

Introduction: Le fer est le deuxième élément le plus abondant dans les planètes telluriques après l'oxygène. Par conséquent, tout effet nucléosynthétique mis en évidence avec sa composition isotopique est susceptible de correspondre à une large fraction de la matière mise en jeu dans la formation des planètes du système solaire. Toutefois, à l'exception d'un excès de ^{58}Fe découvert dans trois inclusions réfractaires de la météorite d'Allende [1], des travaux récents n'ont pas permis de confirmer ce résultat [2,3]. Les trois autres isotopes stables du fer, ^{54}Fe , ^{56}Fe et ^{57}Fe ne montrent que des variations isotopiques dépendantes de la masse dans les chondrites et leurs inclusions. Les grains présolaires pourraient être une exception à cette règle [7], mais ce résultat a été remis en cause [8]. Afin de vérifier si des abondances anormales de l'isotope riche en neutron ^{58}Fe existent effectivement dans les objets primitifs du système solaire, nous avons développé une nouvelle approche analytique utilisant la spectrométrie de masse à torche à plasma en multicollection (MC-ICP-MS) à haute résolution de masse.

Echantillons et méthodes: Une technique de lessivage ménagée, dérivée de celles établies par [9,10] a été utilisée pour extraire sélectivement le fer de différents espèces minérales de la météorite d'Orgueil. Cette procédure a été dupliquée et pour l'une des expériences, une partie du solide a été prélevée à chaque étape et étudiée à l'aide d'un microscope électronique à balayage équipé d'un analyseur à dispersion d'énergie. L'échantillon d'Allende a été écrasé et les chondres et inclusions réfractaires ont été sélectionnés sous la loupe binoculaire.

Nous avons développé un protocole analytique de la mesure précise des rapports isotopiques du fer utilisant un MC-ICP-MS de haute résolution couplé à un système de désolvatation et un cône écrémeur modifié permettant une sensibilité maximale de l'instrument. Combiné à une purification chimique plus poussée que celle utilisée habituellement [11], cette procédure nous permet de mesurer le ^{58}Fe avec des signaux $>300\text{mV}$, donc permettant une bonne statistique de comptage et une précision équivalente sur les rapports $\delta^{57}\text{Fe}$ et $\delta^{58}\text{Fe}$ par unité de masse atomique. Pour l'instant, la reproductibilité estimée pour $\delta^{58}\text{Fe}$ est meilleure que 0.3‰ (2SD).

Résultats: Pour l'expérience sur la météorite d'Orgueil, les trois premiers lessivages permettent de recueillir près de 90% du fer présent (Fig. 1). L'étude au MEB suggère que le lessivage à l'acide nitrique (étape n°2) affecte notamment les sulfures alors que les oxydes sont surtout dissous lors des étapes utilisant l'acide chlorhydrique. Le fer des

silicates doit être lessivé tout au long de la séquence compte tenu de la très faible proportion de fer contenue dans l'attaque finale à l'HF (Fig. 1).

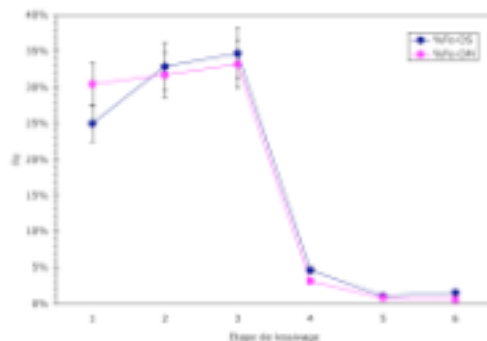


Figure 1 : Proportions de fer obtenues à chaque étape de lessivage ménagé de la météorite d'Orgueil. OS et OM sont deux expériences distinctes. Étapes : 1 : acide acétique ; 2 : acide nitrique ; 3, 4 et 5 : acide chlorhydrique (durées et températures différentes) ; 6 : acides fluorhydrique et nitrique.

Les fractionnements isotopiques du fer dépendants de la masse montrent que les deux premières étapes (acide acétique et acide nitrique) relâchent un fer isotopiquement léger par rapport à la référence IRMM-14, qui correspond à la composition en roche totale d'Orgueil [12], alors que la première étape à l'HCl se caractérise par un fer isotopiquement lourd. Les deux étapes suivantes, à l'HCl, montrent des signatures isotopiques devenant plus légères de nouveau (Fig. 2).

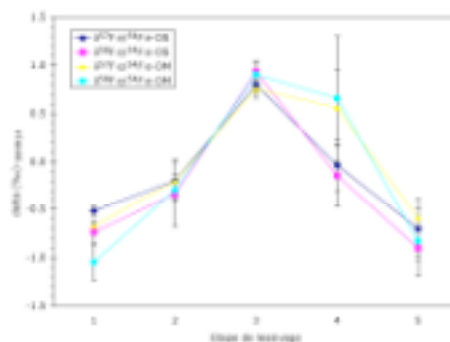


Figure 2 : Variations isotopiques du fer dépendantes de la masse pour chaque phase de lessivage de la météorite d'Orgueil. Voir la Figure 1 pour les étapes de lessivage.

Le rapport isotopique du fer $^{58}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$, normalisé par rapport à $^{57}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ suivant une loi exponentielle, exprimé en $\epsilon^{58}\text{Fe}$ (en pour dix mille), ne montre pas d'enrichissement ou d'appauvrissement indépendant de la masse au niveau de $\sim 1\text{‰}$ pour les deux expériences de lessivage ménagé (Fig. 3).

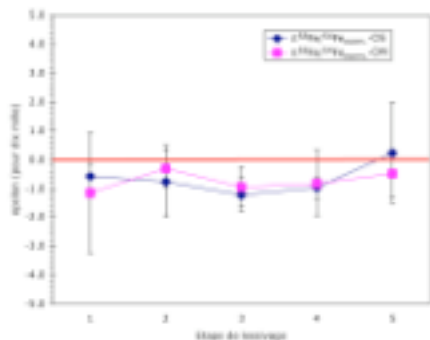


Figure 3 : Variations isotopiques du fer indépendantes de la masse pour chaque phase de lessivage de la météorite d'Orgueil. Voir la Figure 1 pour les étapes de lessivage.

Parallèlement, des résultats préliminaires obtenus sur un chondre (POP) et deux inclusions réfractaires (une finement cristallisée et une grossière, toutes deux de type A) de la météorite d'Allende, après attaque totale, ne montrent pas de variations significatives de $\epsilon^{58}\text{Fe}$ non plus.

Discussion: Les variations de composition isotopiques dépendantes de la masse (Fig. 2) peuvent s'interpréter en fonction de la nature des phases minérales qui sont dissoutes (étapes n°1 à 3) ou bien en termes de spéciation du fer en solution (étape n°3). Par exemple, l'étape n°2 à l'acide nitrique paraît dissoudre principalement des sulfures de fer, dont la composition isotopique tend à être plutôt légère [13] alors que l'étape n°3, qui utilise pour la première fois de l'acide chlorhydrique, commence à dissoudre les oxydes de fer, qui sont isotopiquement plus lourds [13]. Alternativement, la composition isotopiquement lourde du fer de l'étape n°3 peut s'expliquer par la complexation des ions chlorures avec le fer en solution qui va favoriser les isotopes lourds lorsque les concentrations d' $\text{HCl} > 1\text{M}$ [14].

D'après les travaux de [9,10], ce sont les deux premières étapes utilisant l'acide chlorhydrique (soit ici les étapes n°3 et 4) qui permettent de recueillir le Cr avec les enrichissements les plus importants de l'isotope le plus riche en neutrons, le ^{54}Cr . Si ces anomalies isotopiques étaient corrélées, comme le suggèrent les modèles de nucléosynthèse et les résultats préliminaires de [1], alors les enrichissements indépendants de la masse d'isotopes riches en neutrons des autres éléments du groupe du fer devraient être observés pour ces étapes de lessivage également. Les résultats obtenus lors de cette étude montrent que ce n'est pas le cas (Fig. 3). Cette conclusion avait déjà été précédemment tirée au cours d'études utilisant la spectrométrie de masse à thermoionisation [9, 15], mais nous pouvons la confirmer à un niveau de précision supérieur (1ϵ). Une autre étude récente, utilisant aussi un MC-ICP-MS, mais suivant une approche analytique différente de la notre (avec une cellule de collision) aboutissait aussi à cette

conclusion avec un degré de précision similaire sur des analyses de roches totales de météorites [3]. Les inclusions réfractaires analysées par [1] sont pour certaines caractérisées par des compositions isotopiques très rarement observées et d'autres inclusions réfractaires doivent être analysées pour connaître plus précisément l'abondance de ces témoins de fer isotopiquement anormal. Si ces cas d'anomalies isotopiques du fer restaient aussi restreints, cela suggérerait que cet élément a été homogénéisé beaucoup plus facilement dans la nébuleuse protoplanétaire, après l'explosion de la supernovae qui aurait générée ces noyaux riches en neutrons, que les autres éléments du groupe du fer, dont en particulier le chrome. Une autre explication possible est que les modèles nucléosynthétiques doivent être revus.

Remerciements: La météorite d'Orgueil a été fournie par le Muséum d'Histoire Naturelle de Toulouse et celle d'Allende par l'USNM de Washington.

Bibliographie: [1] Völkening, J. and D.A. Papanastassiou, 1989. *Astrophysical Journal* 347: L43-L46. [2] Khem, K., et al., 2003. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 67: 2879-2891. [3] Dauphas, N., et al., 2004. *Analytical Chemistry* 76: 5855-5863. [4] Zhu, X.K., et al., 2001. *Nature*, 2001. 412: 311-313. [5] Poitrasson, F. et al., 2005. *Earth and Planetary Science Letters* 234: 151-164. [6] Mullane, E. et al., 2005. *Earth and Planetary Science Letters*. 239: 203-218. [7] Davis, A.M., et al. 2002. *Lunar and Planetary Science XXXIII*. Houston. [8] Marhas, K.K. et al., 2004. *Lunar and Planetary Science XXXV*. Houston. [9] Rotaru, M. et al., 1992. *Nature*. 358: 465-470. [10] Podosek, F.A., et al., 1997. *Meteoritics and Planetary Science*. 32: 617-627. [11] Poitrasson, F. and Freydir, R., 2005. *Chemical Geology* 222: 132-147. [12] Poitrasson, F. et al., 2004. *Earth and Planetary Science Letters* 223: 253-266. [13] Polyakov, V.B. and Mineev, S.D., 2000. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 64: 849-865. [14] Anbar, A.D. et al., 2000. *Science* 288: 126-128. [15] Podosek et al., 1997. *LPSC XXVIII*, 1695.pdf.