

Etude des mecanismes de condensation des gaz magmatiques - exemple de l'Etna (Italie)

F. LE GUERN *Centre des Faibles Radioactivités, Domaine du C.N.R.S., 91190 Gif sur Yvette, France*
A. BERNARD *Laboratoire de Geochimie, Université libre de Bruxelles, 50 Av. F.D. Roosevelt, B. 1050 Bruxelles, Belgique*

ABSTRACT

Sublimates were collected on Mt Etna in the gas escaping from the surface of an active lava flow. Deposition occurred on the wall of a silica tube. Temperatures of deposition for the different sublimates collected were recorded continuously with 6 Thermocouples along the tube.

At high temperature (300 to 860 °C) the sulfates of sodium, potassium and iron deposited.

Halogen were collected at low temperature with copper, zinc and nickel chloride; copper was also associated with sulfates.

RÉSUMÉ

Des sublimés ont été récoltés à l'Etna en 1976 dans les gaz émanant de la voute percée d'une coulée de lava active.

Le dépôt se met naturellement en place le long d'un tube de silice refroidi naturellement à l'air.

Le gradient de temperature étant enregistré de façon continue il est possible de connaître la temperature de dépôt de chacun des constituants.

Les sulfates de sodium, de potassium et de fer cristallisent à hautes temperatures (300 à 600 °C).

Dans les basses temperatures on voit apparaître les halogènes.

Le cuivre a été observé incorporé à des agrégats de sulfates.

Les chlorures de cuivre de zinc et de nickel ont été observés à basse temperature.

INTRODUCTION

Les gaz magmatique émis à 1000 ou 1220 °C se refroidissent pendant leur transit dans le sol, par échange avec les parois des fissures, mélange avec l'eau phréatique et l'air.

Ce refroidissement provoque des changements de phases: gaz - liquide et gaz - solide.

Ces produits de réaction sont déposés sur les parois des fissures, sur le sol autour des fumerolles ou sont dispersés avec les gaz dans le panache volcanique. Ils contiennent des concentrations variables de Na, K, Fe, Zn, Br, Cr, Ag, Co, Au, Pb, Sc, Rb, Pt, Se, Hg.. qui se combinent avec les constituants majeurs: soufre, chlore, fluor, et oxygène.

Jusqu'à très récemment l'étude de ces volatils n'a été entreprise que sur des sites naturels où les conditions physico-chimiques de dépôt par ailleurs variables étaient mal connues. A deux occasions seulement la composition des gaz transportant ces volatils vers la surface ont été analysés (SHINAYA et OANA, 1962; IWASAKI *et al.*, 1964). Des sublimés ont été prélevés et analysés sur de très nombreux volcans par de très nombreux auteurs parmi lesquels nous pouvons citer (BUNSEN, 1846; STE CLAIRE DEVILLE, 1855; LACROIX, 1904; BRUN, 1911; NABOKO, 1959; STOIBER *et al.*, 1974;

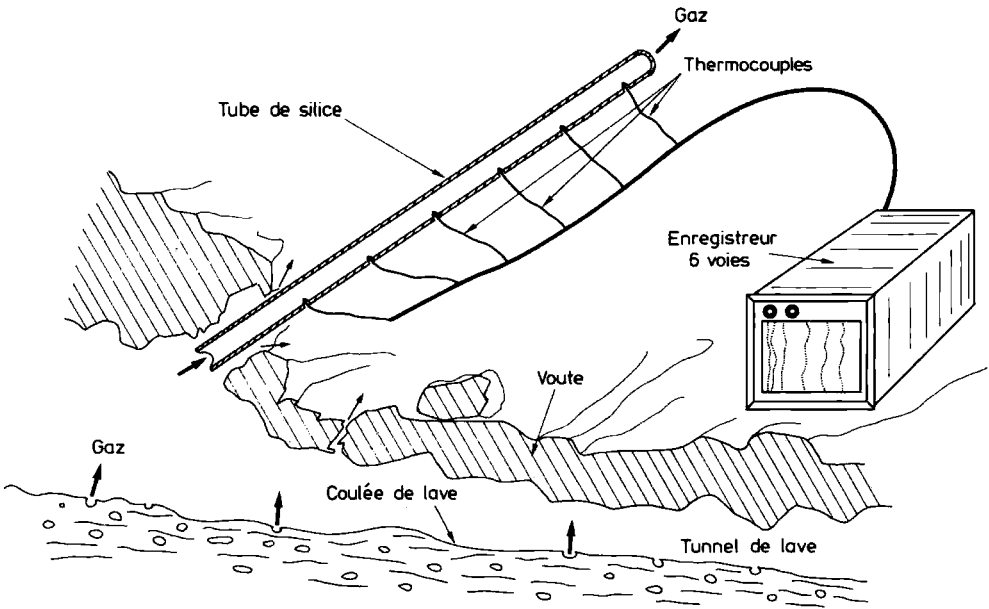


FIG. 1 — Système de prélèvement de sublimés avec enregistrement du gradient de température.

ANGUS *et al.*, 1976; BUAT MENARD *et al.*, 1978; MENYAILOV *et al.*, 1980).

Quelques auteurs ont considéré la relation entre les volatils et la roche mère (KENNEDY, 1948; KRAUSKOPF, 1964; IWASAKI, 1964). D'autres ont provoqué la sublimation sur des supports de compo-

sition chimique connue (NAUGHTON *et al.*, 1974). D'autres ont réalisé l'étude de ces incrustations au laboratoire en dégazant des laves dans un four étanche avec sublimation le long d'un tube en silice se refroidissant naturellement à l'extérieur (IWASAKI *et al.*, 1964).

Les résultats de toutes ces études réalisées sur volcans actifs sont groupées dans un inventaire publié en 1974 par Stoiber et ses collaborateurs.

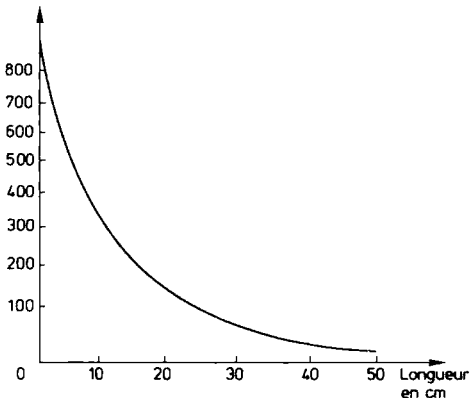


FIG. 2 — Repartition des températures le long du tube de silice.

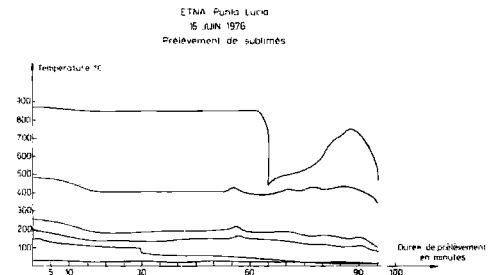


FIG. 3 — Influence des variations de débit des gaz volcaniques sur la répartition du gradient de température.

Très peu d'informations ont été obtenues concernant les mécanismes de mise en place.

Les composants majeurs de la phase gazeuse ne sont pas connus, certains auteurs ont obtenus des valeurs utilisables en calculs thermodynamiques en moyennant les résultats obtenus sur d'autres volcans (KRAUSKOPF, 1964).

S'il est difficile d'étudier les mécanismes de changement de phase, il est possible de récolter le produit de leurs réactions en contrôlant in situ leurs différentes températures. C'est ce que nous avons tenté à l'Etna en 1976.

TECHNIQUES DE PRÉLÈVEMENT

Le système de prélèvement consiste en un tube de silice de 70 cm de long et d'un centimètre de diamètre équipé sur sa paroi externe de 6 thermocouples régulièrement espacés (Fig. 1).

Ce tube est introduit dans le jet gazeux et enfoncé suffisamment profond pour éviter les rétrodiffusions d'air.

Un gradient de température s'établit le long du tube, il correspond à l'équilibre entre l'apport et la déperdition de chaleur.

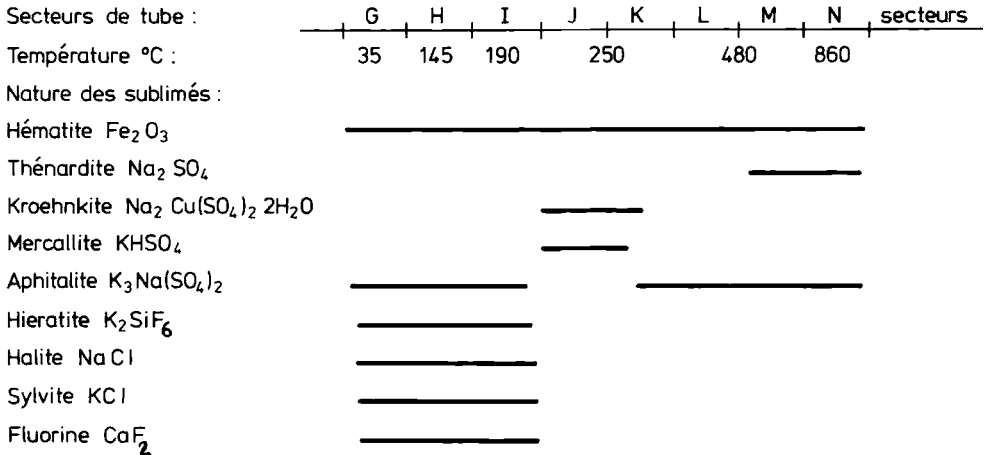
L'apport de chaleur se fait par convection naturelle des gaz volcaniques chauds dans le tube en silice. La déperdition de chaleur par unité de surface s'exprime selon la loi de Stephan Boltzmann. La déperdition totale de chaleur est proportionnelle à la surface externe du tube.

On peut modifier l'apport de chaleur en faisant varier le débit de gaz volcaniques (en obstruant plus ou moins l'entrée du tube contre les parois de la fissure).

On peut diminuer la déperdition de chaleur en réduisant sa longueur.

Les Figures 2 et 3 montrent l'influence des variations de débit sur la répartition du gradient de température. A la fin du prélèvement, la chute brutale du débit gazeux à travers les fissures du toit

COMPOSITION MINERALOGIQUE DES SUBLIMÉS RECOLTES DANS LE TUBE EN SILICE ETNA 1976.



Les barres horizontales indiquent la présence des espèces minéralogiques

FIG. 4 — Composition mineralogique des sublimés récoltés dans le tube silice, Etna 1976.

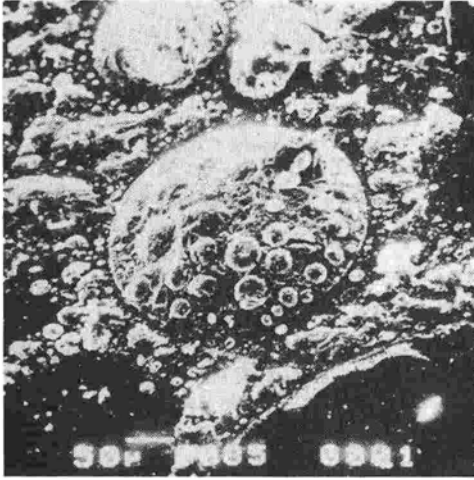


FIG. 5 — Portion M aerosols liquide recristallisé Aphaltite: $K_3Na(SO_4)_2$.

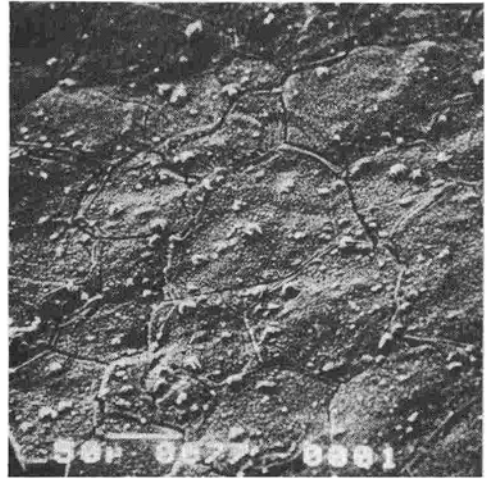


FIG. 6 — Portion K morphologie du dépôt.

refroidi de la coulée de lave nous a obligé à interrompre l'expérience.

METHODES D'ANALYSE

Au retour au laboratoire le tube a été coupé en tronçons: G, H, I, J, K, L, M, N, représentant les zones de dépôts entre 860 °C: température à l'entrée du tube et 35 °C température à la sortie.

Ces fragments ont été analysés par activation neutronique (Centre d'Etude Nucléaire de Saclay: Laboratoire Pierre Sue), et diffraction X, Microscopie Optique électronique et microsonde électronique (Université Libre de Bruxelles, Laboratoire de Géochimie).

L'analyse élémentaire

La technique d'analyse, les résultats obtenus et leur interprétation font l'objet d'une publication séparée (JORON *et al.*, ce volume).

Analyse minéralogique

Technique d'analyse — Afin de compléter l'analyse par activation, le

dépôt des différentes portions du tube a été récolté, mis en suspension dans CCl_4 et H_2O , puis filtré sur filtre membrane (porosité = 0,45 μm). Les filtres sont analysés successivement en microscopie optique, microscopie électronique et microsonde électronique. Finalement, une analyse en diffraction X est effectuée.

Tout au long du tube on peut observer des agrégats sphériques de cristaux

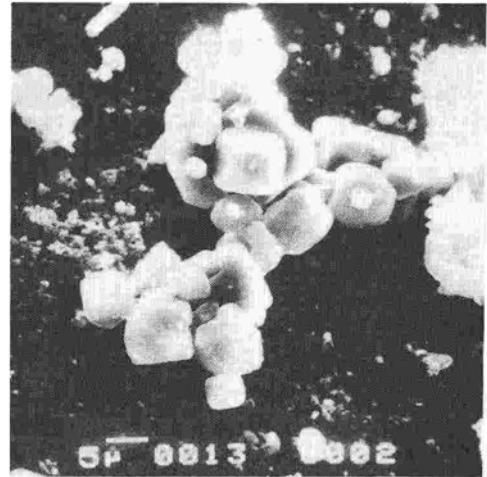


FIG. 7 — Portion L morphologie du dépôt.

présentant une morphologie de gouttelettes. Cet artefact est dû à la condensation d'H₂O et H₂SO₄ provoquée tout au long du tube lors de l'interruption naturelle fortuite du débit gazeux survenue après 95 minutes de prélèvement.

Ces agrégats ont une grosse dimension jusqu'à la portion L où ils laissent place à un dépôt plus régulier et plus épais à plus basse température (Fig. 4-5).

Minéralogie des espèces majeures - Les résultats obtenus sont représentés à la Fig. 4.

Dans les domaines des hautes températures se cristallisent essentiellement les sulfates de sodium et de potassium.

Thenardite Na₂SO₄

Aphthalite K₃Na(SO₄)₂

Mercallite KHSO₄

qui prédominent jusqu'à 230 °C.

Le rapport Na/K décroît fortement au fur et à mesure de l'abaissement de la température.

Dans les domaines de basses températures: on voit apparaître progressivement les halogènes.

Chlorures: Halite et Sylvite, et surtout Fluorures: la Hieratite et exceptionnellement la Fluorine (Fig. 6).

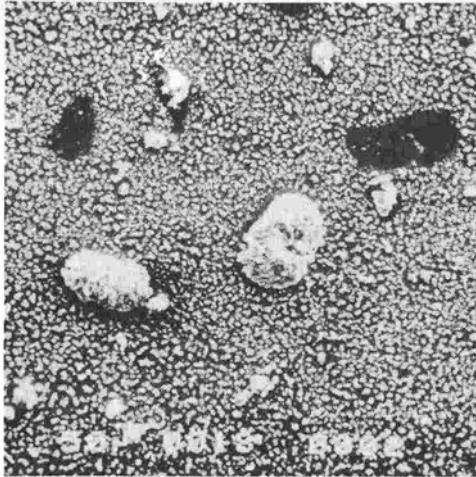


FIG. 8 - Portion G agrégat monocristallin de Hieratite K₂SiF₆.

En ce qui concerne les espèces mineures:

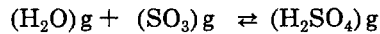
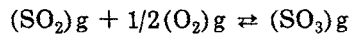
Le cuivre se condense dans la zone à 250 °C incorporé à de faibles concentrations dans les agrégats de sulfates, parfois assez concentré pour cristalliser sous forme d'un sulfate hydraté: la Kroehnkite (Na₂Cu(SO₄)₂ · 2H₂O. Aux environs de 140 °C, on a pu observer la formation de chlorure de cuivre et de zinc.

Le fer est présent sous forme de sulfate dans la zone de haute température et sous forme d'hématite répartie dans tout le tube. Un chlorure de Nickel se dépose à 860 °C. Du nickel est associé aux chlorures de Cu et de Zn aux environs de 145 °C. On rencontre Mn avec des sulfates de potassium et de fer aux environs de 200 °C.

Interprétation des résultats

Les résultats montrent qu'il existe des variations rapides et importantes de la composition du dépôt, et donc de la phase gazeuse en fonction de la température. Les expériences de ce type permettent donc d'établir les relations précises existant entre les rapports de concentrations des éléments et la température des gaz.

La présence de sulfates dans l'ensemble du tube (formés essentiellement à partir d'aérosols liquides sulfuriques) indique que la phase gazeuse était fortement oxydée par l'O₂ atmosphérique, l'air étant aspiré par convection naturelle entre la lave chaude et la croûte refroidie (Fig. 1). La formation de H₂SO₄ s'explique en effet par les réactions suivantes:



La présence d'aérosols liquides sulfuriques dans la phase gazeuse est impossible à des températures supérieures à 300 °C.

La condensation de H₂O et H₂SO₄ intervenue dans le tube lors de l'interruption du débit à la fin du prélèvement a probablement modifié complètement la nature des phases solides formées pendant la première période du prélève-

ment. Il est donc impossible de préciser les caractéristiques minéralogiques de la phase gazeuse d'où l'intérêt de raisonner sur l'abondance des éléments.

Cette méthode permet en fait de provoquer la condensation des volatils sur un support chimique connu en contrôlant la température de dépôt.

Une étude simultanée des aérosols atmosphériques doit permettre l'étude des mécanismes transformant la phase gazeuse volcanique en panache refroidi.

BIBLIOGRAPHIE

- ANGUS, J.G. and DAVIS, G. R., 1976, *Base metal enrichment in volcanic sublimates and secondary alteration products from Vesuvius and Vulcano*. Mineralogical Magazine, 40, p. 481-486.
- BRUN, A., 1911, *Recherches sur l'exhalaison volcanique*. Hermann, Paris, or Köndig, Genève, 267 pp.
- BUAT MENARD, P. and ARNOLD, M., 1978, *The heavy metal chemistry of atmospheric particulate matter emitted by Mt Etna volcano*. Geoph. res. letters, 5, n. 4, p. 245-248, April 1978.
- BUNSEN, M., 1846, *Etudes des émanations primitives de l'Héklá*. Annales de chimie et de physique, serie 3, XXXVIII, p. 260.
- IWASAKI, I., YOSHIDA, M., MAKINO, I., YONEHARA, N., 1964, *A model experiment on the formation of the volcanic sublimates from the magmatic emanations*. Bull. Vol. Soc. Japan, II, 9.1, p. 1-8.
- KENNEDY, G.C., 1948, *Equilibrium between volatiles and iron oxides in igneous rocks*. Am. J. Sci., 148, p. 529-549.
- KRAUSKOPF, K.B., 1964, *The possible role of volatiles metals compounds in ore genesis*. Econ. Geol., 59, p. 22-45.
- LACROIX, 1904, *La Montagne Pelée et ses éruptions*. Masson Editeurs, Paris, 662 pp.
- MENYALOV, I.A., NIKITINA, L.P., 1980, *Chemistry and metal content of magmatic gases: The new Tolbachik volcano case (Kamchatka)*. Bull. Volcanol., 43-1, pp. 197-205.
- NABOKO, S.I., 1959, *Volcanic exhalations and products of their reactions as exemplified by Kamchatka and Kuriles Volcanoes*. Bull. Volcanol., 20, p. 121-136.
- NAUGHTON, J.J., LEWIS, V.A., HAMMONEL, D., NISHIMOTO, D., 1974, *The chemistry of sublimates collected directly from lava fountains at Kilauea Volcano Hawaii*. Geoch. Cosmochim. Acta, 38, p. 1679-1690.
- SAINTE CLAIRE DEVILLE, Ch., 1855, *Observations sur la nature et la distribution des fumerolles dans l'éruption du Vesuve, 1er mai 1855*. Mallet Imprimeur, 55 quai des Augustins, Paris.
- SHINYA, O., 1962, *Volcanic gases and sublimates from Showashinsan*. Bull. Volcanol., Serie II, VII, p. 85-139.
- STOIBER, R.E., ROSE, W.I., 1970, *The geochemistry of central America volcanic gas condensates*. Geol. Soc. Amer. Bull., 81, p. 2891-2912.
- , ———, 1974, *Fumaroles incrustations at active Central American Volcanoes*. Geoch. Cosmochim. Acta, 38, p. 295-316.

Ms. received by the IAVCEI Publication Office for the press, July 1982.