

Origine du matériel altéré et hétérogénéité du matériel originel de la météorite Fom Tatahouine (Tunisie) : éléments traces et isotopes du Sr

Yasmine Bentahila, Dalila Ben Othman, Jean-Marc Luck*

GTS, UMR 5573, Département des sciences de la Terre, de l'eau et de l'espace, université Montpellier-2, place Eugène-Bataillon, 34095 Montpellier, France

Reçu le 21 novembre 2001 ; accepté le 11 décembre 2001

Présenté par Claude Jaupart

Abstract – Origin of altered material and heterogeneity of original material in the Fom Tatahouine meteorite (Tunisia): Trace elements and Sr isotopes. Fom Tatahouine is one of the rare meteorites that allow studying weathering effects since their fall on Earth. The comparison between clasts collected the very day of the fall (1931) and in 1994 showed some chemical modifications. We report data obtained on samples collected in 2000. The purpose of this study is: (1) to define (REE, Sr isotopes) the terrestrial weathering origin that is to be found in soil carbonates, (2) to show (Sr, Rb, REE) that the weathering effects are small on centimetre-sized samples, and (3) to emphasise (HREE) Fom Tatahouine samples heterogeneity. *To cite this article: Y. Bentahila et al., C. R. Geoscience 334 (2002) 267–272.* © 2002 Académie des sciences / Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

Fom Tatahouine / weathering processes / heterogeneity / trace elements / rare earth elements / Sr isotopes / meteorite / Tunisia

Résumé – Fom Tatahouine est l'une des rares météorites ayant permis d'évaluer les effets engendrés par les phénomènes d'altération terrestre. Une étude comparative entre des échantillons prélevés lors de sa chute (1931) et en 1994 avait mis en évidence des modifications de composition chimique. La présente étude porte sur des échantillons centimétriques prélevés en 2000. Elle permet (1) de préciser (REE, isotopie du Sr) la provenance de l'altération terrestre qui est à rechercher dans les carbonates du sol, (2) de montrer (Sr, Rb, REE) que les effets de cette altération sont minimes sur des échantillons centimétriques, et (3) d'insister (HREE) sur l'hétérogénéité des échantillons de Fom Tatahouine. *Pour citer cet article : Y. Bentahila et al., C. R. Geoscience 334 (2002) 267–272.* © 2002 Académie des sciences / Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

Fom Tatahouine / altération / hétérogénéité / isotopes du Sr / éléments traces / terres rares / météorite / Tunisie

Abridged version

1. Introduction

The Tatahouine diogenite, which fell on 27 June 1931, is one of the rare meteorites for which the study of weathering processes is possible. The comparison between clasts of Tatahouine samples, collected the very day of the fall and 63 years later in 1994, allows evaluation of mineralogical and chemical effects of terrestrial residence on meteorites. The presence of terrestrial elements inside or around

samples has often been demonstrated, for example, a Pb contamination in some chondrites [1, 6], or REE anomalous patterns in some Antarctic Eucrites [5, 9].

Barrat et al. in 1998 [2, 3] have shown that, for Tatahouine, the modification of the meteoritic signature is rather rapid. The Sr abundance in the samples of year 1931 (FT 1931) is below 80 ppb, while it is close to 1 ppm in the samples of year 1994.

Fom Tatahouine is very poor in trace elements, compared to most of the HED [8, 13]. Thus, Barrat et al. [3] showed in 1998 that 0.3% of the soil carbonate fraction is

* Correspondance et tirés à part.
Adresse e-mail : jmluck@dstu.univ-montp2.fr (J.-M. Luck).

enough to explain the high Sr abundance in the samples of year 1994.

We have analysed samples collected in 2000 (FT 2000) and determined trace elements (in particular REE) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, in order (1) to quantify the weathering effects in samples of year 2000, (2) to specify the weathering origin through a more detailed analysis of the soil, and (3) to estimate the homogeneity of original material, the samples of year 2000 being bigger than the ones of year 1994 (FT 1994).

2. General presentation

The fall of Fom Tatahouine has been observed on 27 June 1931, in southeastern Tunisia. The material, formed at 80% of orthopyroxene, has been broken up during the impact, rendering the discovery of full-size samples difficult. The impact zone is formed of Jurassic limestone rocks in the Northeast of the Fom Tatahouine town [7]. Fom Tatahouine is a diogenite that originally formed as a cumulate in one or more magmas undergoing fractional crystallisation [8, 10, 11].

3. Methods

Powders of soil were prepared using an agate mortar and dissolved using an acetic buffer to separate carbonate and silicate fractions. The residues were dissolved in sub-boiled HF/HNO₃.

The Fom Tatahouine sample was washed in acid water (pH 3) during a few minutes: the decontamination solution #1 was analysed. We repeated this operation on a second sample (decontamination solution #2). The sample was then ground in a boron carbide mortar previously contaminated by a small part of the sample, and dissolved in a screw-top Teflon® container using hot sub-boiled HF/HNO₃. The concentrations of trace elements were determined by inductively coupled plasma–mass spectrometry (ICP–MS), the Sr isotopic composition by mass spectrometry (VG sector).

4. Results and discussion

The results are given in Table 1. In spite of the very light (pH 3, few minutes) decontamination procedure, the Sr concentration of FT 2000 sample is clearly smaller than that of FT 1994 samples [3] and close to those of FT 1931 (Fig. 1). These results are confirmed by the rare earth ele-

ment patterns (Figs. 2a and 2b): indeed, the concentrations of rare earth elements of FT 2000 sample are close to those of the samples of year 1931.

Consequently, it appears that the effects of weathering process are not only related to the residence time on Earth of this meteorite, but also to the samples size and structure: large samples are presumably more resistant to terrestrial weathering than smaller samples which present a lot of cracks. Their size is an indication of their resistance to their falling on Earth.

The concentrations in REEs are higher in carbonate than in bulk soil and silicates (Table 1, Fig. 3), because of the high proportion of sand (>80%). The rare earth element patterns of both decontamination solutions (Fig. 4) are identical to those of the soil carbonates ones.

Moreover, the Sr isotopic compositions are identical in the decontamination solution and in soil carbonate (Table 2).

Three proofs confirm that the elements that were dissolved during the decontamination procedure are superficial: (1) the decontamination procedure was very light (pH 3, a few minutes); (2) the decontamination solution has different REE and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ characteristics than Fom Tatahouine ones ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.72460$) [4, 12]; (3) the decontamination solution has the same characteristics as the soil carbonates.

Sr isotopic analyses and rare earth patterns constitute together undeniable proofs of the weathering origin, which is to be found in soil carbonates.

As regards HREE (Heavy Rare Earth Elements), the FT 2000 sample is less HREE-enriched than FT 1994 and FT 1931 samples (Figs. 2a and 2b). This difference points to the heterogeneity of Fom Tatahouine samples; this diogenite has certainly suffered two stages of formation during the parent body differentiation.

5. Conclusion

The Rare Earth Elements, Sr and Rb concentration of the Tatahouine diogenite show that the 2000 samples are only mildly weathered; we suggest therefore that this is due to their larger sizes.

The Rare Earth patterns allow us to specify the weathering origin, which is to be found in the soil carbonates; this is also supported by the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ data.

Finally, the HREE concentrations suggest that this diogenite is very heterogeneous.

1. Introduction

La particularité de Fom Tatahouine réside dans le fait que des échantillons ont pu être prélevés en 1931, juste après sa chute, puis en 1994 et en 2000. La comparaison entre ces séries d'échantillons permet d'étudier les effets de l'altération terrestre. Une

bonne connaissance de ces phénomènes d'altération est indispensable pour déterminer si la chimie d'une météorite est encore représentative ou si elle a été modifiée de façon non négligeable.

La présence d'éléments d'origine terrestre à l'intérieur ou sur le pourtour des météorites a été mise en évidence à de nombreuses reprises dès le début

Tableau 1. Concentrations des éléments traces (ppb) analysés sur l'échantillon de FT 2000 et dans le sol (carbonates et silicates).

Table 1. Concentrations of trace elements (ppb) in the FT 2000 sample and strewnfield soil (carbonates and silicates).

Échantillons	Rb	Sr	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Pb	Th	U
FT 2000 #1	23	21	3,1	8,1	0,9	3,8	0,9	0,2	1,7	0,5	3,8	1,2	4,9	0,9	8,3	1,8	59	0,3	3,3
FT 2000 #2	23	28	4,3	10,2	1,2	5,1	1,3	0,2	2,2	0,6	5,3	1,7	7,0	1,4	11,6	2,4	–	–	–
Sol total	860	52000	2000	4800	540	2100	330	67	290	43	210	50	142	22	180	28	4800	24	1100
Carbonates	5000	260000	3900	9600	1100	4800	1000	230	830	130	660	140	350	46	260	38	1200	340	–
Silicates	1100	12900	48	99	9,2	32	5,6	0,2	6,9	1,9	12,9	3,8	13,9	2,4	41,0	3,0	68	710	–

des années 80, bien que rarement quantifiée : par exemple, une contamination terrestre en Pb dans certaines chondrites [1, 6], ou encore des abondances inhabituelles en terres rares dans certaines eucrites d'Antarctique [5, 9]. Les effets de la contamination terrestre restent toutefois difficiles à évaluer, compte tenu de la large gamme de composition des sols et des processus de contamination.

Barrat et al. se sont intéressés en 1998 à l'altération de Fom Tatahouine [2] et, en particulier, aux variations de concentrations [3] de certains éléments, notamment Rb, Sr et les terres rares, entre des échantillons prélevés en 1931 (FT 1931) et d'autres en 1994 (FT 1994), démontrant, pour cette météorite, que la vitesse de modification de la signature météoritique est rapide. Ainsi, l'abondance du Sr dans les échantillons prélevés en 1931 est très faible (< 80 ppb), tandis que les échantillons de 1994 présentent des concentrations dix fois plus importantes, de l'ordre de 1 ppm. Il est important de souligner que Fom Tatahouine est très sensible à l'altération terrestre, car extrêmement pauvre en éléments traces, comparée à la grande majorité des HED [8, 13]. La plupart des éléments sont ainsi beaucoup plus abondants dans le sol que dans cette météorite : Barrat et al. [3] ont ainsi mis en évidence en 1998 que seulement 0,3% de la fraction carbonatée du sol total suffisait à expliquer la forte abondance en Sr des échantillons de 1994.

La présente étude se proposait (1) de quantifier les effets de l'altération terrestre sur des échantillons prélevés en 2000 (FT 2000), (2) de préciser l'origine de cette altération par l'isotopie du Sr et une analyse plus fine du sol situé dans la zone d'impact et (3-) d'estimer l'homogénéité du matériel météoritique de Fom Tatahouine, les échantillons 2000 étant de taille centimétrique, plus gros que ceux de 1994.

2. Présentation générale

La chute de Fom Tatahouine a été observée le 27 juin 1931, dans le Sud-Est de la Tunisie [7]. Le matériel, constitué à plus de 80% d'orthopyroxène, a été pulvérisé à basse altitude, voire lors de l'impact, ce qui rend difficile la découverte d'échantillons de taille

importante. La zone d'impact se situe au nord-est de la ville de Fom Tatahouine, dans des faciès essentiellement calcaires et marno-calcaires d'âge Jurassique. Fom Tatahouine fait partie de la catégorie des diogénites, météorites différenciées, interprétées comme des cumulats formés par extraction d'un liquide résiduel [8, 10, 11].

3. Méthodes

Après broyage dans un mortier en agate, l'échantillon de sol est lessivé par un tampon acétique (pH 4) pour l'analyse séparée des fractions carbonatée et silicatée. Le résidu silicaté est alors dissous par HNO₃/HF à chaud sous pression.

L'échantillon FT 2000 est préalablement plongé dans de l'eau légèrement acidifiée (HNO₃, pH 3) durant quelques minutes : la « solution de décontamination #1 » obtenue est analysée. Cette opération est appliquée à un deuxième échantillon centimétrique (« solution de décontamination #2 »).

La météorite décontaminée (~630 mg) est ensuite broyée dans un mortier en carbure de bore, puis dissoute à chaud sous pression durant 48 h dans HF/HNO₃. Les concentrations en éléments traces sont obtenues par ICP-MS (précisions de ±3–5%), les compositions isotopiques du Sr sont mesurées par spectrométrie de masse (VG Sector) après séparation chimique sur résine Sr-Spec[®] (EiChrom Ind).

Les teneurs mesurées sur la météorite décontaminée étant très basses (Tableau 1), les niveaux de contamination des deux principales étapes (broyage et traitement chimique) ont pu être estimés : le broyage apporte environ 10 et 15% du rubidium et du strontium, respectivement, et moins de 25% des terres rares. Quant au traitement chimique, toutes les quantités apportées sont inférieures à 5%, quel que soit l'élément. Ces quantités sont suffisamment faibles pour ne modifier, ni l'allure du spectre de terres rares, ni, par conséquent, les conclusions qui en sont tirées. Les quantités introduites par les manipulations sont négligeables par rapport aux autres analyses (sol, solutions de décontamination).

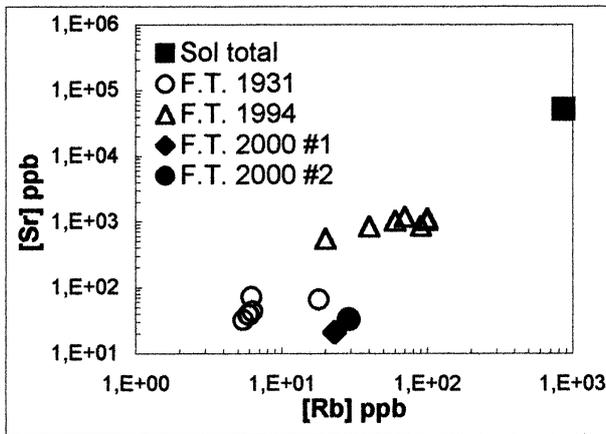


Figure 1. Comparaison dans un diagramme $[Sr] = f([Rb])$ entre les échantillons FT 2000 (ce travail) et les échantillons FT 1931 et FT 1994 [3].

Figure 1. $[Sr]$ vs $[Rb]$ plot for FT 2000 samples (this work). Comparison with data for FT 1931 and FT 1994 samples [3].

4. Résultats et discussion

4.1. Quantification de l'altération sur l'échantillon FT 2000

Foum Tatahouine est beaucoup plus pauvre en éléments traces que la majorité des météorites HED. La quantité de Sr arrachée à l'échantillon lors de l'opération de décontamination est d'environ 210 ng. Si cette quantité est rapportée au poids de l'échantillon, celui-ci avait, avant décontamination, une concentration totale en Sr de 334 ppb, plus faible, mais du même ordre de grandeur, que la concentration de 850 ppb rapportée par Barrat et al. [3] sur un échantillon FT 1994, altéré. Malgré la procédure de décontamination peu agressive (HNO_3 , pH 3), la concentration en Sr de l'échantillon FT 2000 décontaminé (24 ppb) est nettement plus basse (d'un facteur supérieur à 20) que la concentration de 550 ppb obtenue par ces auteurs sur un échantillon de 1994, pourtant lessivé avec HCl 6 N à chaud. Ainsi, l'échantillon FT 2000 analysé dans cette étude présente, après décontamination, des concentrations en Sr et Rb plus faibles par rapport aux échantillons FT 1994 (Fig. 1 et Tableau 1) et proches des valeurs des échantillons FT 1931, non altérés [3].

Ces résultats sont confirmés par les concentrations en terres rares (Figs. 2a et 2b), elles aussi très faibles : en effet, les concentrations en terres rares légères de l'échantillon FT 2000 décontaminé se situent dans la gamme de variation des concentrations des échantillons de 1931 (avec un pic négatif en Eu).

Il s'avère donc que les effets de l'altération terrestre à laquelle a été soumise cette diogénite ne sont pas liés uniquement au temps de résidence sur terre de cette météorite, mais également à la taille

et à la structure des échantillons : des échantillons plus gros (FT 2000, centimétriques) sont vraisemblablement plus résistants au choc et donc moins fissurés et sensibles à l'altération que des échantillons plus petits, fragiles (FT 1994), présentant de nombreuses fractures propices à la circulation de fluides.

4.2. Provenance de l'altération

Les concentrations en terres rares sont plus importantes dans les carbonates que dans le sol total et dans les silicates (Tableau 1 et Fig. 3). Ces résultats s'expliquent par une forte proportion de sable (>80 %) dans le sol total. Les concentrations en certains éléments (Rb, Pb, Th) obtenues pour le sol total situé dans la zone d'impact ne peuvent être expliquées par un mélange entre carbonates et silicates, et soulignent l'hétérogénéité de ce sol (les analyses ont été réalisées sur des aliquotes de poudre différentes).

Pour des raisons techniques, la quantité de matière dissoute lors de la décontamination n'a pas pu être pesée. Les concentrations en terres rares des deux solutions de décontamination sont ici données en considérant arbitrairement une quantité maximum de 10 mg dissoute. On constate néanmoins que l'allure du spectre de terres rares des deux solutions de décontamination est absolument identique à celui des carbonates du sol (Fig. 4).

Les résultats obtenus pour les compositions isotopiques du strontium montrent, par ailleurs, que le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ de la solution de décontamination ($0,70859 \pm 0,00009$) est identique à celui des carbonates du sol ($0,70862 \pm 0,00002$), compte tenu des barres d'erreur (Tableau 2).

Le problème posé lors de la procédure de lessivage réside dans la distinction entre une « vraie » décontamination de la météorite et la dissolution de phases mineures microscopiques faisant partie intégrante de la roche et pouvant contenir l'essentiel de certains éléments traces. Trois arguments indiquent que les composants dissous étaient très superficiels et « n'appartenaient pas » à la météorite : (1) la procédure de décontamination était très courte (2–3 min) et peu agressive (pH 3) ; (2) la solution de décontamination présente des caractéristiques (REE, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) très différentes de celles de Foum Tatahouine ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0,72460$) [4, 12] ; (3) en revanche, ces mêmes caractéristiques sont identiques à celles des carbonates du sol.

Couplées aux résultats obtenus sur les terres rares, les analyses isotopiques sont donc une preuve incontestable sur l'origine de l'altération de Foum Tatahouine, qui est à rechercher dans les carbonates du sol.

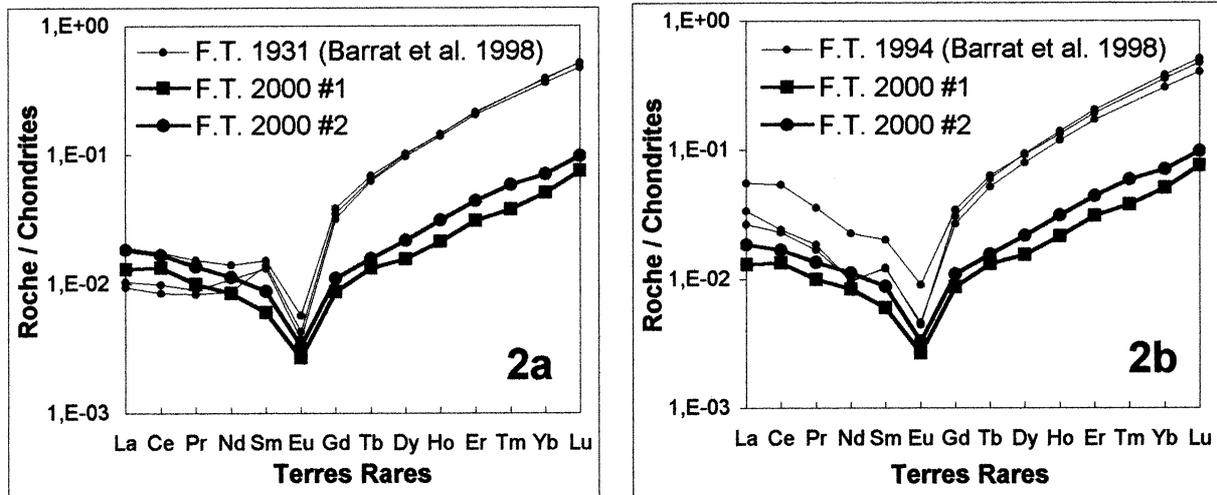


Figure 2. Spectres de terres rares normalisées aux chondrites. Comparaison entre l'échantillon FT 2000 et les échantillons de 1931 (a) et 1994 (b).
 Figure 2. Chondrite-normalised Rare Earth Element pattern of the FT 2000 sample. Comparison with samples of years 1931 (a) and 1994 (b).

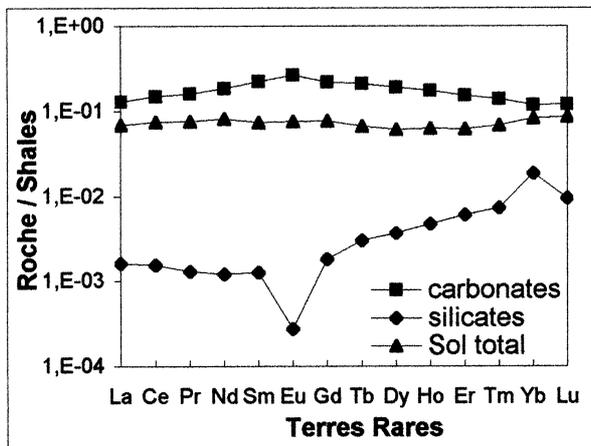


Figure 3. Spectres des terres rares normalisées aux shales obtenus pour le sol total, les carbonates et les silicates du sol.
 Figure 3. Rare Earth Element (REE) patterns of strewnfield soil, silicates and carbonates normalised to 'shales'.

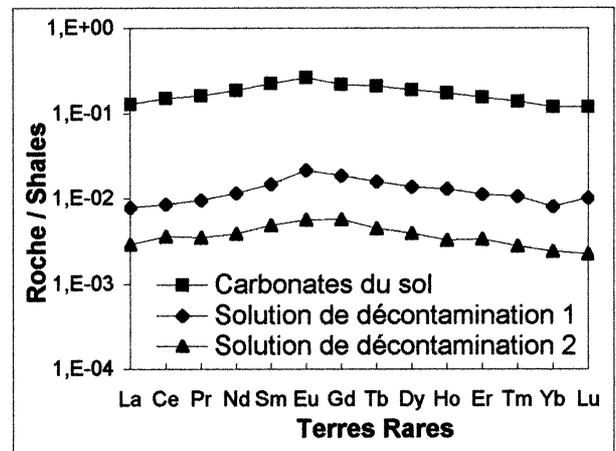


Figure 4. Spectres des terres rares normalisées aux shales des solutions de décontamination. Comparaison avec les carbonates du sol.
 Figure 4. Rare Earth Element pattern of decontamination solution normalised to 'shales'. Comparison with the soil carbonates.

Tableau 2. Compositions isotopiques en strontium du sol (carbonates et silicates) et de la solution de décontamination #1.

Table 2. Strontium isotopic composition of soil (carbonates and silicates) and decontamination solution #1.

	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$
Sol total	0,715 006	0,000 02
Silicates	0,725 039	0,000 04
Carbonates	0,708 621	0,000 02
Solution de décontamination #1	0,708 588	0,000 09

4.3. Hétérogénéité des échantillons de Fouv Tahouine

Comparé aux échantillons FT 1994 et FT 1931, l'échantillon FT 2000 décontaminé se distingue par

des concentrations en terres rares lourdes nettement plus faibles, d'un facteur 5 environ (Figs. 2a et 2b) : ces différences ne peuvent s'expliquer par une absence d'altération, car seules les terres rares légères sont vraiment sensibles à l'altération terrestre, les concentrations en terres rares lourdes étant du même ordre de grandeur dans les échantillons FT 1931 et FT 1994. Notons que ces concentrations faibles sont cohérentes avec les teneurs basses obtenues pour d'autres éléments incompatibles (Th, U, Pb).

Cette différence notable de concentrations montre donc l'hétérogénéité des échantillons de la météorite Fouv Tahouine, dont l'origine est à rechercher lors

de la genèse et de la différenciation du corps parent au cours d'un processus à deux stades [13].

5. Conclusion

L'étude des variations de concentrations des éléments traces de la météorite Foun Tatahouine permet de mieux comprendre comment et dans quelles proportions une météorite est capable d'acquérir une signature terrestre. Les terres rares, couplées aux concentrations en Sr et Rb, mettent en évidence une faible altération de l'échantillon FT 2000, attribuée au fait qu'il est plus gros et moins fracturé que ceux récupérés en 1994 [3].

Les analyses de compositions isotopiques en Sr, couplées aux concentrations en terres rares, permet-

tent de préciser l'hypothèse de Barrat et al. [3] sur l'origine de l'altération de Foun Tatahouine, à rechercher dans les carbonates du sol de la zone d'impact.

Cette altération se manifeste dans l'échantillon FT 2000 essentiellement sur le pourtour de la météorite : d'une part, les faibles concentrations en éléments traces obtenues sur l'échantillon décontaminé montrent que la totalité du matériel altéré a été lessivée lors de la décontamination ; d'autre part, la procédure de décontamination utilisée étant peu agressive et de courte durée (quelques minutes), il est peu probable qu'elle ait dissous d'éventuels carbonates se situant dans les fractures.

Enfin, les concentrations en terres rares lourdes, nettement plus faibles dans l'échantillon FT 2000 que dans les échantillons prélevés en 1931, soulignent l'hétérogénéité de la diogénite Foun Tatahouine.

Remerciements. Nous remercions Jean-Alix Barrat pour avoir mis ces échantillons à notre disposition, et pour nos discussions très enrichissantes. Merci également à Simone Pourtalès et Olivier Bruguier pour leur aide à l'ICP-MS. Une première version a été grandement améliorée par les commentaires de Jean-Louis Birck. Nos remerciements s'adressent à Claude Jaupart pour l'efficacité de son travail éditorial.

Références

- [1] J.W. Arden, Distribution of lead and thallium in the matrix of Allende Meteorite and the extent of terrestrial lead contamination in chondrites, *Earth Planet. Sci. Lett.* 62 (3) (1983) 395–406.
- [2] J.A. Barrat, P. Gillet, C. Lecuyer, S.M.F. Sheppard, M. Lesourd, Formation of carbonates in the Tatahouine meteorite, *Science* 280 (1998) 412–414.
- [3] J.A. Barrat, P. Gillet, M. Lesourd, J. Blichert-Toft, G.R. Poupeau, The Tatahouine diogenite: mineralogical and chemical effects of 63 years of terrestrial residence, *Meteorit. Planet. Sci.* 34 (1998) 91–97.
- [4] J.-L. Birck, C.J. Allègre, $^{87}\text{Rb}/^{87}\text{Sr}$ study of diogenites, *Earth Planet. Sci. Lett.* 55 (1981) 116–122.
- [5] C. Floss, G. Crozaz, Ce anomalies in the LEW85300 eucrite: evidence for REE mobilization during Antarctic weathering, *Earth Planet. Sci. Lett.* 107 (1991) 13–24.
- [6] C. Goepel, G. Manhès, C.J. Allègre, Lead in iron meteorites: evidence for terrestrial contamination and isotopic uniformity of primordial lead, *Meteoritics* 18 (4) (1983) 303.
- [7] A. Lacroix, Sur la chute récente (27 juin 1931) d'une météorite à sidérite dans l'Extrême Sud tunisien, *C. R. Acad. Sci. Paris* 193 (1931) 305–309.
- [8] D.W. Mittlefehldt, The genesis of diogenites and HED parent body petrogenesis, *Geochim. Cosmochim. Acta* 58 (1993) 1537–1552.
- [9] D.W. Mittlefehldt, M.M. Lindstrom, Generation of abnormal trace element abundances in Antarctic eucrites by weathering processes, *Geochim. Cosmochim. Acta* 55 (1991) 77–87.
- [10] K. Righter, M.J. Drake, A magma ocean on Vesta: core formation and petrogenesis of eucrites and diogenites, *Meteorit. Planet. Sci.* 32 (1997) 929–944.
- [11] A. Ruzicka, G.A. Snyder, L.A. Taylor, Vesta as the howardite ; eucrite and diogenite parent body: implication for the size of a core and for large-scale differentiation, *Meteorit. Planet. Sci.* 32 (1997) 825–840.
- [12] K. Takahashi, A. Masuda, Young ages of two diogenites and their genetic implication, *Nature* 343 (1990) 540–542.
- [13] R. Wolf, M. Ebihara, G.R. Richter, E. Anders, Aubrites and diogenites: trace element clues to their origin, *Geochim. Cosmochim. Acta* (1983) 2257–2270.