdapC, lambdamC,zf);

for(i=zf; i<=lmagma; i++){
if(!isfinite(var[1][i])){cout << "diffusion de C (premiere partie)
a buggé...\n"; exit(1);} //debuggage
var[6][i]=1-var[1][i];
if(var[1][i]>=1) {cout<<"C>1 (1) t="<<t<<"\n"; exit(1);}
if(abs(var[1][i]+var[6][i]-1)>0.1) {cout<<t<<"\t"<<i<<"\t"<<var[1][i]
<<"\t"<<var[6][i]<<"\t CA+CB!=1 (1)\n"; exit(1);}
}

//----- enregistrement des coefficients cinetiques -----//
if(t%enre==0) {
for (i=0; i<=lmagma;i++) {
cinetique(cin, var[1][i], var[6][i], var[0][i], var[2][i]+var[7][i]);
cinfile<<t*dt<<"\t" <<p*sinh(i*dz/p) <<"\t"<<p*sinh((dz*i)/p)*
sqrt(DOA*2*tsA*v/(k*TLAO*VO))<<"\t"<<dz*i <<"\t"<<var[0][i]<<"\t"<<cin[0]
<<"\t"<<cin[1]<<"\t"<<cin[2]<<"\t"<<cin[3]<<"\t"<<cin[4]<<"\t"<<cin[5]<<"\t"
<<cin[6]<<"\t"<<cin[7]<<"\n";
}
}

//----- etape 2 de strang -----//
for(i=zf; i<=lmagma;i++){ // on traite chaque i indépendamment
for(r=0;r<M;r++) {
memvar[r]=var[r][i]; // variable au i actuel en memoire
guess[r]=var[r][i]; // guess initial = valeurs de C, phi,...
s[r]=1;
}

j=0; // réinitialisation du nombre de comptes d'itérations

while ( ((abs(s[0])>prec) && (abs(s[0])>prec*guess[0])) || ((abs(s[1])>prec)
&& (abs(s[1])>prec*guess[1])) || ((abs(s[2])>prec) && (abs(s[2])>prec*guess[2])) ||
((abs(s[3])>prec) && (abs(s[3])>prec*guess[3])) || ((abs(s[4])>prec) &&
(abs(s[4])>prec*guess[4])) || ((abs(s[5])>prec) && (abs(s[5])>prec*guess[5])) ||
((abs(s[6])>prec) && (abs(s[6])>prec*guess[6])) || ((abs(s[7])>prec) &&
(abs(s[7])>prec*guess[7])) || ((abs(s[8])>prec) && (abs(s[8])>prec*guess[8])) ||
((abs(s[9])>prec) && (abs(s[9])>prec*guess[9])) ||((abs(s[10])>prec) &&
(abs(s[10])>prec*guess[10])))
{
cinetique(cin, guess[1], guess[6], guess[0], guess[2]+guess[7]);
if((guess[2]+guess[7])>=0.99 && cin[3]>=0 && cin[7]>=0) goto stopreaction;
}

```

```

// evaluate f
func(f, guess, memvar);

for(r=0;r<M;r++){ if(!isfinite(f[r])){cout << "fonction a buggé... t="<<t<<<,
    i="<<i<<<, j="<<j<<<"\n";exit(1); } // débogage
if((abs(f[0])<limite)&&(abs(f[1])<limite)&&(abs(f[2])<limite)&&(abs(f[3])<limite)&&
(abs(f[4])<limite)&&(abs(f[5])<limite)&&(abs(f[6])<limite)&&(abs(f[7])<limite)&&
(abs(f[8])<limite)&&(abs(f[9])<limite)&&(abs(f[10])<limite))
    {cout<<"t f trop petit\n";
goto stopreaction;}}

// calcul du jacobien
for(r=0;r<M;r++){
    temp=guess[r];
    delta=abs(temp)*1e-8;
    if(delta<1e-15) delta=1e-8;
    for(q=0;q<M;q++){ xh[q]=guess[q];
    xh[r]=temp+delta;
    delta=xh[r]-temp;
    func(fprime, xh, memvar);
    for(q=0;q<M;q++){ Jac[q][r]=(fprime[q]-f[q])/delta;
    }

    for(q=0;q<M;q++){ for(r=0; r<6;r++){if(!isfinite(Jac[q][r])){cout <<
    "Jacobien a buggé...\tt="<<t<<<"\ti="<<i<<<"\nJ=\n";for(int a=0; a<5;a++)
    {for(int b=0;b<5;b++) cout<<Jac[a][b]<<"\t"; cout<<"\n";}exit(1);}} //debuggage
    for(q=0;q<M;q++){if(Jac[q][q]==0){cout << "element "<<i<<< " de diagonale =0 \n";
    goto stopreaction;}} //debuggage

// inversion du jacobien
LUmethod(Jac,f,s); // on inverse Jac pour trouver s=J-1 * f
for(r=0;r<M;r++){if(!isfinite(s[r])){cout << "Newton-Raphson a buggé...";exit(1);} } // débogage

for(r=0;r<M;r++){
    guess[r]=guess[r]-s[r]; //x(n+1)=x(n)-s;
    if(guess[r]<0) {guess[r]=0;s[r]=0;} //on force les variables a etre positives
}

for(r=1;r<3;r++){if(guess[r]>=1) {guess[r]=1; s[r]=0; cout<<"C ou phi A>1, corrige
manuellement\n";} // on force C et phi a etre <= 1
for(r=6;r<8;r++){if(guess[r]>=1) {guess[r]=1;s[r]=0; cout<<"C ou phi B>1, corrige
manuellement\n";}

mem=guess[2]+guess[7];
if(mem>=1) {guess[2]=guess[2]/mem; guess[7]=guess[7]/mem; cout<<"phi total =
"<<mem<< " rammene a 1\n"; goto stopreaction;}

// si la réaction prend trop d'itérations
if (j>100){errfile <<"t="<<t<<<, i="<<i<<< "\tR-N ne converge pas ou nécessite
plus de 100 itérations pour avoir une erreur <<<prec<<< " sur tous elements\n";
    goto mneuh;} // exit(1); } //convergence de N-R
j++;

} // fin des iterations

```

```

stopreaction:
for(r=0;r<M;r++) var[r][i]=guess[r]; // on remplace les valeurs par
celles trouvées après réaction

mneuh: r=4; // si prend trop d'iterations (erreur affichee), on saute ce noeud.

} // fin de la boucle sur tous les elements spaciaux

for(i=0; i<=lmagma; i++){
if(var[1][i]>=1) {cout<<t<<"\t"<<i<<"\t"<<var[1][i]<<"\t"<<var[6][i]<<
"\t C>1 (2)\n"; exit(1);}
if(abs(var[1][i]+var[6][i]-1)>0.1) {cout<<t<<"\t"<<i<<"\t CA+CB!=1 (2)\n";
exit(1);}
if(var[2][i]>loit[0][i]) {loit[0][i]=var[2][i]; loit[1][i]=t*dt;}
// si phiA>phiA max précédent, on enregistre le temps actuel.
if(var[7][i]>loit[2][i]) {loit[2][i]=var[7][i]; loit[3][i]=t*dt;}
// donc loit[1] et [3] contient le temps ou phiA/B a cesse de croitre
}

//----- etape 3 de strang -----//

for(i=0;i<=lmagma;i++) T[i+lroche]=var[0][i]; // diffusion de T
BT(bufferT, T, lambdapT, lambdamT);
tridagT(T, bufferT, lambdapT, lambdamT);
for(i=0; i<=N; i++) if(!isfinite(T[i])){cout << "diffusion de T (troisieme partie)
a buggé...\n"; exit(1);} //debuggage
for(i=0;i<=lmagma;i++) var[0][i]=T[i+lroche];

lambdapmC(var, d, lambdapC, lambdamC, zf); // diffusion de CA
BC(bufferC, var[1],lambdapC,lambdamC,zf);
tridagC(var[1], bufferC, lambdapC, lambdamC,zf);

for(i=zf; i<=lmagma; i++){
if(!isfinite(var[1][i])){cout << "diffusion de C (troisieme partie) a buggé...\n";
exit(1);} //debuggage
var[6][i]=1-var[1][i];
if(var[1][i]>=1) {cout<<"C>1 (3) t="<<t<<"\n"; exit(1);}
if(abs(var[1][i]+var[6][i]-1)>0.1) {cout<<t<<"\t"<<i<<"\t"<<var[1][i]<<"\t"
<<var[6][i]<<"\t CA+CB!=1 (3)\n"; exit(1);}
}

for(i=zf; i<=lmagma;i++){ // zf devient le premier point a avoir moins de 0.99%
de cristallise
if((var[2][i]+var[7][i])<=0.99 || i==lmagma) {zf=i; break;} // correspond au
premier point sur lequel la reaction se fait.
}

//----- enregistrement des donnees -----//

if(t%enre==0 || zf>=lmagma-1){

```

```

for (i=0; i<=lmagma;i++) {densite[0][i]=var[1][i]*(1-var[2][i]-var[7][i])
+var[2][i];densite[01][i]=var[6][i]*(1-var[2][i]-var[7][i])+var[7][i];}
cout<<t*dt<<"\tvol total de A="<<trapezoidal(densite[0])<<" , vol total de B=
"<<trapezoidal(densite[1]) <<"\n";
for (i=0; i<=lmagma;i++) {
varfile<<t*dt<<"\t"<<p*sinh((dz*i)/p)<<"\t"<<p*sinh((dz*i)/p)*
sqrt(D0A*2*tsA*v/(k*TLA0*V0))<<"\t"<< dz*i <<"\t";
for (j=0;j<M;j++) varfile<<var[j][i]<<"\t";
varfile<<"\t"<<loit[1][i]<<"\t"<<loit[3][i]<<"\n";
}
for(i=0;i<lroche;i++) {
Tfile<<dt*t<<"\t"<<p*sinh((i-lroche)*dz/pg)<<"\t";
Tfile<<p*sinh((dz*(i-lroche))/pg)*sqrt(D0A*2*tsA*v/(k*TLA0*V0))<<"\t";
Tfile<<(i-lroche)*dz<<"\t"<<T[i]<<"\n";
}
for(i=lroche;i<=N;i++) {
Tfile<<dt*t<<"\t"<<p*sinh((i-lroche)*dz/p)<<"\t";
Tfile<<p*sinh((dz*(i-lroche))/p)*sqrt(D0A*2*tsA*v/(k*TLA0*V0))<<"\t";
Tfile<<(i-lroche)*dz<<"\t"<<T[i]<<"\n";
}
}
if(zf==lmagma) goto term;

} // fin d'une etape de temps
term:
Tfile.close();
varfile.close();
cinfile.close();
errfile.close();
cout<<"terminé!\n";

return 0;

}

```

Annexe B

Résultats - Intrusion, sans mûrissement

L'ensemble des résultats pour le profil droit, sans mûrissement, est présenté ici. Le tableau [B.1](#) résume les paramètres utilisés pour chaque simulation. t_f indique le temps lors de l'arrêt de la simulation.

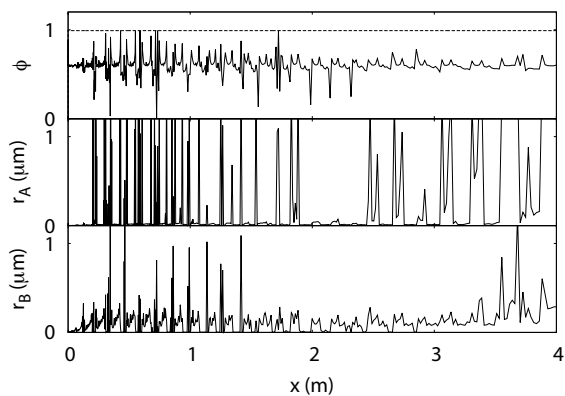
Les valeurs d'intérêt sont la composition et la taille des cristaux de la roche finale. Pour chaque simulation, la ligne solide dans les graphiques de ϕ représente la fraction de solide de A et la ligne pointillée, la fraction de solide totale au moment de l'arrêt. Les graphiques de r_A et r_B indiquent la grosseur moyenne des cristaux de A et B, respectivement. Aussi, portez attention à l'échelle de distance et aux unités : elles sont parfois modifiées afin de mieux voir les bandes. Il est à noter que les simulations ont parfois été arrêtées avant que le système soit complètement cristallisé, pour diverses raisons. Par exemple, pour le système de 100 m de demi-épaisseur de magma, soit la simulation #17, il aurait été inutilement long de laisser le magma se cristalliser sur toute sa longueur ; les résultats sont donc présentés sur les trois premiers mètres seulement.

TABLE B.1 – Paramètres utilisés pour chaque simulation (sans mûrissement)

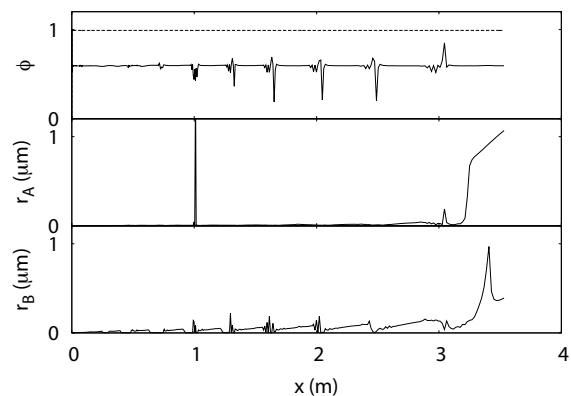
#	Le (-)	St (-)	C_{A0} (-)	T_{m0} (K)	T_{r0} (K)	L_m (m)	L_r (m)	t_f (jours)
1	100	0.1	0.6	1400	1100	4	1	368.2
2	1000	0.1	0.6	1400	1100	4	1	31.7
3	100000	0.1	0.6	1400	1100	4	1	3.3
4	100000	0.1	0.6	1400	1100	4	1	0.4
5	10	0.1	0.6	1400	1100	4	1	1915.3
6	1	0.1	0.6	1400	1100	4	1	780.8
7	100	0.1	0.7	1400	1100	4	1	353.7
8	100	0.1	0.8	1400	1100	4	1	1.3
9	100	A :0.2/B :0.1	0.6	1400	1100	4	1	522.7
10	100	0.2	0.6	1400	1100	4	1	612.7
11	100	0.3	0.6	1400	1100	4	1	840.2
12	100	0.4	0.6	1400	1100	4	1	1065.3
13	1000	0.2	0.6	1400	1100	4	1	60.4
14	1000	0.3	0.6	1400	1100	4	1	80.5
15	100	0.1	0.6	1400	1100	1	1	39.9
16	100	0.1	0.6	1400	1100	10	1	1840.9
17	100	0.1	0.6	1400	1100	100	1	475.8
18	1000	0.1	0.6	1500	1100	4	1	41.9
19	100	0.1	0.6	1500	1100	4	1	463.6
20	100	0.1	0.6	1600	1100	4	1	537.4
21	10000	0.2	0.6	1400	1100	4	1	4.9
22	10000	0.3	0.6	1400	1100	4	1	6.1
23	100	0.1	0.5*	1400	1100	4	1	439.2
24	100	0.1	0.6	1400	1000	4	1	294.3
25	100	0.1	0.6	1500	1100	4	1	463.6
26	100	0.1	0.6	1600	1100	4	1	527.4

*(0.6 sur [1,2] cm)

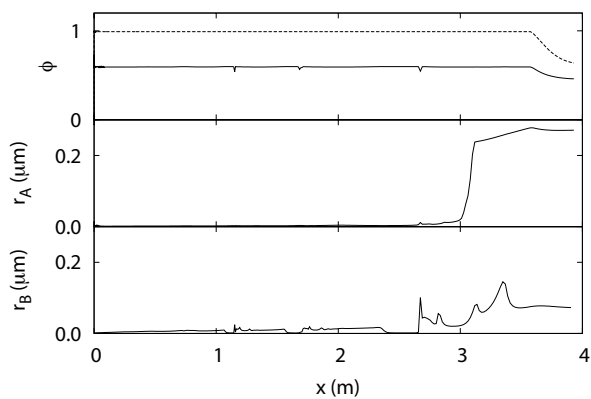
#1



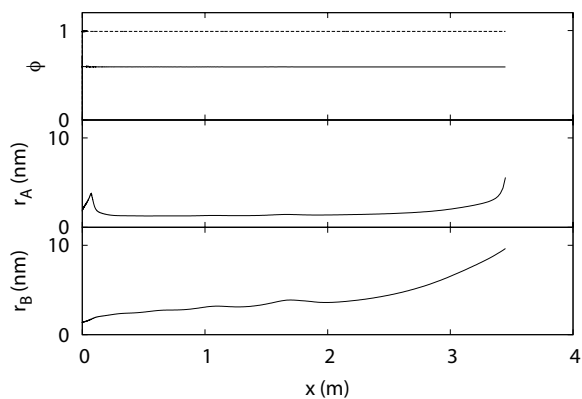
#2



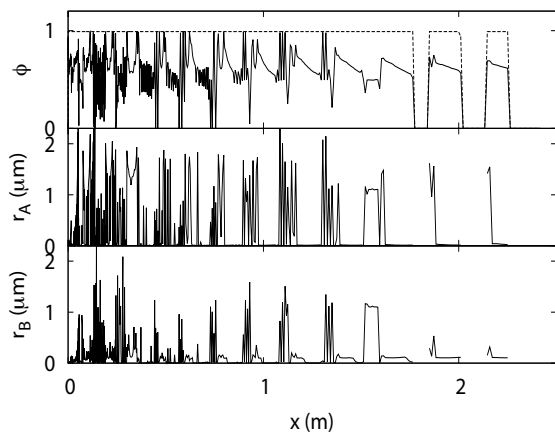
#3



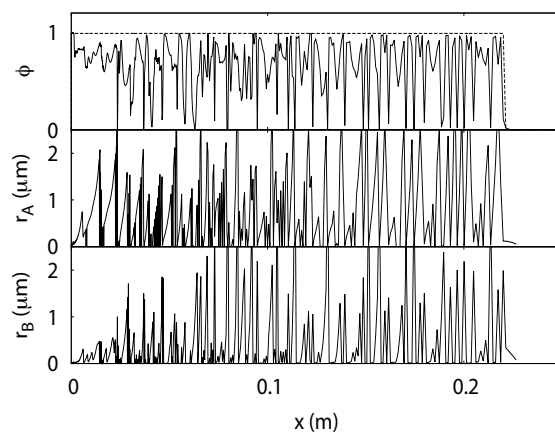
#4



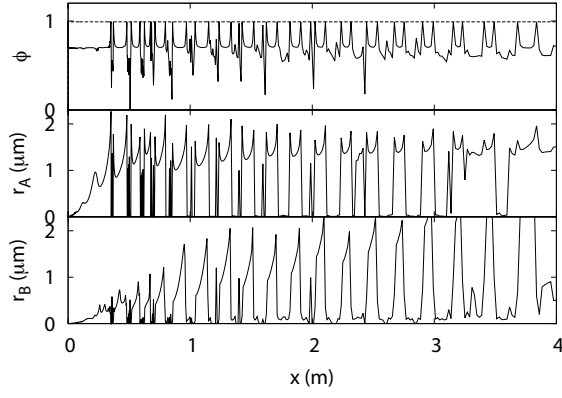
#5



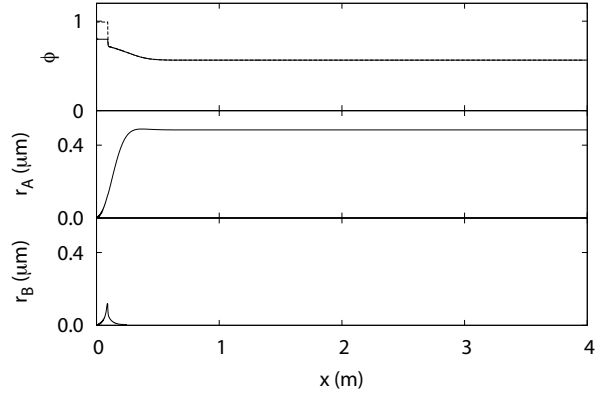
#6



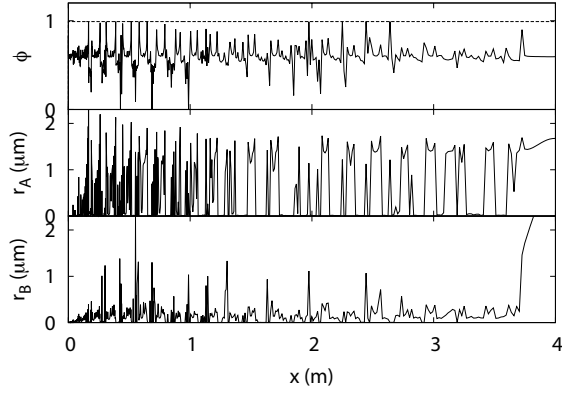
#7



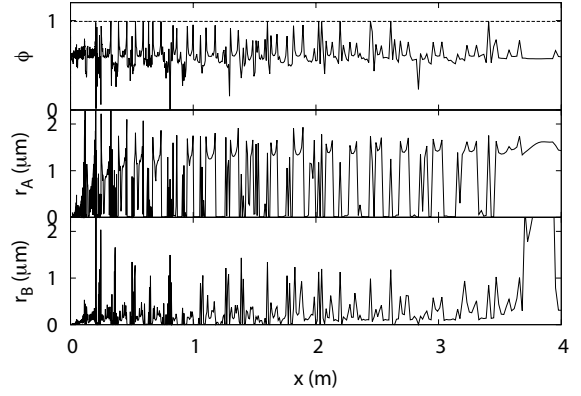
#8



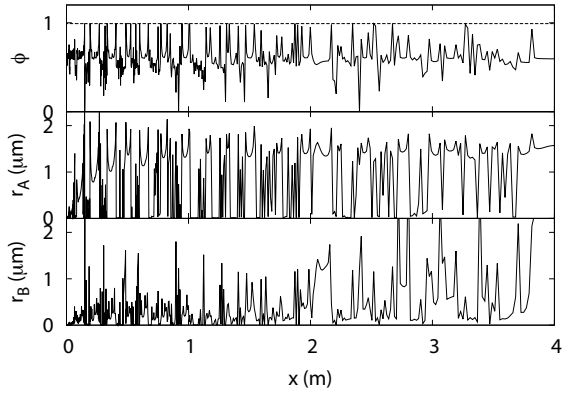
#9



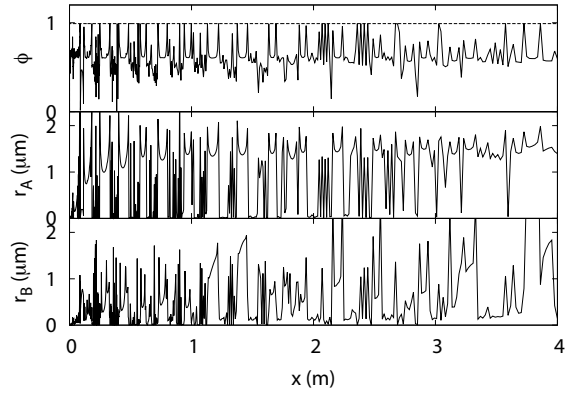
#10



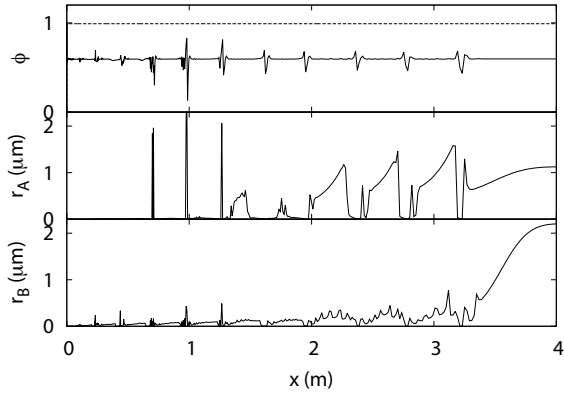
#11



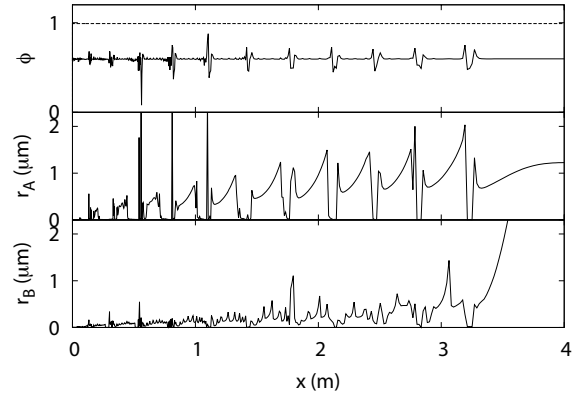
#12



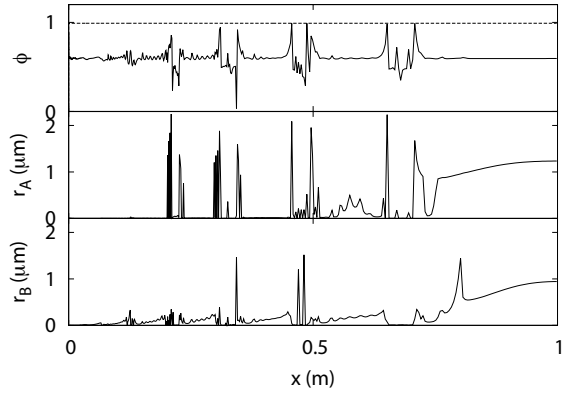
#13



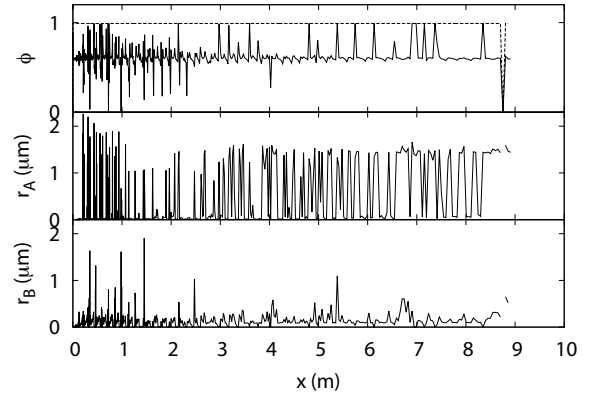
#14



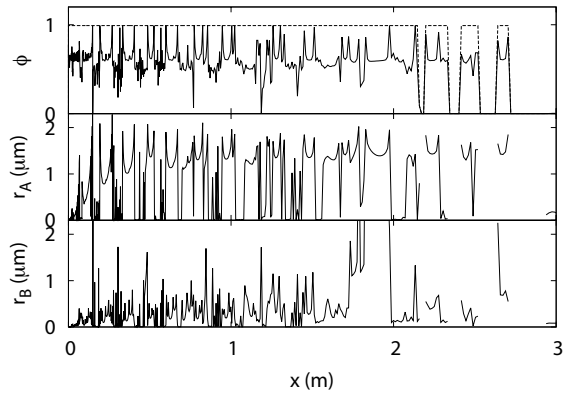
#15



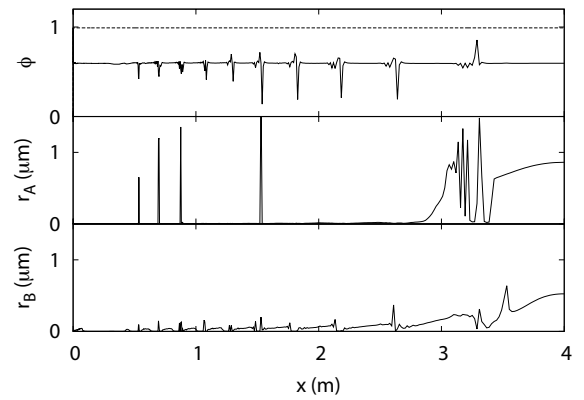
#16



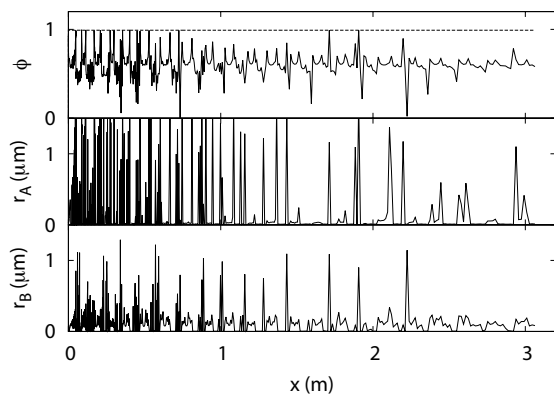
#17



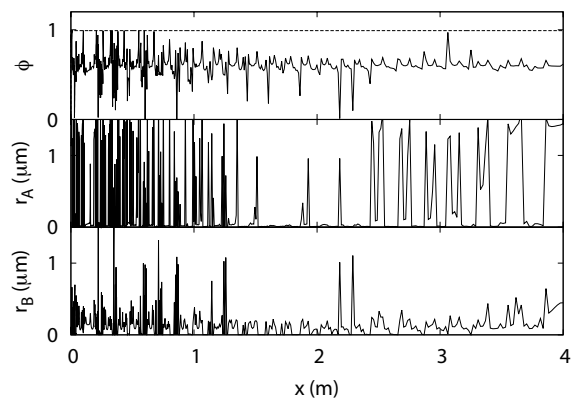
#18



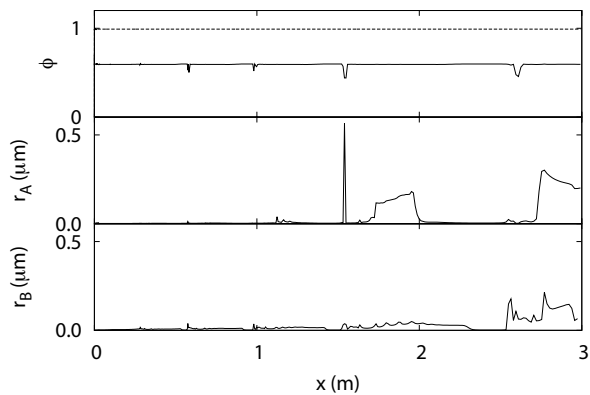
#19



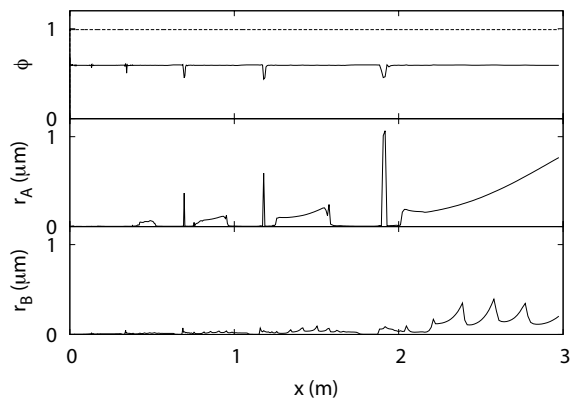
#20



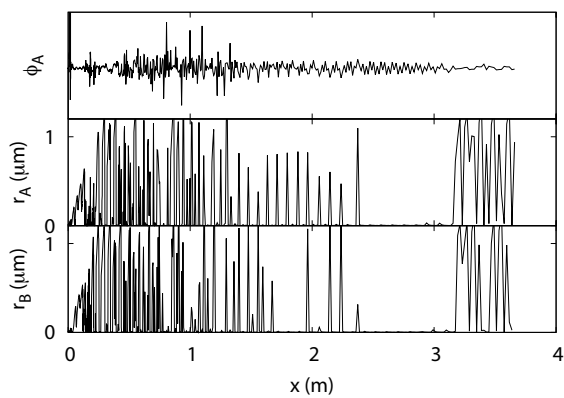
#21



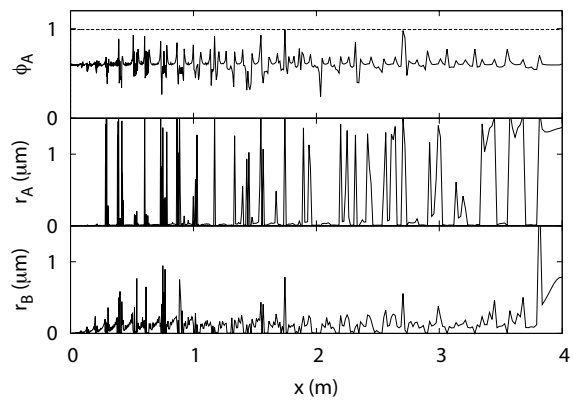
#22



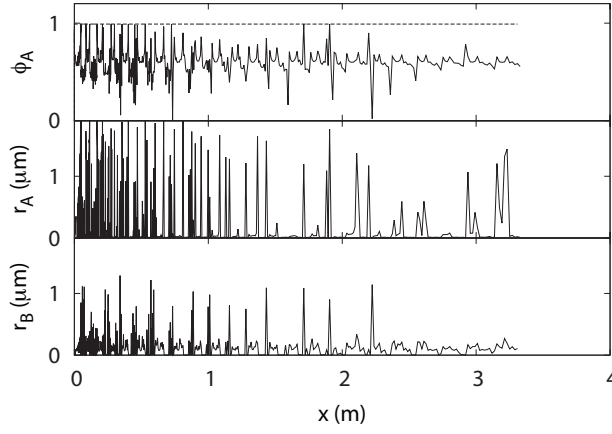
#23



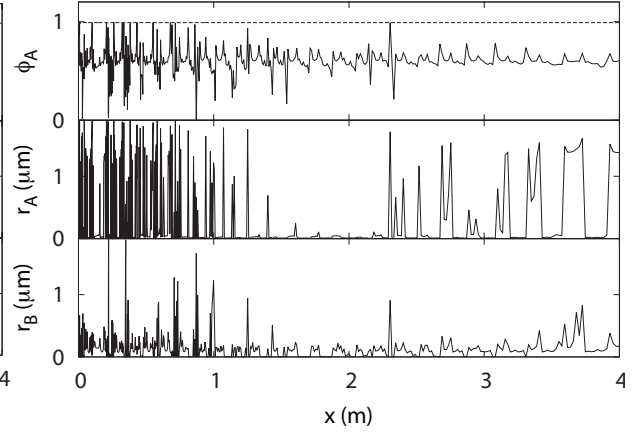
#24



#25



#26



Annexe C

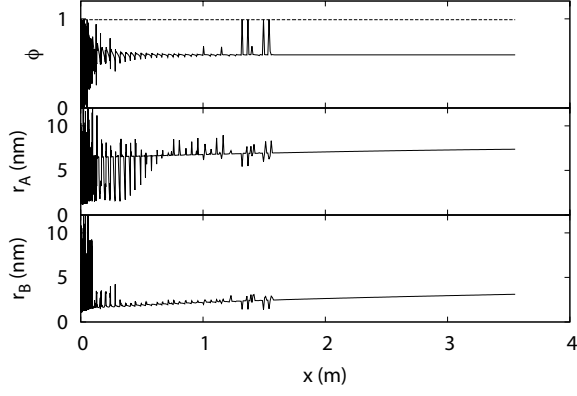
Résultats - Intrusion, avec mûrissement

L'ensemble des résultats pour le profil droit, avec mûrissement, est présenté ici. Le tableau [C.1](#) résume les paramètres utilisés pour chaque simulation. La présentation des résultats est la même que pour l'annexe [B](#). À moins d'indication contraire, $C_{A0} = 60\%$, $T_{m0} = 1400$ K, $T_{r0} = 1100$ K, $L_m = 4$ m et $L_r = 1$ m.

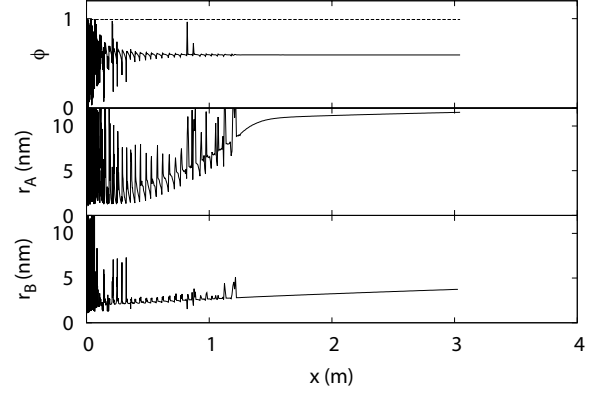
TABLE C.1 – Paramètres utilisés pour chaque simulation (avec mûrissement)

Le (-)	St (-)		Le (-)	St (-)	
100	0.1		100	0.3	
#	δ (-)	t_f (jours)	#	δ (-)	t_f (jours)
1	0.25	793.0	21	1	671.0
2	0.50	622.2	22	3	941.7
3	0.75	549.0	Le (-)	St (-)	
4	1	500.2	1000	0.3	
5	3	402.6	#	δ (-)	t_f (jours)
6	5	390.4	23	1	97.6
7	7	389.2	24	3	87.37
8	10	365.0	Le (-)	St (-)	
Le (-)	St (-)		10000	0.1	
1000	0.1		#	δ (-)	t_f (jours)
#	δ (-)	t_f (jours)	25	1	3.7
9	0.25	390.4	26	3	2.4
10	0.60	341.6	Le (-)	St (-)	
11	0.75	549.0	10000	0.1	
12	1	48.8	#	δ (-)	t_f (jours)
13	3	36.6	27	1	0.4
14	5	40.3	Le (-)	St (-)	C_{A0} (%)
15	7	39.4	100	0.1	0.5
Le (-)	St (-)		#	δ (-)	t_f (jours)
10	0.1		28	1	146.4
#	δ (-)	t_f (jours)	29	3	69.5
16	1	1842.1			
17	3	3598.8			
18	5	3720.8			
Le (-)	St (-)				
1	0.1				
#	δ (-)	t_f (jours)			
19	1	195.2			
20	3	224.0			

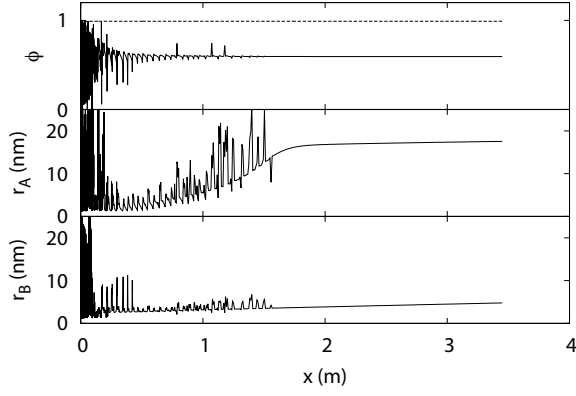
#1



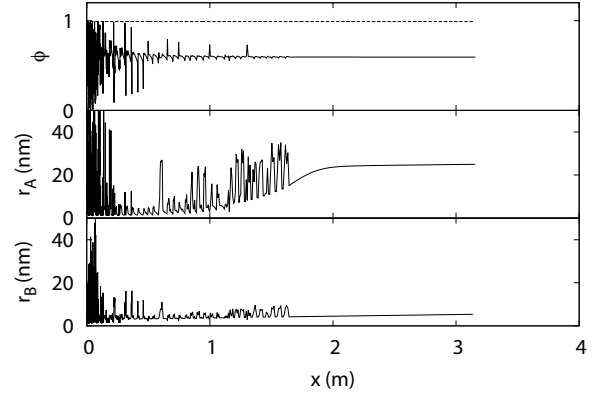
#2



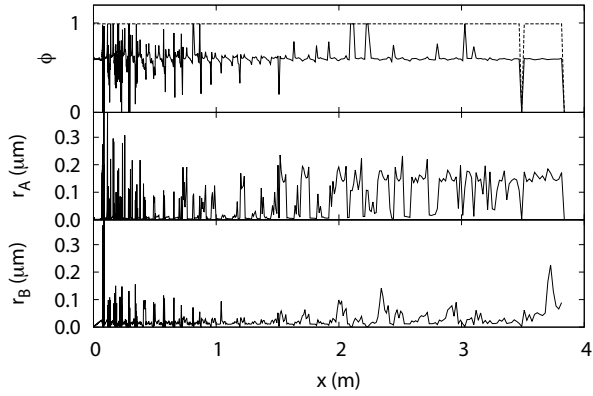
#3



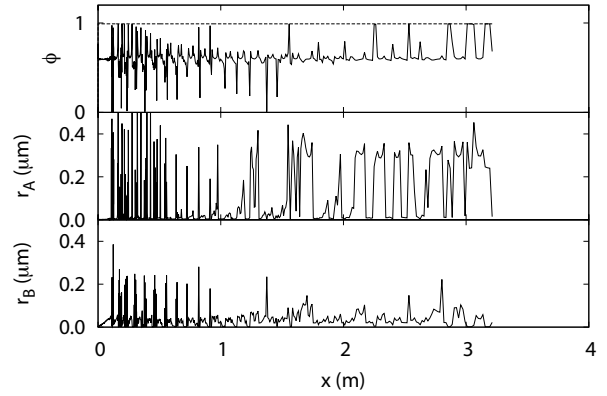
#4



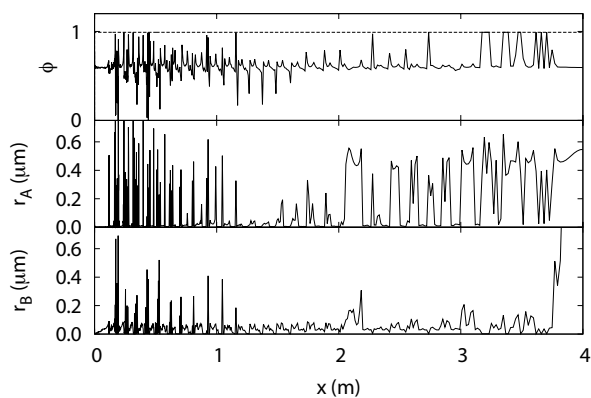
#5



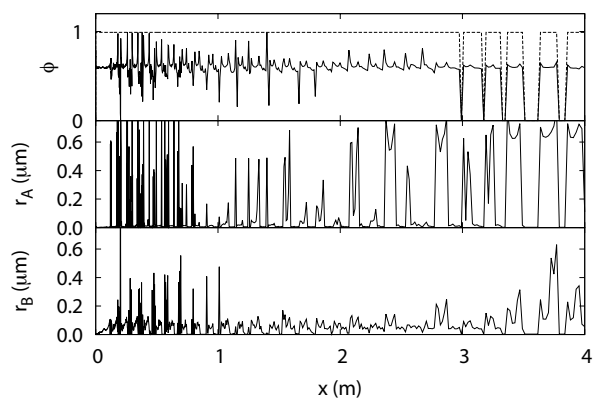
#6



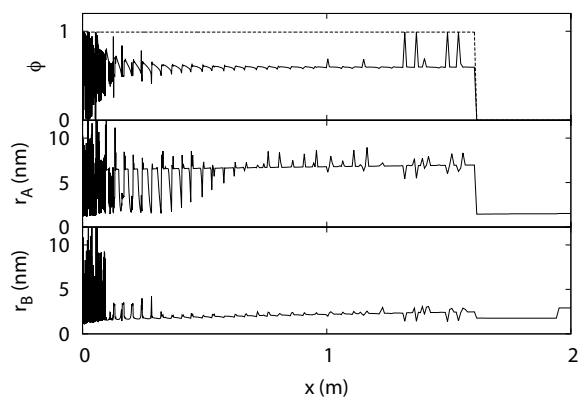
#7



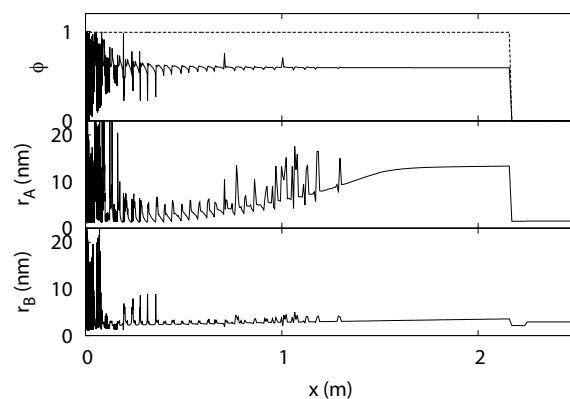
#8



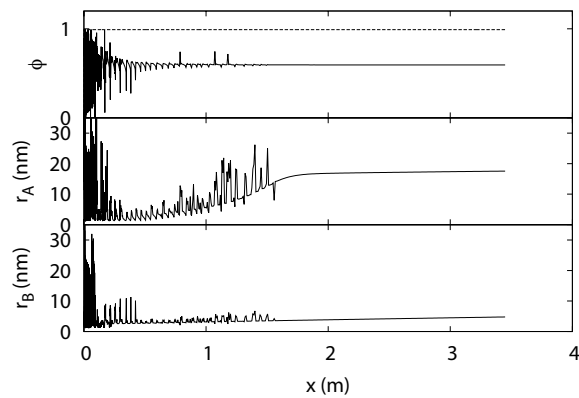
#9



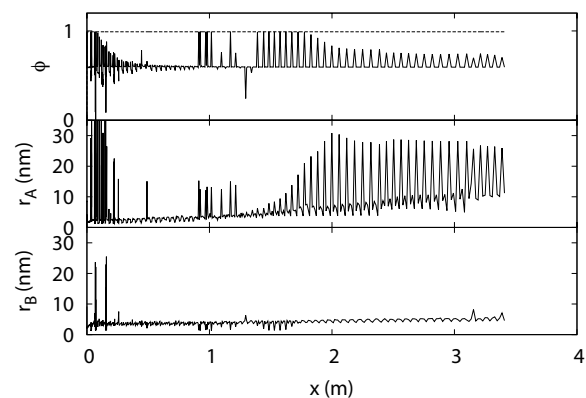
#10



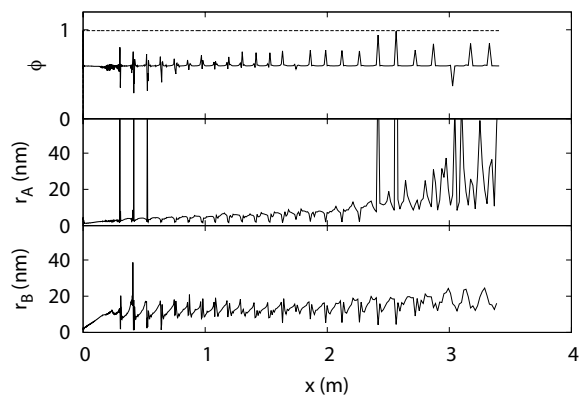
#11



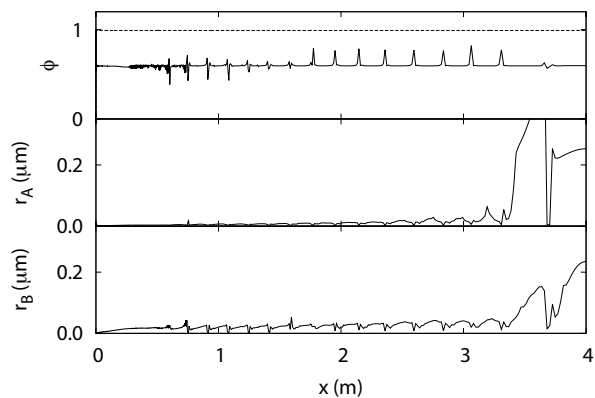
#12



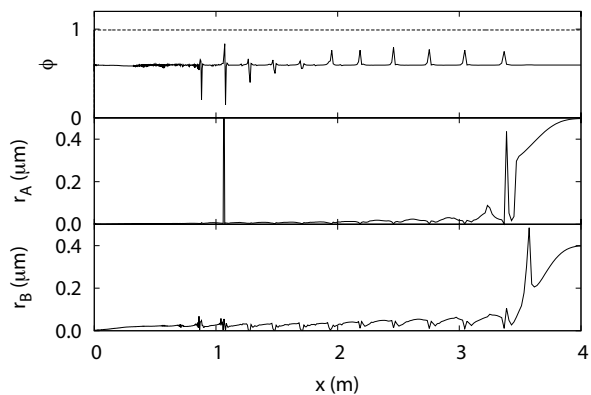
#13



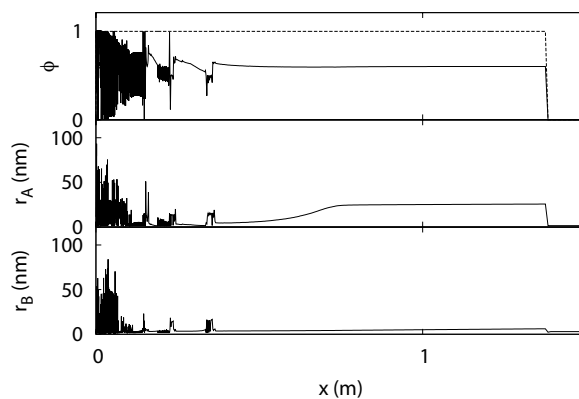
#14



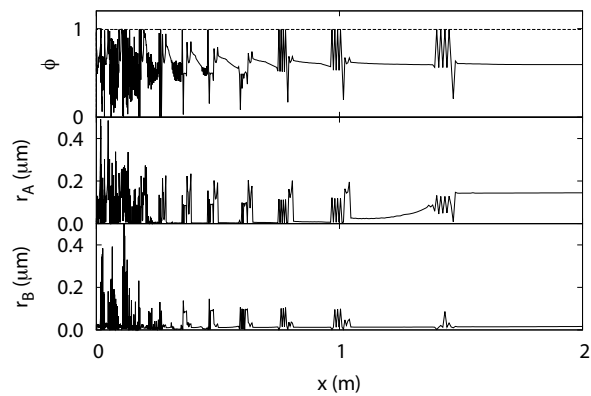
#15



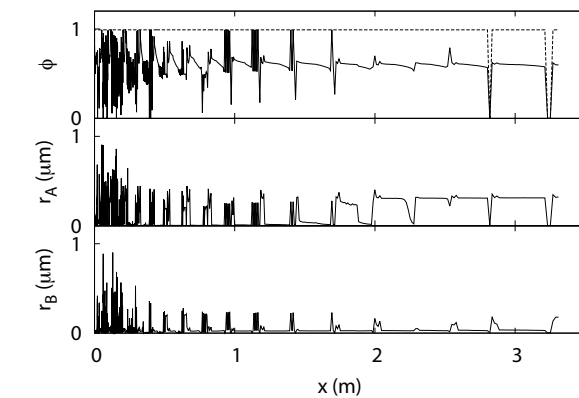
#16



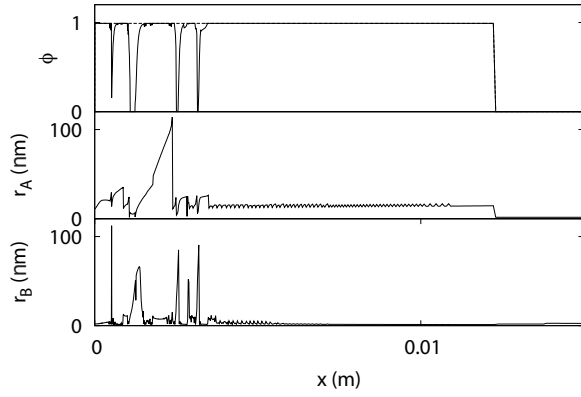
#17



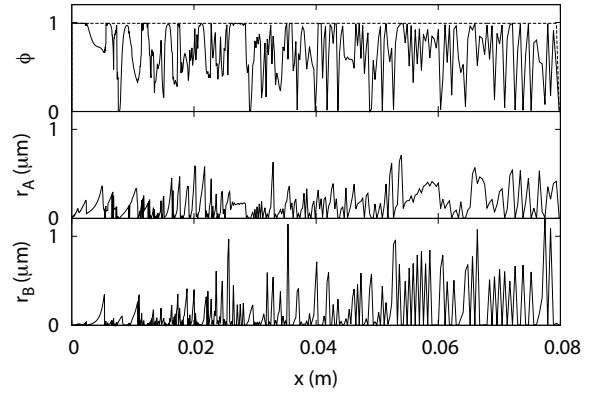
#18



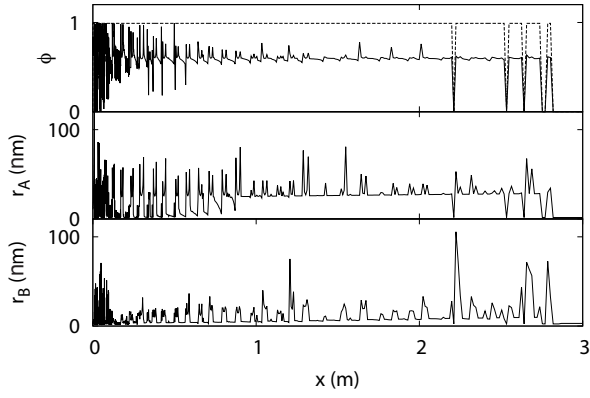
#19



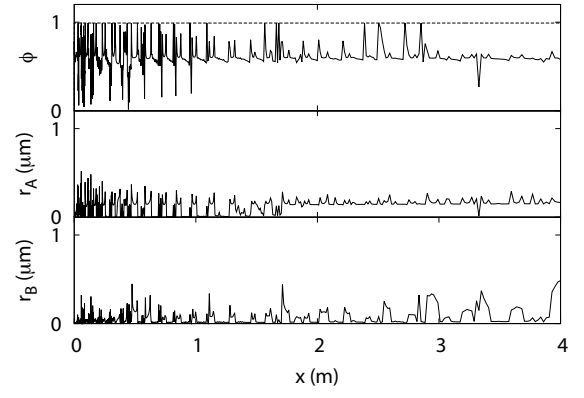
#20



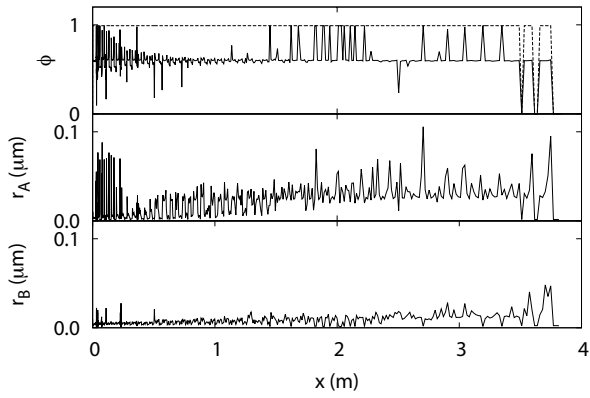
#21



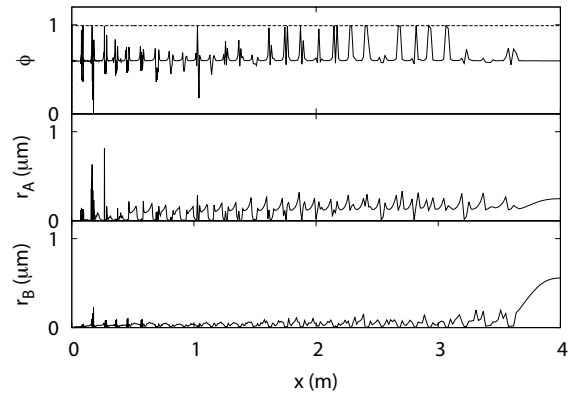
#22



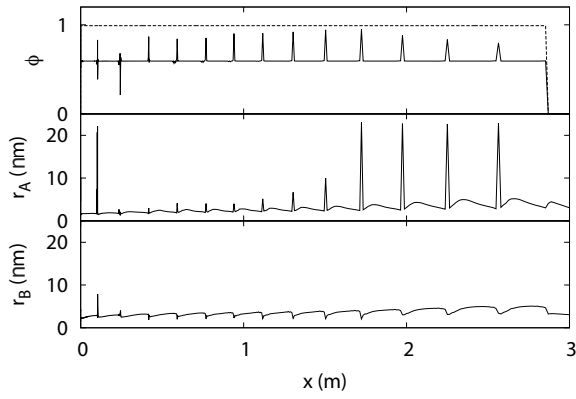
#23



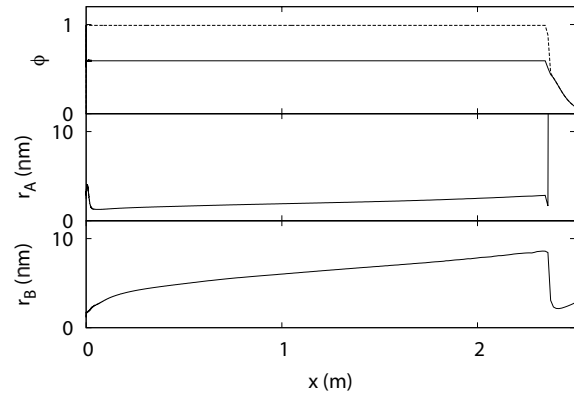
#24



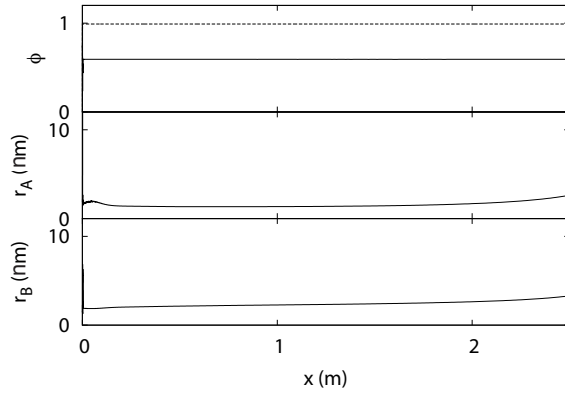
#25



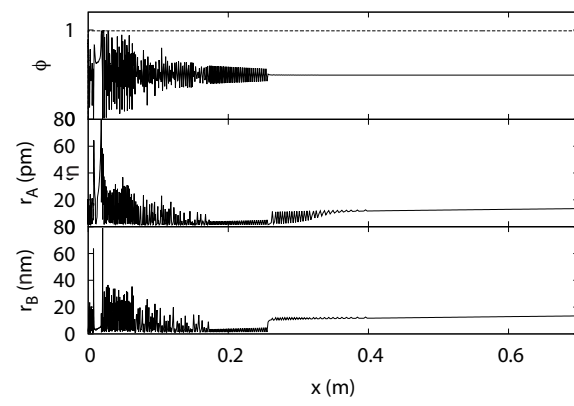
#26



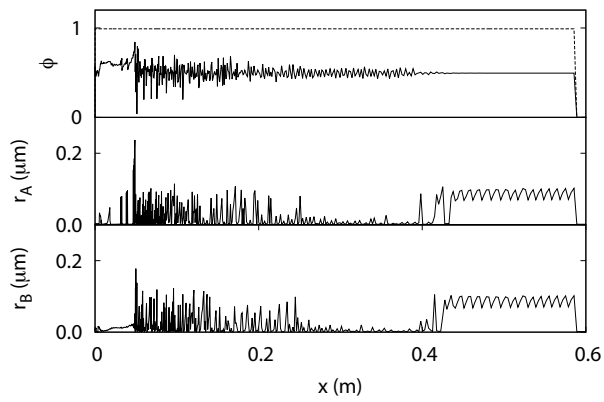
#27



#28



#29



Bibliographie

- Ahrens, T. & Thomas, J. (1995). *Mineral Physics & Crystallography : a Handbook of Physical Constants*, American Geophysical Union, Washington.
- Becker, R. & Döring, W. (1935). Kinetische Behandlung der Keimbildung in übersättigten Dämpfen, *Annalen der Physik* **1**(19) : 130–131.
- Bektursunova, R. & L’Heureux, I. (2011). A Reaction-Transport Model of Periodic Precipitation of Pyrite in Anoxic Marine Sediments, *Chemical Geology* **287** : 158–170.
- Boudreau, A. E. (1994). Mineral Segregation during Crystal Aging in Two-Crystal, Two-Component Systems, *South African Journal of Geology* **4** : 130–131.
- Boudreau, A. E. (1995). Crystal Aging and the Formation of Fine-Scale Igneous Layering, *Mineralogy and Petrology* **54** : 55–69.
- Boudreau, A. E. & McBirney, A. R. (1997). The Skaergaard Layered Series. Part III. Non-dynamic Layering, *Journal of Petrology* **38** : 1003–1020.
- Boudreau, B. P. (1997). *Diagenetic Models and Their Implementation*, Springer, New York.
- Brandeis, G., Jaupart, C. & Allègre, C. J. (1984). Nucleation, Crystal Growth and the Thermal Regime of Cooling Magmas, *Journal of Geophysical Research : Solid Earth* **89** : 10161–10177.
- Burton, W. K., Cabrera, N. & Frank, F. C. (1951). The Growth of Crystals and the Equilibrium Structure of their Surfaces, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A* **243** : 299–358.
- Chacron, M. & L’Heureux, I. (1999). A New Model of Periodic Precipitation Incorporating Nucleation , Growth and Ripening, *Physics Letters A* **263** : 70–77.
- Decitre, S., Gasquet, D. & Marignac, C. (2002). Genesis of Orbicular Granitic Rocks from the Ploumanac’h Plutonic Complex (Brittany, France) : Petrographical, Mineralogical and Geochemical Constraints, *European Journal of Mineralogy* **14** : 715–731.
- Dee, G. T. (1986). The Patterns Produced by Precipitation at a Moving Reaction Front, *Physical Review Letters* **5** : 5–8.

- Durant, D. G. & Fowler, A. D. (2002). Origin of Reverse Zoning in Branching Orthopyroxene and Acicular Plagioclase in Orbicular Diorite, Fisher Lake, California, *Mineralogical Magazine* **66** : 1003–1019.
- Elliston, J. N. (1984). Orbicules : An indication of the Crystallisation of Hydrosilicates, I, *Earth-Science Reviews* **20** : 265–344.
- Enz, R. D., Kudo, A. M. & Brookins, D. G. (1979). Igneous Origin of the Orbicular Rocks of the Sandia Mountains , New Mexico : Summary, *Geological Society of America Bulletin* **90** : 138–140.
- Feeney, R., Schmidt, S. L., Strickholm, P., Chadam, J. & Ortoleva, P. (1983). Periodic Precipitation and Coarsening Waves : Applications of the Competitive Particle Growth Model, *The Journal of Chemical Physics* **78** : 1293–1311.
- Fowler, A. Y. D. & L’Heureux, I. (1996). Self-Organized Banded Sphalerite and Branching Galena in the Pine Point Ore Deposit, Northwest Territories., *The Canadian Mineralogist* **34** : 1211–1222.
- Frenkel, Y. (1955). *Kinetic Theory of Liquids*, Dover, New York.
- Gibbs, J. W. (1876). *On the Equilibrium of Heterogeneous Substances*, Transaction of the Connecticut Academy III, New York.
- Gibbs, J. W. (1928). *On the Equilibrium of Heterogeneous Substances, Collected Works*, pp. 108-248, 343-524 edn, Longmans, Green & Co., New Haven.
- Grosse, P., Toselli, A. J. & Rossi, J. N. (2009). Petrology and Geochemistry of the Orbicular Granitoid of Sierra de Velasco (NW Argentina) and Implications for the Origin of Orbicular Rocks, *Geological Magazine* **147** : 451–468.
- Hess, H. H. (1960). Stillwater Igneous Complex, Montana, a Quantitative Mineralogical Study, *Geological Society of America Memoirs* **80** : 230.
- Hickey, J. (2012). *Beyond Classical Nucleation Theory : A 2-D Lattice-Gas Automata Model*, PhD thesis, University of Ottawa.
- Irvine, T. N. (1981). Terminology for Layered Intrusions, *Journal of Petrology* **23** : 127–162.
- Jablczinsky, K. (1923). La Formation Rythmique des Précipités : les Anneaux de Liesegang, *Bulletin de la Société Chimique de France* pp. 1592–1602.
- Jackson, E. D. (1970). The Cyclic Unit in Layered Intrusions – a Comparison of Repetitive Stratigraphy in the Ultramafic parts of the Stillwater, Muskox, Great Dyke, and Bushveld Complexes, *Special Publications Geological Society of South Africa* **1** : 391–424.
- Jackson, K. A. (2010). *Kinetic Processes*, Wiley-VCH, Weinheim.

- Kai, S., Müller, S. C. & Ross, J. (1982). Measurements of Temporal and Spatial Sequences of Events in Periodic Precipitation Processes, *Journal of Physical Chemistry* **76** : 1392–1406.
- Katsev, S. (2002). *Pattern Formation in Geochemical Systems*, PhD thesis, University of Ottawa.
- Katsev, S. & L’Heureux, I. (2001). Two-Dimensional Model of Banding Pattern Formation in Minerals by Means of Coarsening Waves : Mississippi Valley-Type sphalerite, *Physics Letters A* **292** : 66–74.
- Katsev, S., L’Heureux, I. & Fowler, A. D. (2001). Mechanism and Duration of Banding in Mississippi Valley-Type sphalerite, *Geophysical Research Letters* **28** : 4643–4646.
- Koenig, F. O. (1950). On the Thermodynamic Relation between Surface Tension and Curvature, *The Journal of Chemical Physics* **18** : 449–459.
- Levenson, D. J. (1966). Orbicular Rocks : a Review, *Geological Society of America Bulletin* **77** : 409–426.
- L’Heureux, I. (1993). Oscillatory Zoning in Crystal Growth : A Constitutional Undercooling Mechanism, *Physical Review E* **48** : 4460–4469.
- L’Heureux, I. (2000). Origin of Banded Patterns in Natural Sphalerite, *Physical Review E* **62** : 3234–45.
- L’Heureux, I. (2008). Elimination of the Intermediate Colloidal Product in Models of Periodic Precipitation Patterns, *Physics Letters A* **372** : 3001–3009.
- L’Heureux, I. (2010). The Effect of Volatile Bubble Growth Rate on the Periodic Dynamics of Shallow Volcanic Systems, *Nonlinear Processes in Geophysics* **17** : 221–235.
- L’Heureux, I. (2013). Self-Organized Rhythmic Patterns in Geochemical Systems, *Philosophical Transactions of the Royal Society A* **371** : 1–17.
- L’Heureux, I. & Bektursunova, R. (2010). *Modeling Liesegang Periodic Precipitation Patterns in Geochemical Systems*, Research Signpost, István Lagzi.
- Liesegang, R. E. (1896). Chemische Fernwirkung, *Photograph Archiv* **37** : 305–309.
- Lifshitz, I. M. & Slyozov, V. V. (1961). The Kinetics of Precipitation from Supersaturated Solid Solutions, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **19** : 35–50.
- Markov, I. (1995). *Crystal Growth for Beginners : Fundamentals of Nucleation, Crystal Growth and Epitaxy*, first edition edn, World Scientific, Singapore.
- Matalon, R. & Packter, A. (1955). The liesegang phenomenon. i. sol protection and diffusion, *Journal of Colloid Science* **10** : 46–62.

- McBirney, A. R. & Noyes, R. M. (1979). Crystallization and Layering of the Skaergaard Intrusion, *Journal of Petrology* **20** : 487–554.
- Morse, H. & Pierce, G. (1903). Diffusion und Übersättigung in gelatine, *Zeitschrift für Physikalische Chemie* **45** : 589–595.
- Ortoleva, P. J. (1993). *Geochemical Self-Organization*, Oxford University Press, New York.
- Ostwald, W. (1897). *Lehrbuch der Allgemeinen Chemie*, W. Engelmann, Leipzig.
- Press, W. H., Tevkoisky, S. A., Vetterling, W. T. & Flannery, B. P. (2007). *Numerical Recipes : the Art of Scientific Computing*, 3 edn, Cambridge University Press, New York.
- Rogerson, M. A. & Cardoso, S. S. S. (2000). Patterns of Bubble Desorption During the Solidification of a Multicomponent Melt, *Journal of Fluid Mechanics* **419** : 263–282.
- Sadek, S. & Sultan, R. (2010). *Liesegang Patterns in Nature : A Diverse Scenery Across the Sciences in Precipitation Patterns in Reaction-Diffusion Systems*, Research Signpost, István Lagzi.
- Steefel, C. I. & MacQuarrie, K. T. B. (1996). Approaches to Modeling of Reactive Transport in Porous Media (*in* Reactive Rransport in Porous Media), *Reviews in Mineralogy* **34** : 85–129.
- Strang, G. (1968). On the Construction and Comparison of Difference Schemes, *SIAM Journal on Numerical Analysis* **5** : 506–517.
- Toramaru, A. (1991). Model of Nucleation and Growth of Crystals in Cooling Magmas, *Contributions to Mineralogy and Petrology* **108** : 106–117.
- Toramaru, A. (2001). A Numerical Experiment of Crystallization for a Binary Eutectic System with Application to Igneous Textures, *Journal of Geophysical Research* **106** : 4037–4060.
- Toramaru, A., Ishiwatari, A., Matsuzawa, M., Nakamura, M. & Arai, S. (1997). Correction to vesicle layering in solidified intrusive magma bodies : A newly recognized type of igneous structure, *Bulletin of Volcanology* **58** : 343–344.
- Toramaru, A., Ishiwatari, A., Matsuzawa, M., Nakamura, N. & Arai, S. (1996). Vesicle Layering in Solidified Intrusive Magma Bodies : a Newly Recognized Type of Igneous Structure, *Bulletin of Volcanology* **58** : 393–400.
- Toramaru, A. & Matsumoto, M. (2012). Numerical Experiment of Cyclic Layering in a Solidified Binary Eutectic Melt, *Journal of Geophysical Research* **117** : B02209.
- Tsander, I. (2005). *Numerical Study of Factors Affecting the Cycling of Iron, Sulfur and Phosphorus in Lake Sediments*, PhD thesis, University of Ottawa.

- Turing, A. M. (1952). The Chemical Basis of Morphogenesis, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* **237** : 37–72.
- Wang, Y. & Merino, E. (1993). Oscillatory Magma Crystallization by Feedback between the Concentrations of the Reactant Species and Mineral Growth Rates, *Journal of Petrology* **34** : 369–382.
- Winter, J. D. (2001). *An Introduction to Igneous and Metamorphic Petrology*, Prentice Hall, New Jersey.