

Nancy-Université

The logo for INPL (Institut National de la Bibliothèque et de l'Édition) is positioned below the university name. It features a stylized red graphic element that resembles a bracket or a stylized 'N' shape, followed by the letters 'INPL' in a black, serif font.

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur au même titre que sa version papier. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite entraîne une poursuite pénale.

Contact SCD INPL: <mailto:scdinpl@inpl-nancy.fr>

LIENS

Code de la propriété intellectuelle. Articles L 122.4

Code de la propriété intellectuelle. Articles L 335.2 - L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

Institut National Polytechnique de Lorraine - Ecole Doctorale RP2E

THESE

Présentée et soutenue publiquement pour l'obtention du grade de
docteur de l'INPL (Spécialité Géosciences)

par

Johan VILLENEUVE

Formation des chondres : Précurseurs et Chronologie

1 Juillet 2010

Composition du Jury

Rapporteurs :

Pr. Roger Hewins, Rutgers University, USA
Pr. Matthieu Gounelle, MNHN, Paris

Examineurs :

Pr. Francis Albarède, ENS, Lyon
Pr. Herbert Palme, Universität zu Köln, Allemagne
Dr. Jérôme Aléon, CSNSM, Orsay

Directeurs de thèse :

Dr. Marc Chaussidon, CRPG-CNRS, Vandoeuvre-lès-Nancy
Pr. Guy Libourel, CRPG-CNRS-ENSG, Vandoeuvre-lès-Nancy

À mon grand-père

À Joé

Remerciements

Bon, et bien c'est la fin de cette drôle d'aventure. 4 ans ! 4 ans à bosser sur un seul et même sujet. Je ne pensais pas en être capable... Et mine de rien, pour un tire-au-flanc comme moi ça tient presque du miracle ! Comme quoi tout arrive... Bref, tout ça pour dire que je souhaite remercier du fond du cœur tout ceux sans qui rien de tout cela n'aurait pu arriver (oh pinaise ! Faut pas que j'oublie quelqu'un...)

Je voudrais tout d'abord remercier Marc et Guy, mes deux directeurs de thèse, pour m'avoir accordé leur confiance et pour la prévenance dont ils ont fait preuve à mon égard tout au long de cette thèse. Ecrire une thèse c'est bien mais encore faut il trouver des personnes motivées pour la lire de bout en bout afin de la juger. Ainsi, je remercie Matthieu Gounelle, Roger Hewins, Jérôme Aléon, Herbert Palme et Francis Albarède d'avoir dans un premier temps accepté de faire partie du jury et dans un second temps de m'avoir fait part de leur enthousiasme quant au travail réalisé.

Au quotidien, rien n'aurait été possible sans l'expertise, la disponibilité et la gentillesse des membres des équipes sondes ioniques et pétro exp/auvergnats-du-sous-sol mais aussi du service MEB-microsondes. Un immense merci à Claire et ses plats de pics plus plats que plats en 3 secondes chrono (très énervant ça !), Denis (merci pour toutes les fois tu m'as aidé avec cette machine infernale) et Michel (spécialiste ès 3F, toshop et pour la formation accélérée sur In Design quand j'étais en panique quelques jours avant de rendre le rapport). Merci Etienne pour les explications optico-physiques sur la sonde... euh même si je n'ai pas tout compris. Merci Jul' Dub' d'avoir patiemment et régulièrement réparé l'électronique de la sonde (et pour le piège à azote liquide automatique). Tix, François et Romain, heureusement que vous étiez là pour m'expliquer tout les trucs et astuces de la pétro expérimentale : merci beaucoup à vous trois. C'est vraiment un monde à part mais je me suis bien amusé au sous-sol. Merci à Johann, Sandrine, Alain et Sullivan (le petit dernier) pour leur aide avec le MEB et la sonde électronique. Merci Thomas pour ton aide avec les cartos chimiques des chondres. Pete je te remercie beaucoup d'avoir accepté de relire mon simili anglais et aussi et surtout pour le haggis (c'est super bon ce truc). Merci Bernard pour les discussions scientifiques et les sushis de Matsue et tout le reste.

Dans le désordre et en espérant ne pas oublier trop de monde, un grand merci à tous ceux sans qui la vie au labo serait bien moins simple et bien moins agréable. Donc un grand merci à Aurélie, Raph', La Zim' family, Odile, Emilie, Cathi, Martine, Julien, P-H, Isabelle, Bruno, Guillaume, Christiane, Nono, Christophe, Larry (mais vive les PC quand même), Jean-Marc, Manu, Béatrice, Pierre, Pierre-Yves, Jacky, Ritesh, Laurie, Nathalie (bises aux petits bouts)... Gaston t'es un super voisin de palier, merci pour les histoire sur les petits cailloux qui brillent.

Merci aux compagnons (d'infortune ?) qui sont déjà partis ou qui restent encore : Grand Nico, Johanna (mais comment ça marche cette machine ?), Emile, Jenny, Aurélia, Maarten, Julien, Tu-tu, Céline, Sarah, Andréas, Nicolas, Mag'... Merci Aurélie pour ta bonne humeur et pour m'avoir «drivé» lors des dernières semaines d'écriture. Lise, Lisou merci de ta gentillesse, pour ton amitié et pour la tarte à la patate (sans rancune hein ?) et plein d'autres trucs encore. Romain, super souvenir que le bain thermal au pied du Mont Fuji, merci pour toutes les discussions scientifiques ... ou pas. Hey P'tit Nico, ton sac à dos y'en a marre, mais merci quand même pour tout à commencer par ta sympathie. Merci Yves de m'avoir fait découvrir la beauté de la vallée des Anges, pour ton hospitalité et le Comté ...

Je voudrais aussi remercier tous les copains de Nancy ou d'ailleurs, j'ai bien de la chance de vous avoir. Merci François, Marco, Julie, Tonin, Mélanie, Thibaut, Pauline, Mous, Foxy, Claire, Bast', Olivier ...

Merci à mes parents, mes frangins, ma famille pour tout ce que vous m'avez apporté et bien plus encore ...

Et puis merci à Aurélie pour ton amour car la vie c'est quand même bien plus sympa à deux.

Johan

Table des Matières

Introduction Générale	1
Chapitre 1 : Formation du Système Solaire et nucléosynthèse	7
1. Le Système Solaire	7
2. Généralités sur la formation et l'évolution du Système Solaire	10
2.1. Considérations historiques	10
2.2. Le modèle de la nébuleuse solaire	11
2.2.1. Formation de la nébuleuse solaire	11
2.2.2. De l'accrétion des premiers solides...	13
2.2.3. ...à la formation des planètes	14
3. Nucléosynthèse : Origine des éléments	15
3.1. Nucléosynthèse primordiale	16
3.2. Nucléosynthèse stellaire	16
3.3. Nucléosynthèse explosive	17
3.4. Nucléosynthèse interstellaire	18
Chapitre 2 : Présentation des Météorites Primitives	19
1. Généralités à propos des météorites	20
2. Les météorites différenciées	20
2.1. Les achondrites	21
2.2. Les météorites de fer	21
2.3. Météorites mixtes	21
3. Les chondrites	21
3.1. Classification des chondrites	22
3.2. Critères primaires et secondaires de classification	24
4. Les inclusions réfractaires	27
4.1. Minéralogie et classification des inclusions réfractaires	27
4.2. Quelques propriétés isotopiques remarquables	30
4.3. Formation des inclusions réfractaires	31

5. Les chondres	31
5.1. Propriétés générales des chondres	31
5.2. Classification des chondres ferromagnésiens	33
5.2.1. Classification texturale / Classification chimique	33
5.2.2. Les chondres de type I	37
5.2.3. Les chondres de type II	39
5.3. Les chondres alumineux	40
5.4. Propriétés isotopiques remarquables des chondres	41
5.4.1. Compositions isotopiques en oxygène	41
5.4.2. Autres éléments	42
5.5. Origine des chondres : précurseurs et principaux modèles de formation	42
5.5.1. Le modèle canonique	42
5.5.2. Quels précurseurs pour les chondres?	43
5.5.3. Système fermé versus système ouvert	45
5.5.4. Histoires thermiques des chondres	48
a. Pics de température, compositions chimiques et préservation des sites de nucléation.	48
b. Vitesses de refroidissement	49
c. Un ou plusieurs épisodes de chauffe?	50
5.5.5. Quel mécanisme physique pour fondre les chondres?	50

Chapitre 3 : Géochronologie de la Formation du Jeune Système Solaire : Que Nous Disent les Météorites? 53

1. Introduction	53
2. Théorie de la datation isotopique	54
2.1. La radioactivité	54
2.2. Radioactivités à longue période - Les âges absolus	56
2.3. Radioactivités à courte période - Les âges relatifs	57
2.4. Limites et incertitudes liées aux datations isotopiques	57
3. Quels processus peut-on dater?	59
3.1. Fractionnement géochimiques père/fils	59
3.2. Isochrones roches totales <i>versus</i> isochrones internes	60
4. La question de l'homogénéité de la distribution des radioactivités éteintes	61
4.1. Formation des radioactivités éteintes par irradiation par le jeune Soleil	61
4.2. Injection des radioactivités éteintes à partir d'une ou plusieurs étoiles massives	64
5. Chronologie absolue de la formation des premiers solides du Système Solaire	65
6. Chronologie relative de la formation du Système Solaire	67
6.1. Chronologie relative de formation des premiers solides fondée sur la radioactivité éteinte de ^{26}Al	67
6.2. Chronologie relative de la différenciation des planétésimaux fondée sur la radioactivité éteinte de ^{182}Hf	71
6.3. Apport des autres radioactivités à courtes périodes	72

Chapitre 4 : Protocoles Analytiques	73
1. Préparation des échantillons	74
2. Le microscope électronique à balayage (MEB)	74
3. La microsonde électronique (ou microsonde de Castaing)	75
4. Analyses isotopiques avec la sonde ionique CAMECA IMS 1270	76
4.1. Instrumentation	77
4.1.1. La source d'ions primaires	80
4.1.2. La colonne primaire	81
4.1.3. La colonne secondaire	81
a. L'optique de transfert	82
b. Le spectromètre de masse	83
4.1.4. La détection	84
4.2. Analyse	86
4.2.1. Filtrage en énergie	86
4.2.2. Résolution de masse	87
4.2.3. Fractionnement instrumental	88
4.3. Mesure isotopique du magnésium et de l'aluminium	90
4.3.1. Variations de bruit de fond des cages de Faraday	91
4.3.2. Fractionnement de masse instrumental	92
4.3.3. Rendements de ionisation du magnésium et de l'aluminium	94
Chapitre 5 : Chronologie de Formation des Chondres à l'Echelle du Chronomètre Isotopique ^{26}Al-^{26}Mg	97
1. Introduction	97
2. Distribution homogène de l' ^{26}Al dans le système solaire et chronologie de formation des chondres	98
2.1. Résumé de l'article	98
2.2. «Homogeneous Distribution of ^{26}Al in the Solar System from the Mg Isotopic Composition of Chondrules» – Article publié dans le magazine Science.	100
3. Apport de l'étude des compositions isotopiques du Mg sur l'origine des olivines réfractaires	106
3.1. Résumé de l'article	106
3.2. «Magnésium Isotopes Constraints on the Origin of Refractory Olivines from the Allende Chondrite: Nebular versus Planetary?» – Article soumis à EPSL.	107
4. Y a-t'il un lien entre les compositions chimiques et les âges ^{26}Al - ^{26}Mg de formation des chondres?	132
4.1. Introduction	132
4.2. Approche analytique	135
4.3. Présentation des résultats	136
4.3.1. Pétrographie et minéralogie des chondres	136
4.3.2. Compositions chimiques des chondres	141
4.3.3. Relations entre les âges relatifs et les compositions chimiques	145
4.4. Discussion	147

Chapitre 6 : Formation des Chondres : Approche Pétrographique et Expérimentale	155
1. Introduction	156
2. Expériences d'oxydation d'analogues de chondres de type I PO	159
2.1. Protocoles d'expérimentations sur four vertical	159
2.1.1. Description de l'appareillage	159
2.1.2. Synthèse du matériel de départ	160
a. V_{CAIs} et $V_{chondre}$	160
b. Série A	161
c. Série B	162
2.1.3. Protocoles expérimentaux	163
a. Description des protocoles expérimentaux	163
b. Problèmes rencontrés et limites de ces protocoles	164
2.2. Présentation des résultats	166
2.2.1. Evolutions texturales des charges expérimentales	166
a. Expériences de la série A	166
b. Expériences de la série B	170
2.2.2. Evolution des compositions chimiques	171
a. Evolution de la mésostase	171
b. Evolution des olivines	176
2.2.3. Coefficients de partage des éléments	181
a. Coefficients de partages de Ca	181
b. Coefficients de partage de Al	182
c. Coefficients de partage de Fe et Fe-Mg	183
2.3. Discussion	185
2.3.1. Interprétation des résultats expérimentaux	185
a. Processus de formation des olivines riches en FeO	185
b. Cinétiques de croissance des olivines riches en FeO	186
c. Cinétique de diffusion de FeO entre les reliques et les surcrois-	187
sances	187
2.3.2. Formation des chondres de type II PO par oxydation à haute tempé-	188
rature des chondres de type I PO?	188
a. Influence de l'héritage textural et chimique	188
b. Environnement de formation des chondres de type II PO	190
c. Cinétique de formation des chondres	192
d. Régimes thermiques lors de la formation des chondres	194
3. Modèle de formation des chondres : filiations et chronologie	202
3.1. Introduction	202
3.2. Présentation du modèle	203
3.2.1. Composition des produits de départ	203
3.2.2. Paramètres du modèle	205
3.3. Résultats	206
3.3.1. Composition chimique globale des chondres modélisés	206
3.3.2. Evolution des proportions modales des composants réfractaires et	208
volatil	208
3.3.3. Composition du liquide volatil	210
3.4. Discussion	213

3.4.1. Profils de composition des traces et des terres rares	213
3.4.2. A propos de la composition chimique de la phase gazeuse	214
3.4.3. Une filiation entre les différents types de chondres?	215
4. Conclusion	218
Conclusions et Perspectives	221
Bibliographie	227
Annexes	247

Introduction Générale

Que la motivation soit philosophique, religieuse, politique, scientifique ou la simple curiosité, le besoin d'appréhender l'univers dans lequel il vit a toujours été au centre des préoccupations de l'Homme. Ainsi, dans cette quête perpétuelle du Savoir qui s'étend des mécanismes d'érosion d'une chaîne de montagne à la connaissance de la vitesse d'expansion de l'Univers en passant par la tectonique des plaques et la formation d'une étoile, il étudie, observe, analyse les corps du Système Solaire et au delà depuis des milliers d'années dans l'espoir, un jour, d'en comprendre tous les rouages. Parmi toutes ces questions, celle de la formation et du fonctionnement des planètes et du Système Solaire occupe une place de choix (e.g. Leverington, 2007).

La construction de modèles de formation du Système Solaire passe nécessairement par la connaissance et la compréhension des processus physiques et chimiques mis en oeuvre depuis l'effondrement du nuage moléculaire jusqu'à la formation des planètes. Une étape primordiale de la formation du Système Solaire est sans aucun doute celle qui voit la formation des premières poussières, des premiers solides et des premiers corps planétaires de taille pluri-kilométrique, i.e. planétésimaux, à partir du gaz de la nébuleuse présolaire au cours des quelques premiers millions d'années de l'histoire du Système Solaire. Ainsi, savoir par exemple quand, comment et à quelle vitesse les premiers grains solides et les premiers planétésimaux se sont formés et accrétés, permet de faire le tri entre un certain nombre de processus physiques de formation et renseigne sur la chronologie de formation du Système Solaire. L'amélioration croissante de la précision des outils et des techniques d'observation en astrophysique ainsi que celle des instruments analytiques en géochimie et pétrologie élargit de façon considérable les possibilités de recherche et permet d'affiner constamment notre compréhens-

sion de la formation du Système Solaire. Pour autant, chaque découverte n'est pas une fin en soi puisqu'elle révèle de nouvelles inconnues et débouche sur de nouveaux horizons de recherche.

En cosmochimie, il existe quatre approches complémentaires permettant d'obtenir des informations sur les processus et la chronologie de formation du Système solaire : (i) l'étude pétrographique, chimique et isotopique d'objets ayant échantillonné différents stades d'évolution des solides dans le Système Solaire, i.e. les météorites et autres échantillons extraterrestres, (ii) les études de pétrologie expérimentale visant à reproduire en laboratoire les processus, les conditions physico-chimiques et les environnements de formation des premiers solides dans la nébuleuse solaire, (iii) l'observation d'autres systèmes stellaires à des stades d'évolution voisins de celui de notre Soleil et (iv) la modélisation de certains processus physiques et chimiques survenus lors de la formation du Système Solaire, e.g. la durée de l'accrétion du Soleil, la vitesse d'homogénéisation de la matière injectée à partir d'une supernova dans le disque d'accrétion etc. Les travaux présentés dans cette thèse s'inscrivent dans le cadre des deux premiers points présentés ci-dessus.

Les météorites sont la plus grande source de matériel extraterrestre à laquelle nous ayons accès. Parmi celles-ci, les chondrites ou météorites primitives sont particulièrement intéressantes car elles n'ont pas subi de processus secondaires de différenciation sur leur corps parents astéroïdaux, à l'inverse de corps planétaires tels que la Terre ou Mars. Elles sont à ce titre considérées comme étant des objets parmi les plus primitifs du Système Solaire (e.g. Krot et al., 2003) et sont également considérées comme le produit de départ de bons nombres de corps différenciés, e.g. le modèle chondritique de la Terre. Les chondrites consistent en un assemblage hétéroclite et hétérogène de matériaux accrétés entre eux et dont les constituants majeurs sont (i) les chondres, sphérules composées de minéraux silicatés de haute température et qui représentent jusqu'à 80% du volume d'une chondrite, (ii) les inclusions réfractaires riches en Ca et Al (CAIs) et constituées de minéraux de haute température, (iii) les nodules de métal et de sulfures, et (iv) la matrice à grains fins formant le «ciment» des chondrites. De par leur composition chimique très réfractaire, les CAIs sont assimilées aux premières phases minérales condensées à haute température (> 1500 K, e.g. Yoneda et Grossman, 1995; Toppani et al., 2006). Cela est confirmé par leurs âges géochimiques absolus qui en font les objets connus les plus vieux du Système Solaire datés à ~ 4567 Ma, ce qui, par extension, donne l'âge du Système Solaire (e.g. Amelin et al., 2002, 2006; Bouvier et al., 2008; Jacobsen et al., 2008). Les chondres sont, pour leur part, plus riches en éléments volatils et modérément volatils, et présentent des textures ignées ainsi que du verre laissant penser qu'ils ont été fondus à un moment ou à un autre de leur histoire (e.g. Jones et al., 2005). Etant donnée que les chondres sont les constituants majeurs des chondrites, la compréhension de leurs processus et de leur chronologie de formation est une étape indispensable vers la connaissance de l'histoire du Système Solaire.

La chronologie absolue de formation des chondres indique que ceux-ci ont été formés entre ~ 1 Ma et ~ 4 Ma après les CAIs (Amelin et al., 2002; Krot et al., 2005; Connelly et al., 2008). Néanmoins, le chronomètre absolu Pb-Pb utilisé n'est pas, du fait de la longue demi-vie de ^{238}U (4,468 Ga) et de la présence de ^{247}Cm dans la nébuleuse protosolaire (Brennecka et al., 2010), l'outil le mieux adapté pour dater de tels processus de formation se déroulant sur quelques millions d'années. Ainsi, depuis plus d'une quarantaine d'années, les chercheurs travaillent au développement des chronologies relatives de formation des premiers solides formés dans le Système Solaire (i.e. CAIs, chondres, planétésimaux ...) fondées sur les radioisotopes à courte périodes. Dans le cas de la chronologie de formation des chondres et des CAIs, la radioactivité éteinte la mieux étudiée et donc la plus susceptible de permettre l'élaboration d'une chronologie fine de formation des premiers solides est celle de ^{26}Al qui décroît en ^{26}Mg avec une demi-vie de 0,73 Ma (e.g. Lee et al., 1976; Kita et al., 2005). L'état de l'art actuel semble montrer (i) qu'il existe un rapport $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ dit «canonique», de $\sim 5 \times 10^{-5}$, pour la plupart des isochrones internes des CAIs (e.g. MacPherson et al., 1995) et (ii) que la grande majorité des chondres présentent des isochrones internes avec des rapports isotopiques plus bas, inférieurs à 2×10^{-5} (e.g. Kita et al., 2005; Kurahashi et al., 2008). Les isochrones en roche totale des CAIs et des chondres révèlent pour leur part des rapports isotopiques plus élevés, de $5,23 \times 10^{-5}$ jusqu'à $5,85 \times 10^{-5}$ et de $\sim 2 \times 10^{-5}$ à $\sim 5 \times 10^{-5}$ respectivement (Galy et al., 2000; Bizzarro et al., 2004, 2005; Thrane et al., 2006; Jacobsen et al., 2008). Néanmoins, la condition *sine qua non*, qui pour le moment reste une hypothèse, afin que les différences entre les rapports isotopiques puissent être interprétées en termes de différences d'âges de formation est l'homogénéité de la distribution de ^{26}Al et des isotopes du Mg dans le disque d'accrétion lors de la formation des CAIs et des chondres. Au cours de cette thèse nous avons développé un protocole analytique innovant de mesure *in situ*, de haute précision par sonde ionique des compositions isotopiques du Mg et de l'Al, qui appliqué aux chondres, a permis de tester avec succès l'hypothèse d'homogénéité. Les implications de cette homogénéité de ^{26}Al et des isotopes du Mg sur la chronologie relative et les processus de formation des chondres et de leurs précurseurs, mais aussi sur l'origine de ^{26}Al sont discutées.

Bien qu'ils soient pourvus d'une minéralogie assez simple (olivine, pyroxène, verre + quelques minéraux accessoires), les chondres présentent de grandes variabilités texturales et chimiques (e.g. état d'oxydation, compositions) révélatrices d'une histoire complexe. A titre d'exemple, il a été montré que les olivines magnésiennes sont des reliques aussi bien dans les chondres de type I (Fe réduit) que dans les chondres de type II (Fe oxydé) [e.g. Nagahara, 1981; Rambaldi, 1981; Pack et al., 2004; Libourel et al., 2006; Chaussidon et al., 2008]. La question se pose donc de savoir d'où proviennent ces reliques? Ont elles été condensées dans le gaz de la nébuleuse (e.g. Grossman et Olsen, 1974; Weinbruch et al., 1994)? S'agit-il de reliquats de générations antérieures de chondres

(e.g. McSween, 1977; Jones, 1996) ou de minéraux cristallisés à partir de liquides réfractaires eux-mêmes condensés à partir du gaz nébulaire (e.g. Varela et al., 2002; Pack et al., 2005)? Ou encore de fragments de planétésimaux différenciés (Libourel et Krot, 2007)? Dans cette thèse, nous montrerons comment l'étude des compositions isotopiques du Mg de ces olivines reliques permet de préciser leur chronologie et leur processus de formation. Enfin, au regard de ces résultats de compositions isotopiques du Mg des chondres, nous aborderons également la question des liens éventuels entre la composition chimique et les âges ^{26}Al de formation des chondres (Mostéfaoui et al., 2002; Tachibana et al. 2003).

La chronologie relative fondée sur l' ^{26}Al permet de caractériser l'âge de formation des précurseurs d'un chondre ainsi que la durée d'évolution de ses précurseurs dans la nébuleuse avant le dernier épisode de fusion qui donne accès à l'âge la formation du chondre. Cependant, cet outil, notamment en raison de différences d'échelle spatiale et temporelle, ne semble pas adapté à l'élaboration d'une chronologie plus fine de l'évolution chimique des chondres au cours de leur formation par interaction avec la phase gazeuse. Pourtant, de nombreuses études aussi bien pétrologiques, chimiques, isotopiques qu'expérimentales indiquent que les chondres au cours de leur formation ont interagi de façon plus ou moins importante avec le gaz de la nébuleuse, riche en éléments volatils (e.g. Matsunami, 1993; Nagahara et al., 1999; Tissandier et al., 2002; Krot et al., 2004; Libourel et al., 2006; Chaussidon et al., 2008). Ces études montrent également qu'il existe une corrélation entre les teneurs en éléments volatils et modérément volatils et les textures des chondres (e. g. abondance d'olivine magnésienne relique, abondance d'olivine ferrifère, abondance de pyroxène). Tout semble donc indiquer l'existence d'une «logique» chronologique associée à l'évolution des compositions chimiques des chondres lors de leur interaction avec la phase gazeuse. Ainsi, le volet pétrographique et expérimental de cette thèse s'intéresse plus spécifiquement à l'étude des éventuelles «*filiations*» entre les différents types de chondres porphyriques au travers (i) d'une série d'expériences visant à synthétiser des analogues de chondres de type II PO à partir d'analogues de chondres de type I PO et (ii) d'un modèle de mélange permettant d'expliquer simplement la formation des chondres porphyriques par l'interaction d'une composante réfractaire héritée des précurseurs des chondres et d'une composante volatile et oxydante acquise lors de l'interaction avec la phase gazeuse. Nous verrons également comment les résultats des expériences et du modèle peuvent être utilisés pour préciser les processus et les environnements de formation des chondres.

Cette thèse est articulée autour de six parties. Les trois premières parties permettront (i) dans un premier temps de replacer cette étude dans le contexte plus large de la formation du Système Solaire, puis (ii) dans un deuxième temps d'établir un état de l'art de nos connaissances à propos

des caractéristiques pétrographiques, chimiques et isotopiques et des processus de formation des météorites primitives et de leurs constituants, et enfin (iii) dans un troisième temps de s'intéresser à l'apport de la géochronologie isotopique appliquée aux météorites, sur la formation du jeune Système Solaire.

Les différentes techniques d'observation et d'analyses utilisés, ainsi que les protocoles analytiques développés durant ce travail de thèse seront présentés dans la quatrième partie de ce manuscrit.

L'étude de la chronologie de formation des chondres et de leurs précurseurs à l'échelle du chronomètre isotopique ^{26}Al - ^{26}Mg fera l'objet du cinquième chapitre et sera construit autour de deux articles (1 publié, 1 soumis).

Enfin, L'approche expérimentale et pétrographique des relations génétiques de filiation entre les différents types de chondre et leurs implications sur la formation de ces derniers sera présentée dans la sixième et dernière partie du manuscrit.

Chapitre 1

Formation du Système Solaire et Nucléosynthèse

1. Le Système Solaire	7
2. Généralités sur la formation et l'évolution du Système Solaire	10
2.1. Considérations historiques	10
2.2. Le modèle de la nébuleuse solaire	11
2.2.1. Formation de la nébuleuse solaire	11
2.2.2. De l'accrétion des premiers solides...	13
2.2.3. ...à la formation des planètes	14
3. Nucléosynthèse : Origine des éléments	15
3.1. Nucléosynthèse primordiale	16
3.2. Nucléosynthèse stellaire	16
3.3. Nucléosynthèse explosive	17
3.4. Nucléosynthèse interstellaire	18

1. Le Système Solaire

Système Solaire est le nom donné en astronomie à notre système stellaire constitué de 8 planètes¹ et de leurs quelques 167 satellites connus (Sheppard, 2009), de 5 planètes naines¹ et des milliards de petits corps¹ (astéroïdes, poussières interplanétaires, comètes ...) gravitant autour d'une étoile, le Soleil (Fig. 1). Les quatre planètes les plus proches du Soleil sont des planètes telluriques (ou silicatées) et forment avec la ceinture d'astéroïdes le Système Solaire interne qui s'étend sur environ 5 unités astronomiques (UA). Ensuite, se trouve le Système Solaire externe avec les quatre géantes gazeuses dont la limite externe marquée par Neptune se trouve à environ 30 UA. De nombreuses comètes se situent également dans cette zone externe. Enfin au delà se trouve la région trans-neptunienne qui comprend entre autres la ceinture d'astéroïdes de Kuiper, la planète naine Pluton et le nuage de Oort qui semblerait s'étendre jusqu'à au moins 50 000 UA (e.g. Weissman, 2006; Woolfson, 2000; Adams, 2010).

¹ Selon la terminologie adoptée en 2006 par l'Union Astronomique Internationale.

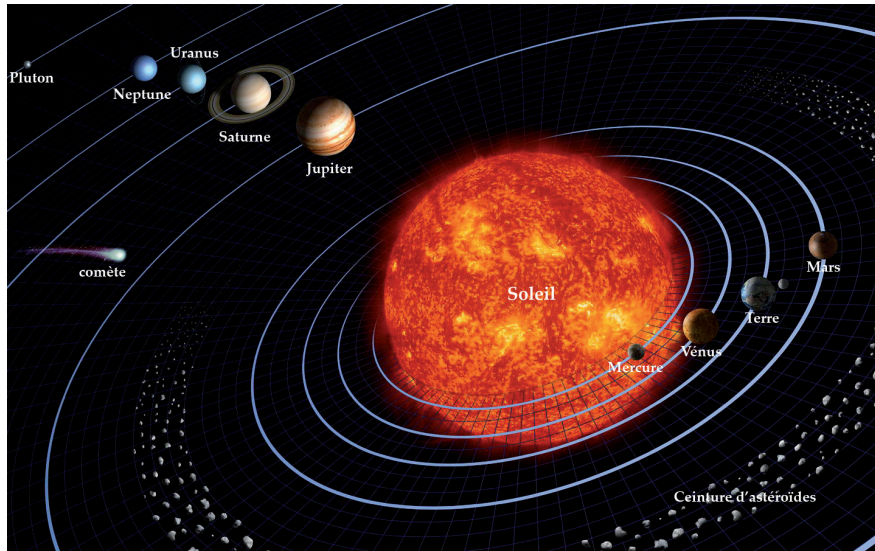


Fig. 1 : Le Soleil et ses huit planètes. Pluton, une comète et la ceinture d'astéroïdes sont également représentés. Les échelles ne sont pas respectées (auteurs : Harman Smith et Laura Generosa, <http://www.Nasa.gov/>).

Le Soleil concentre à lui seul 99,86% de la masse du système solaire (90% de la masse restante étant répartie entre les deux géantes gazeuses Jupiter et Saturne, Tableau 1). Il fait partie de la famille des étoiles naines jaunes et est composée à 74% d'hydrogène, 24% d'hélium et de 2% d'éléments plus lourds. Bien que le Soleil soit une étoile banale, il est plus chaud et plus brillant que 85% des étoiles de la galaxie. Il évolue actuellement sur la séquence principale du diagramme de Hertzsprung-Russell c'est-à-dire qu'il tire son énergie de réactions de fusion nucléaire qui transforme, dans son noyau, l'hydrogène en hélium et qu'il se trouve dans un état d'équilibre hydrostatique (Fig. 2). Les températures y varient de 15 MK au cœur à 6500 K à la surface (Aschwanden, 2006; McBride et Gilmour, 2003).

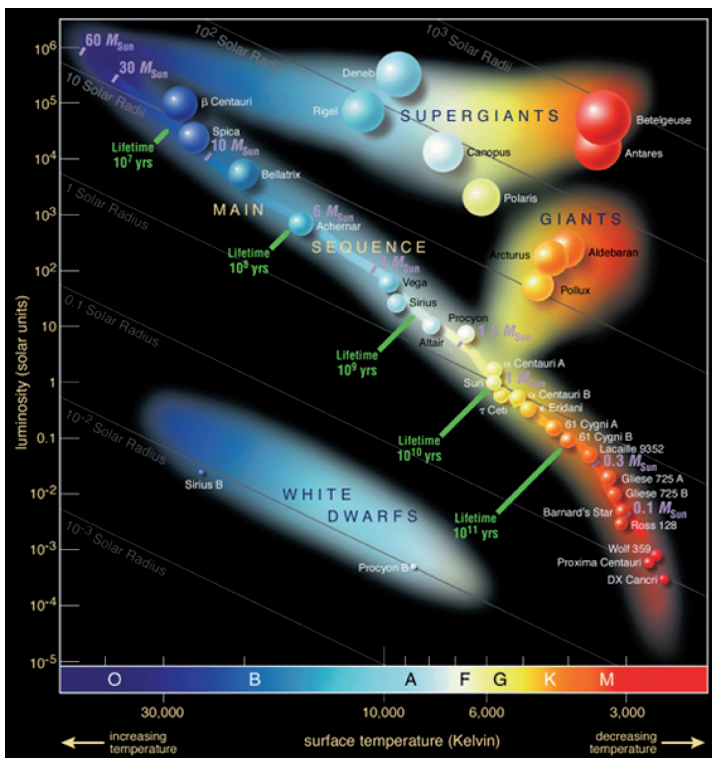


Fig. 2 : Diagramme de Hertzsprung-Russell. Durant la majeure partie de leur vie, les étoiles se situent sur la séquence principale. Le Soleil est actuellement à la moitié de sa vie, c'est-à-dire que dans environ 5 milliards d'années, il quittera la séquence principale pour évoluer en géante rouge.

Les orbites de la plupart des planètes et astéroïdes sont dans le plan de l'écliptique et tournent dans le même sens que le soleil, c'est-à-dire dans le sens contraire des aiguilles d'une montre pour un observateur placé au dessus du pôle nord solaire. Exception faite de Vé-

nus et Saturne, les autres planètes tournent sur elles-mêmes dans la même direction que le Soleil, avec des obliquités inférieures à 30° (Tableau 1).

Les quatre planètes internes sont de petite taille, denses et rocheuses. Elles sont riches en éléments lourds, métalliques et réfractaires et sont formées principalement de roches silicatées mais également parfois d'un noyau métallique de fer et de nickel. Parmi ces planètes telluriques, Vénus, la Terre et Mars présentent une atmosphère (Tableau 1).

Par opposition, les planètes géantes sont peu denses et riches en glaces (eau, ammoniac, méthane...). Elles présentent un noyau rocheux entouré d'éléments volatils sous forme solide ou gazeuse, principalement de l'hydrogène et de l'hélium, formant des atmosphères très épaisses (Tabl.1).

Les astéroïdes sont principalement de petits corps du Système Solaire composés de roches et de minéraux métalliques non volatils. La ceinture d'astéroïdes occupe une orbite située entre Mars et Jupiter, à une distance comprise entre 2,3 et 3,3 UA du Soleil. On pense qu'il s'agit de restes du Système Solaire en formation qui n'ont pas pu s'accréter en un corps plus gros à cause des interférences gravitationnelles de Jupiter.

Tableau 1 : Récapitulatif des principales propriétés du soleil et des 8 planètes. 1 unité astronomique (UA) = 149 597 870 km. * N'étant pas un objet solide, le Soleil subit une rotation différentielle; il tourne plus vite à l'équateur (24 jours) qu'aux pôles (31 jours) [Encyclopedia of the Solar System, 2006].

	Soleil	Mercure	Vénus	Terre	Mars	Jupiter	Saturne	Uranus	Neptune
Distance (UA)	0	0,39	0,72	1	1,52	5,20	9,54	19,23	30,07
Rayon/Terre	109	0,38	0,95	1	0,53	11,21	8,55	4,01	3,88
Masse/Terre	332800	0,055	0,815	1	0,107	317,8	95,152	14,536	17,147
Densité	1,41	5,43	5,20	5,52	3,93	1,33	0,69	1,27	1,64
Période de Rotation	24-31*	58,6	243	1	1,029	0,414	0,444	0,718	0,0086
Inclinaison/écliptique	7,25°	7,004°	3,395°	0°	1,85°	1,305°	2,484°	0,773°	1,769°
Excentricité orbite	-	0,2056	0,0068	0,0167	0,0934	0,0484	0,0542	0,0444	0,0086
Obliquité	-	0,01°	177,46°	23,43°	25,19°	3,12°	26,73°	97,77°	29,58°
Nbr satellites	-	0	0	1	2	63	61	27	13
Compo. Atmosphère %	H₂	73,46	-	-	-	86	93	83	85
	He	24,85	-	0,012	-	13	6	15	12
	O₂	0,77	-	-	20,95	0,13	-	-	-
	CO₂	-	-	95,5	0,038	95,32	-	-	-
	N₂	0,09	-	4,5	78,11	2,7	-	-	-
	Ar	-	-	0,07	0,93	1,6	-	-	-
	CH₄	-	-	-	-	-	0,1	0,2	2,3

La ceinture de Kuiper est un grand anneau de planétésimaux n'ayant pas formés une planète plus grosse, assez semblable à la ceinture d'astéroïdes, mais composée principalement de glace. La première partie de la ceinture s'étend entre 30 et 50 UA du Soleil et s'arrête à la « falaise de Kuiper » tandis que la seconde partie va au delà (100 UA voire plus). On pense que cette ceinture est la source des comètes de courte période (e.g. Delsanti et Jewitt, 2006). Quatre des cinq planètes naines appartiennent à la ceinture de Kuiper : Pluton, Eris, Makemake et Haumea. La dernière, Cérés, appartient à la ceinture d'astéroïde.

2. Généralités sur la formation et l'évolution du Système Solaire

2.1. Considérations historiques

Le modèle de la nébuleuse solaire est le plus communément admis pour expliquer la formation et l'évolution du système solaire. Les premières occurrences de ce modèle remontent au XVIII^{ème} siècle et furent formulées par Emanuel Swedenborg, Emmanuel Kant et Pierre-Simon Laplace. Il figurait déjà l'existence d'un nuage moléculaire qui se contractait et s'aplatissait pour former un disque d'accrétion (Fig. 3). Au fur et à mesure de son effondrement, le nuage moléculaire voyait sa vitesse de rotation accélérer afin de conserver son moment angulaire (e.g. Woolfson, 1993, 2000; Leverington, 2006).

Ce modèle initial s'est rapidement heurté à un problème majeur lié à la distribution du moment angulaire au sein du système solaire. En effet, le Soleil qui renferme 99.86% de la masse

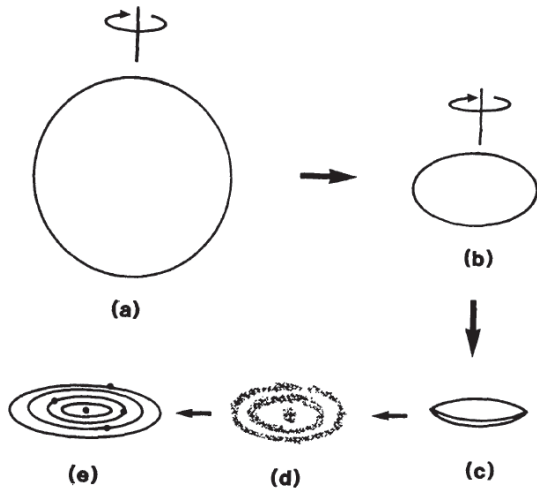


Fig. 3 : Modèle de la nébuleuse de Laplace (Woolfson, 1993). a) Nébuleuse en rotation; b) la nébuleuse s'effondre, se refroidit et s'aplatit selon son axe de rotation; c) formation d'un disque; d) formation d'un cœur dense (Soleil) avec autour des anneaux de matière résiduelle en rotation; e) les planètes se forment par accrétion de la matière de ces anneaux.

du système solaire, représente moins de 1% du moment angulaire total, le reste étant réparti entre les planètes (Fig. 4). Ainsi ce modèle ne permet pas d'expliquer la perte de moment angulaire du Soleil. Devant ce problème, le modèle de la nébuleuse est pour un temps tombé en désuétude au profit de nombreux autres modèles tels que le modèle d'accrétion (Schmidt, 1944), la théorie de la protoplanète (McCrea, 1960), la théorie de capture (Woolfson, 1964) ou le modèle laplacien moderne (Prentice, 1978). Cependant, aucun de ces modèles n'est franchement satisfaisant.

Le renouveau du modèle de la nébuleuse solaire (SNDM pour Solar Nebular Disk Model en anglais) est lié aux travaux de Victor Safronov (1972). Bien qu'il soit maintenant largement admis dans la communauté scientifique, plusieurs problèmes concernant par exemple la distribution du moment angulaire au sein du disque, la formation des planétésimaux ou la formation des planètes géantes, restent non résolus et font l'objet d'intenses débats.

2.2. Le modèle de la nébuleuse solaire

2.2.1. Formation de la nébuleuse solaire

Les observations astronomiques des galaxies nous indiquent que les étoiles se forment au milieu de gigantesques nuages moléculaires froids composés principalement d'hydrogène, d'hélium mais aussi de molécules organiques. Ces nuages contiennent également des poussières de silicates, d'hydrocarbures et de glaces. Classiquement, la masse de ces nuages représente de 10^6 à 10^8 fois la masse solaire (Fig. 5, Hester et Desch, 2005; Montmerle et al., 2006).

Ainsi, il y a plus de 13 milliards d'années, ce qui deviendra un jour le Système Solaire



Fig. 5 : La nébuleuse d'Orion est une partie d'un immense nuage moléculaire et dans laquelle des étoiles sont en cours de formation. Ici, on peut voir le gaz nébulaire qui enveloppe de jeunes étoiles. Le Soleil est probablement né dans un environnement assez similaire (copyright NASA, ESA, M. Robberto et al., 2009).

n'est rien d'autre qu'une infime fraction d'un de ces gigantesques nuages moléculaires (e.g. Montmerle et al., 2006; Chambers et Halliday, 2006). En se déplaçant autour du centre de la galaxie, ce nuage, au sein duquel règnent d'importantes turbulences, se contracte doucement et s'enrichit en éléments lourds formés lors de l'explosion d'étoiles massives (supernovae) à proximité (e.g. Hester et al., 2004; Chambers et Halliday, 2006; Bizzarro et al., 2007). Au fil des millions d'années, sous l'effet de son propre poids, ce nuage moléculaire géant tend à s'effondrer sur lui-même et à s'individualiser en nuages moléculaires plus denses et plus petits. Cette phase pré-stellaire d'effondrement et de fragmenta-

tion a une durée estimée à environ 10^6 ans (Feigelson et Montmerle, 1999).

Le nuage moléculaire dense qui va donner naissance au Système Solaire entre dans sa phase protostellaire (Fig. 6) durant laquelle, sous l'effet de la diffusion ambipolaire et/ou de fortes turbulences déclenchées par l'impact de puissantes ondes de choc (provenant de l'explosion d'une ou plusieurs étoiles massives à proximité), l'effondrement de matière se poursuit et forme au cœur du nuage l'embryon de ce qui sera le futur Soleil et dont la taille est d'environ 10 UA (Feigelson et Montmerle, 1999).

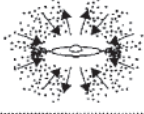
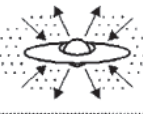
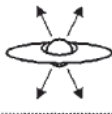
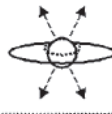

PROPERTIES	<i>Infalling Protostar</i>	<i>Evolved Protostar</i>	<i>Classical T Tauri Star</i>	<i>Weak-lined T Tauri Star</i>	<i>Main Sequence Star</i>
SKETCH					
AGE (YEARS)	10^4	10^5	$10^6 - 10^7$	$10^6 - 10^7$	$> 10^7$
mm/INFRARED CLASS	Class 0	Class I	Class II	Class III	(Class III)
DISK	Yes	Thick	Thick	Thin or Non-existent	Possible Planetary System

Fig. 6 : Récapitulatif des caractéristiques des phases protostellaires et stellaires (Feigelson and Montmerle, 1999).

En raison de la conservation du moment angulaire, le gaz et les poussières de la nébuleuse tournent de plus en plus vite au fur et à mesure de l'effondrement de l'enveloppe du nuage, empêchant ainsi l'accrétion de l'ensemble de la matière vers le cœur et entraînant la formation d'un disque dans le plan perpendiculaire à l'axe de rotation. L'effondrement s'accompagne d'une augmentation importante de la température qui, couplée au puissant champ magnétique du protosoleil ionise le gaz sous forme de plasma et donne naissance à des phénomènes spectaculaires. En effet, si une partie de l'énergie ainsi produite est dissipée sous forme de chaleur dans le disque via d'importants mouvements de convection, le reste est éjecté sous forme de puissants jets de plasma bipolaires perpendiculaires au disque (Fig. 7). La durée de cette phase est rapide puisqu'elle n'excède pas 10^5 ans (Feigelson and Montmerle, 1999, Montmerle et al., 2006). Vers la fin de cette phase, le protosoleil commence la fusion de son deutérium puis de son hydrogène et rentre ainsi dans sa phase T-Tauri.

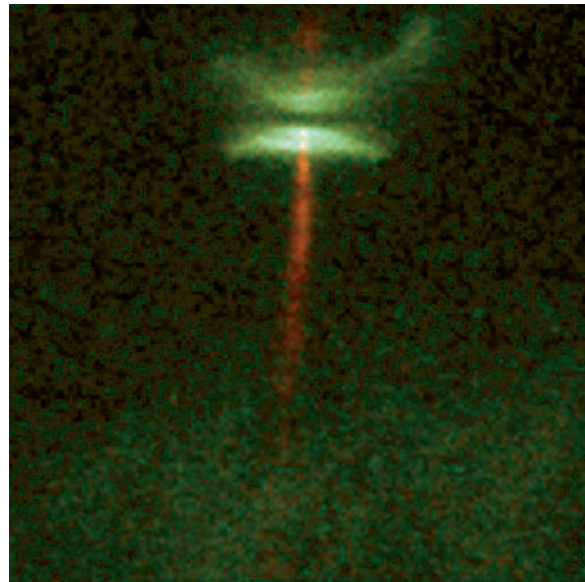


Fig. 7 : Disque protoplanétaire avec au cœur la protoétoile et les jets bipolaires de part et d'autre (copyright NASA)

La perte de matière de la protoétoile dans l'espace interstellaire durant la phase T-

Tauri a contribué en partie à la perte du moment angulaire du Soleil. La plupart des modèles d'évolution du disque protoplanétaire impliquent un processus de transfert du moment cinétique du proto-

soleil vers le disque couplé un transfert de la matière du disque vers le protosoleil. A cette époque, le disque très actif et turbulent présente de fortes instabilités gravitationnelles et électromagnétiques qui entraînent d'importants mouvements de matière. Comme d'autre part, les lignes de champs magnétiques créent un lien entre le protosoleil et le disque, le transfert de matière vers le protosoleil s'accompagne d'un transfert du moment cinétique vers le disque ce qui a pour conséquence de ralentir la rotation du protosoleil et d'accélérer celle du disque (e.g. McBride et Gilmour, 2003; Montmerle et al., 2006). Néanmoins, les processus responsables des ces très fortes turbulences demeurent mal connus.

Durant la phase stellaire, le jeune Soleil va progressivement enclencher ses réactions thermonucléaires pour finalement entrer dans la séquence principale au bout de quelques dizaines de millions d'années. Simultanément, l'enveloppe du nuage va progressivement disparaître, les jets bipolaires diminuer puis s'arrêter avec le ralentissement de la rotation du protosoleil, le taux d'accrétion de la matière au Soleil progressivement ralentir malgré des pics d'accrétion périodiques et le disque de gaz et de poussières voir sa taille diminuer et évoluer vers un disque protoplanétaire dans lequel des solides de plus en plus gros vont pouvoir se former (Fig. 7, 8, e.g. Feigelson et Montmerle, 1999).

2.2.2. De l'accrétion des premiers solides...

Selon le modèle de la nébuleuse solaire, le disque en refroidissant progressivement lors de la phase T-Tauri, permet la condensation de poussières.

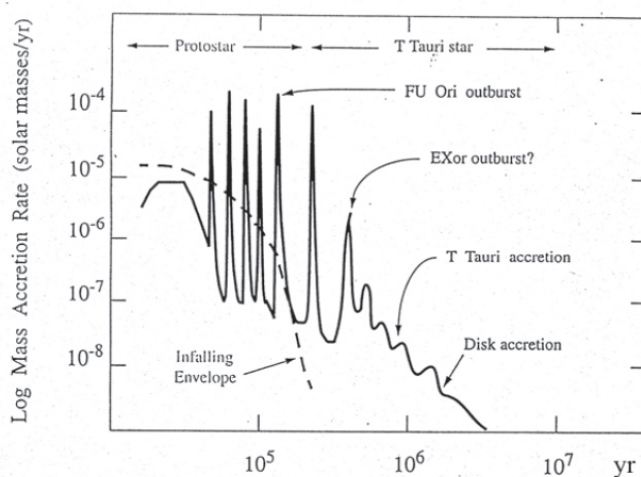


Fig. 8 : Evolution du taux d'accrétion de la matière de la nébuleuse au Soleil (dM/dt) en fonction du temps. Des périodes très brèves d'intense accrétion se sont produites durant la phase protostellaire mais également plus tardivement lors de la phase stellaire (Hartmann et al., 1993).

Ce processus va se traduire par une ségrégation des éléments en fonction de leur caractère réfractaire selon la distance héliocentrique : Les matériaux les moins volatils vont condenser plus proche du centre du disque. Cependant, l'importance des processus de transport associés aux turbulences permet dans une certaine mesure de mélanger des solides condensés à différentes distances de Soleil. Les poussières s'accrètent ensuite en corps de plus en plus gros jusqu'à former des planétésimaux, des embryons planétaires puis des planètes.

Les astéroïdes et les comètes sont des résidus témoignant de cette phase d'accrétions dans le disque. Il en va de même des inclusions réfractaires (Calcium Aluminium-rich Inclusions ou CAIs) et les chondres contenus dans les météorites primitives (ou chondrites). La formation des CAIs a pu commencer dès 10^5 années après le début de la formation du système solaire, c'est-à-dire lors de la phase protostellaire (Fig. 8, Cuzzi et al., 2005). L'accrétion du disque se poursuit ensuite pendant plusieurs millions d'années. Les CAIs et des chondres ainsi que leurs processus de formation sont présentés en détails dans le chapitre 2.

2.2.3. ...à la formation des planètes

L'accrétion des poussières entre elles par effondrements gravitationnels (Johansen et al., 2008) et suite à des collisions à faible vitesse relative conduit à la formation des premiers planétésimaux d'environ 1 à 10 km de diamètre. Il est probable que les turbulences présentes dans le disque à cette époque aient favorisé ces collisions entre poussières (Weidenschilling et Cuzzi, 1993). Ayant atteint cette taille, les planétésimaux acquièrent des champs gravitationnels non négligeables qui perturbent les orbites des objets voisins. Ainsi, les plus gros objets vont attirer efficacement les objets de masses moindres qui croisent leurs orbites, entraînant un accroissement des collisions et de l'accrétion. Cette étape est désignée sous le terme de «runaway growth», qui pourrait se traduire par croissance boule de neige (Kokubo et Ida, 2000). Dans ce modèle, plus un planétésimal est gros plus il va attirer les petits planétésimaux. Il devient alors encore plus gros et attire encore plus efficacement les petits objets et ainsi de suite. Les plus gros planétésimaux «nettoient» de cette façon leur environnement orbital proche. La croissance des planétésimaux au cours du temps peut être alors proportionnelle à leur R^2 voir R^4 et permettre ainsi la formation en 500 000 ans d'embryons de planètes d'1/10 de la masse terrestre à 1 UA (Kokubo et Ida, 2000).

A la fin de la phase de croissance boule de neige, le disque se décompose en deux zones : une zone interne dans laquelle se trouve quelques centaines de protoplanètes dont la taille n'excède pas celle de Mars et une zone externe au delà de la limite des glaces (située entre Mars et Jupiter) contenant de gros embryons planétaires constitués de glaces et de silicates (au moins 10 masses terrestres) formés suffisamment tôt et suffisamment massifs pour pouvoir retenir les gaz contenus dans la nébuleuse avant que ceux-ci ne s'échappent définitivement hors du Système Solaire. Cela implique que leur temps de formation serait inférieure à 10 Ma. A l'inverse, les embryons de planètes telluriques n'étaient pas assez massifs pour retenir une atmosphère. Dans le Système Solaire interne, le moteur de l'accrétion est entretenu par les fortes instabilités gravitationnelles entre planétésimaux qui contribuent à augmenter l'excentricité et l'inclinaison de leurs orbites, augmentant ainsi les chances de collisions (e.g. Wetherill, 1992).

Les modèles d'accrétion terminale dans le système solaire interne arrivent à reproduire un système avec quelques planètes de masses similaires aux planètes telluriques en revanche ils parviennent difficilement à reproduire un système qui ressemble au notre notamment en ce qui concerne les orbites des planètes (e.g. Chambers et Wetherill, 1998). La formation des planètes géantes est encore plus difficile à modéliser pour les théoriciens. Certains modèles achoppent notamment sur les temps nécessaires à la formation des géantes gazeuses par accrétion qui excèdent considérablement le temps de dissipation du gaz de la nébuleuse. Cependant, d'autres prédisent que des embryons planétaires massifs auraient pu se former rapidement au niveau de la ligne de glace avant de terminer leur croissance par effet boule de neige dans la partie externe du disque (Weidenschilling, 2005). De même que pour les planètes telluriques, les processus de formation des planètes géantes restent aléatoires.

Le modèle dit de Nice qui propose que les planètes géantes aient migré tardivement (après dissipation du gaz et de la poussière du disque, soit environ 10 Ma) depuis une position initiale compacte proche du Soleil vers leur position actuelle est actuellement celui qui parvient le mieux à expliquer nombre de situations observées dans le système solaire tel que le grand bombardement tardif, la formation du nuage de Oort ou la ceinture du Kuiper (Tsiganis et al., 2005; Morbidelli et al., 2005; Gomes et al., 2005).

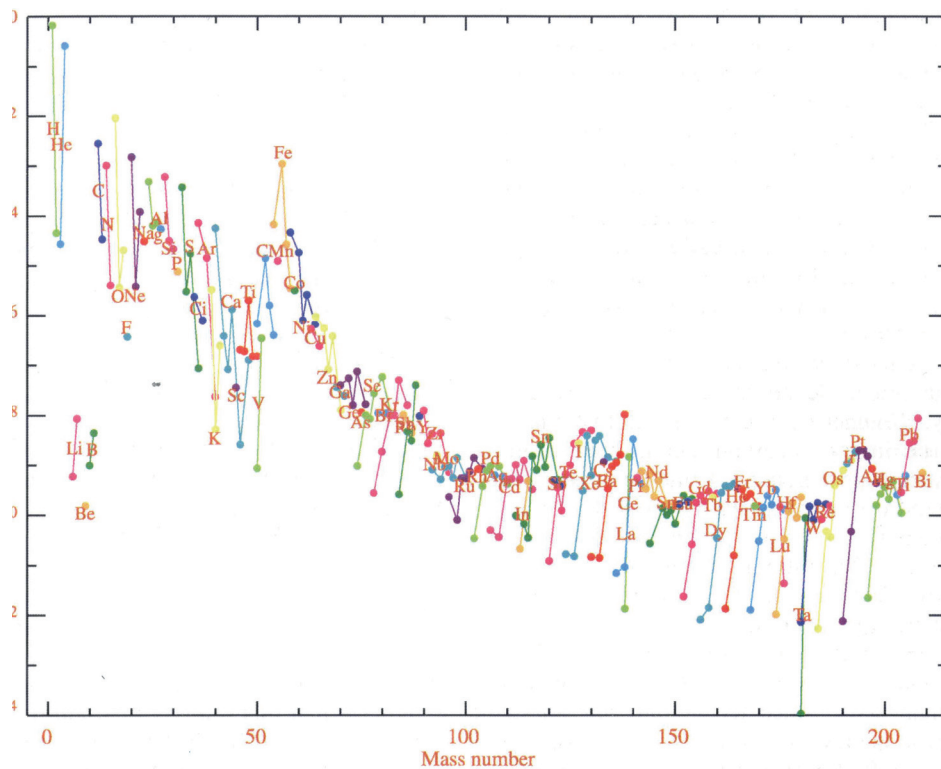


Fig. 9 : Abondance des isotopes du Système Solaire en fonction de leur masse (extrait de l'article de synthèse de Truran et Heger, 2003).

3. Nucléosynthèse : Origine des éléments

La théorie de la nucléosynthèse a pour objectif l'identification des processus nucléaires responsables de la composition de l'Univers. Les modèles de nucléosynthèse, les observations astrophysiques mais aussi et surtout la connaissance que l'on a des compositions élémentaires et isotopiques des objets du Système Solaire (Fig. 9) nous fournissent des indices pour comprendre la nucléosynthèse.

Quatre grands types de nucléosynthèses qui s'étendent du commencement de l'histoire de l'Univers jusqu'à maintenant permettent d'expliquer l'ensemble des abondances chimiques de l'Univers : la nucléosynthèse primordiale, la nucléosynthèse stellaire, la nucléosynthèse explosive et la nucléosynthèse par spallation dans le milieu interstellaire (e.g. Burbidge et al., 1957; Truran et Heger, 2003).

3.1. Nucléosynthèse primordiale

La nucléosynthèse associée au Big Bang, se produit lors des trois premières minutes de l'histoire de l'univers et est responsable de pratiquement toute l'abondance universelle de protons (^1H), deutérium (^2H), hélium-3 (^3He) et hélium-4 (^4He). Cette nucléosynthèse produit également en faible abondance des noyaux de ^6Li et ^7Li . Au delà, en raison de l'expansion, la température et la densité deviennent trop faibles pour permettre la fusion efficace d'autres noyaux. Initialement des protons et neutrons instables ($t_{1/2} = 12$ min) produit par le Big Bang entrent en collision et en fusion pour former des noyaux de ^2H et ainsi démarrer la formation des éléments légers.

3.2. Nucléosynthèse stellaire

Elle regroupe l'ensemble des réactions de fusion nucléaire se produisant à l'intérieur des étoiles au cours de leur vie ainsi que les processus de nucléosynthèse par capture neutronique de type «s».

La fusion de l'H en He est le premier cycle de fusion qui démarre dans le cœur de l'étoile. Cette phase de combustion de l'H se poursuit durant la majeure partie de sa vie. Lorsque le noyau devient trop appauvri en H pour maintenir son équilibre hydrostatique il s'effondre sur lui-même entraînant ainsi une augmentation de la température. Dès que celle-ci devient suffisamment élevée (au delà de 10^8 K), le cycle de fusion de l'He en C, N et O démarre. A la fin du cycle le cœur de l'étoile est composé principalement de C et O. Si la masse de l'étoile est suffisante et que la température du cœur dépasse le milliard de kelvins, un cycle de fusion avancée du C, N et O démarre, produisant en majorité des noyaux de Na, Ne, Mg, P et Si. Le cycle de fusion de l'O est suffisamment énergétique pour permettre de faire apparaître de façon significative des noyaux d'éléments plus lourds tels que le Cl, Ar, K, Ca et Ti. Après épuisement de l'O, le dernier cycle de fusion qui s'enclenche est celui du Si

qui va permettre la formation de tout les éléments jusqu'au ^{56}Fe . Au delà de cet isotope, l'énergie de liaison nucléaire est trop élevée pour être fournie par ces réactions de fusions nucléaires. L'arrêt de la fusion du Si signe la fin de vie des étoiles de type géantes rouges (e.g. Truran et Heger, 2003).

A titre indicatif, le Soleil ne présente pas une masse suffisante pour pouvoir un jour démarquer un cycle de fusion du C.

Des noyaux de masses importantes, jusqu'au Bi, sont produits par réaction de capture neutronique «s» (Fig. 10). Ce processus dépend du flux de neutrons et donc de l'efficacité de l'étoile à produire ce flux via les réactions de fusion du C et du Ne. Il semblerait qu'il soit l'apanage des étoiles géantes de faibles masses telles que les étoiles AGB (Asymptotic Giant Branch). Ce processus présente des pics de production aux alentours des masses 87, 138 et 208 (Fig. 10).

3.3. Nucléosynthèse explosive

Ce type de nucléosynthèse intervient le plus couramment dans le cas d'étoiles massives à la fin du cycle de fusion du Si en Fe. A ce stade, plus aucune réaction de fusion nucléaire exothermique n'est possible et l'étoile perd de l'énergie. Elle va très rapidement s'effondrer sur elle-même jusqu'à ce que le cœur atteigne une densité critique au delà de laquelle il va libérer son énergie sous la forme

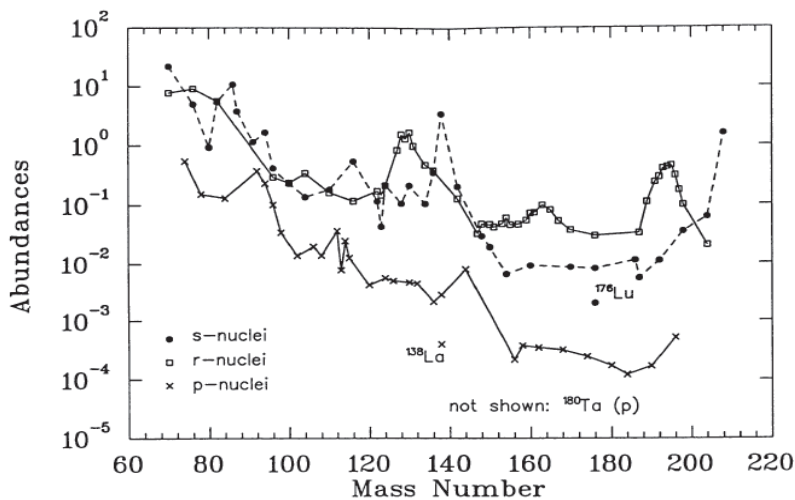


Fig. 10 : Abondance des noyaux formés par processus r, s et p dans le système solaire (Meyer, 1994). Seuls les isotopes dont au moins 90% ont été formés par un des processus sont représentés.

de production de noyaux lourds jusqu'à la masse de l'U. Il présente des pics de production aux masses 80, 130 et 195 (Fig. 10).

Le processus p correspond à un processus de capture protonique (^1H) et produit des noyaux riches en protons. Il affecte des noyaux préexistants formés par les processus r et s nécessite des environnements à hautes teneurs en protons mais aussi de haute température tel que les enveloppes riches en H des étoiles massives au stade de supernovae.

d'une violente explosion qui va balayer les couches externes de l'étoile. Lors de cette explosion, tout les éléments lourds au delà du Fe sont formés selon deux processus nucléosynthétiques dits «r» et «p» (Fig. 10).

Le processus r est un processus de capture neutronique rapide (c'est-à-dire que la production et l'absorption de neutrons est rapide) qui permet

Les trois processus de formation des noyaux lourds (r, s et p) se sont produits dans des environnements stellaires différents avec des taux de production qui sont variables au cours du temps et des abondances variables d'un endroit à l'autre.

Les noyaux lourds stables présent dans le Système Solaire ont été incorporés dans le nuage moléculaire à partir duquel il s'est individualisé.

3.4. Nucléosynthèse interstellaire

Les réactions de spallation dans le milieu interstellaire résultent de la collision de protons à haute énergie provenant du rayonnement cosmique galactique, produits par exemple par l'explosion de supernova, et de noyaux de C, N et O. Il en résulte la production de certains isotopes du Be, B et Li (e.g. Meneguzzi et al., 1971).

Chapitre 2

Présentation des Météorites Primitives

1. Généralités à propos des météorites	20
2. Les météorites différenciées	20
2.1. Les achondrites	21
2.2. Les météorites de fer	21
2.3. Météorites mixtes	21
3. Les chondrites	21
3.1. Classification des chondrites	22
3.2. Critères primaires et secondaires de classification	24
4. Les inclusions réfractaires	27
4.1. Minéralogie et classification des inclusions réfractaires	27
4.2. Quelques propriétés isotopiques remarquables	30
4.3. Formation des inclusions réfractaires	31
5. Les chondres	31
5.1. Propriétés générales des chondres	31
5.2. Classification des chondres ferromagnésiens	33
5.2.1. Classification texturale / Classification chimique	33
5.2.2. Les chondres de type I	37
5.2.3. Les chondres de type II	39
5.3. Les chondres alumineux	40
5.4. Propriétés isotopiques remarquables des chondres	41
5.4.1. Compositions isotopiques en oxygène	41
5.4.2. Autres éléments	42
5.5. Origine des chondres : précurseurs et principaux modèles de formation	42
5.5.1. Le modèle canonique	42
5.5.2. Quels précurseurs pour les chondres?	43
5.5.3. Système fermé versus système ouvert	45
5.5.4. Histoires thermiques des chondres	48
5.5.5. Quel mécanisme physique pour fondre les chondres?	50

1. Généralités à propos des météorites

Le nom de météorite s'applique à l'ensemble des objets d'origine extraterrestre qui ont impacté la surface de notre planète. Leurs tailles peuvent varier du micromètre jusqu'à plusieurs kilomètres. On distingue les «chutes» dont les trajectoires dans l'atmosphère sont observées et qui font l'objet d'une récupération immédiate, des «trouvailles» dont la chute n'est pas observée et qui ont pu être exposées longuement aux intempéries et subir une altération

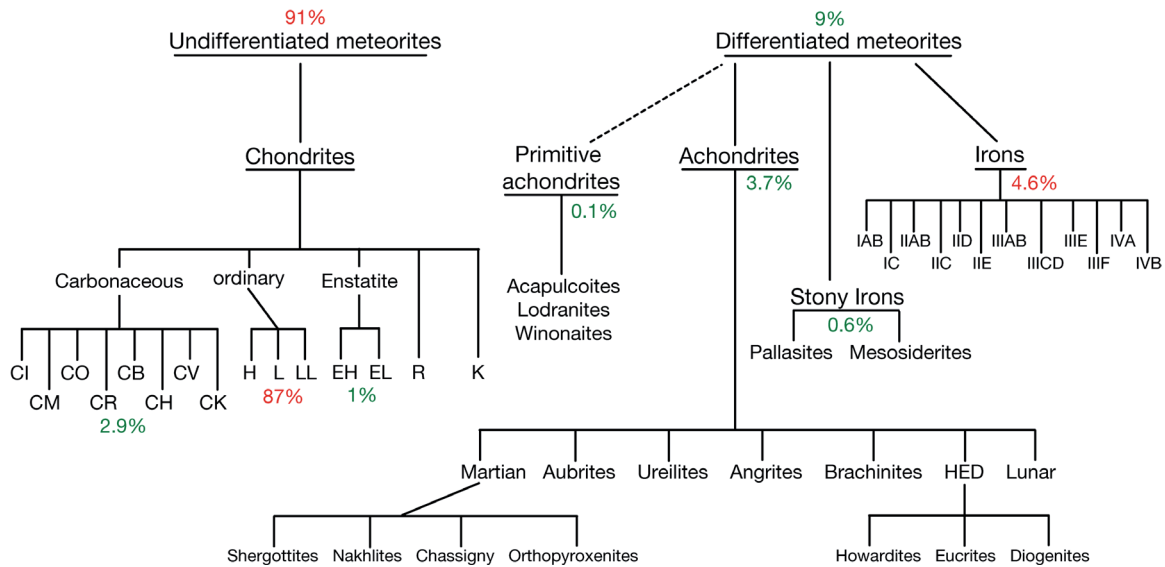


Figure 1 : Classification des météorites. Les proportions de météorites de chaque catégorie et classe ont été calculées d'après les données de Krot et al. (2003).

Selon des critères chimiques et texturaux, les météorites sont divisées en deux grandes catégories : les chondrites (ou météorites primitives) qui représentent plus de 90% des objets et les météorites différenciées (Fig. 1). Les classifications plus fines en classes, groupes et types pétrographiques sont fondées sur des critères de compositions isotopiques en oxygène, de chimie, de minéralogie et de pétrographie (e.g. Krot et al., 2003; Weisberg et al., 2006).

2. Les météorites différenciées

Ces météorites présentent des textures ignées et proviennent de planétésimaux ayant subi une différenciation métal – silicate, soit de corps planétaires plus larges tels que Mars ou la Lune. Plusieurs groupes d'achondrites n'ont subi que de faibles degrés de fusion et présentent des compositions chimiques totales proches de celles des chondres. Ils forment la catégorie des achondrites primitives.

2.1. Les achondrites

Sous le terme d'achondrite sont regroupées les météorites provenant de la partie silicatée des planétésimaux différenciés. Leurs textures ignées sont similaires à celles des basaltes terrestres. Elles présentent de grandes variations de compositions chimiques mais sont toutes appauvries en volatils et sidérophiles par rapport aux chondrites. Leur classification tient compte de ces variations chimiques ainsi que de la phase minéralogique majoritaire. On peut distinguer le groupe des HED qui ont échantillonné différentes étapes du processus de différenciation d'un astéroïde qui semblerait être Vesta, le groupe des SNC provient de la surface de Mars et le groupe des météorites lunaires (Fig. 1).

2.2. Les météorites de fer

Ces météorites proviennent pour la plupart du noyau métallique des planétésimaux différenciés. Leur classification, basée à la fois sur la quantité de nickel et sur l'abondance d'éléments traces tels que le gallium (Ga), le germanium (Ge) ou l'iridium (Ir), a permis de distinguer 12 groupes de météorites ferreuses (Fig. 1, 2). Cependant, environ 15% de ces météorites n'ont pu être classées dans une des ces catégories.

2.3. Météorites mixtes

Ces météorites présentent un mélange, dans des proportions variables, de silicates et de métal et dans une moindre mesure de troïlite. On distingue deux groupes avec d'une part les mésosidérites et d'autre part les pallasites. Si les achondrites et les météorites de fer proviennent respectivement de la zone externe et de la zone interne des planétésimaux différenciés alors pour simplifier on peut considérer que les météorites ferrosilicatées proviennent de la zone de transition entre le noyau et le manteau.

3. Les chondrites

Contrairement aux météorites différenciées, les chondrites ne présentent pas de texture ignée généralisée ce qui laisse à penser qu'elles n'ont pas été soumises à de forts régimes thermiques

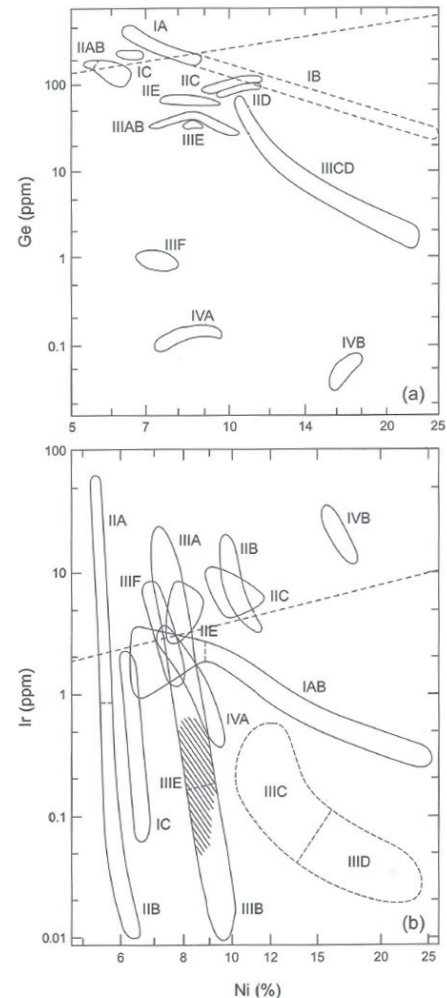


Fig. 2 : Classification des météorites de fer en fonction de leurs teneurs en Ge, Ir et Ni (e.g. Weisberg et al., 2006 d'après Scott et Wasson, 1975).

lors de leurs séjours sur leurs corps parents empêchant ainsi leur fusion. Les chondrites consistent en un assemblage hétéroclite de matériaux accrétés entre eux et dont les quatre constituants majeurs sont (Fig. 3) :

- Les chondres composés principalement de minéraux silicatés de haute température (olivine et pyroxène) qui représentent jusqu'à 80% du volume total des chondrites.
- Les nodules de métal et de sulfures.
- Les inclusions réfractaires riches en Ca et Al (CAIs) composées de minéraux de haute température (spinelle, ménilite, pérovskite ...).
- La matrice à grains fins, composée entre autre de silicates hydratés, carbonates et sulfures,

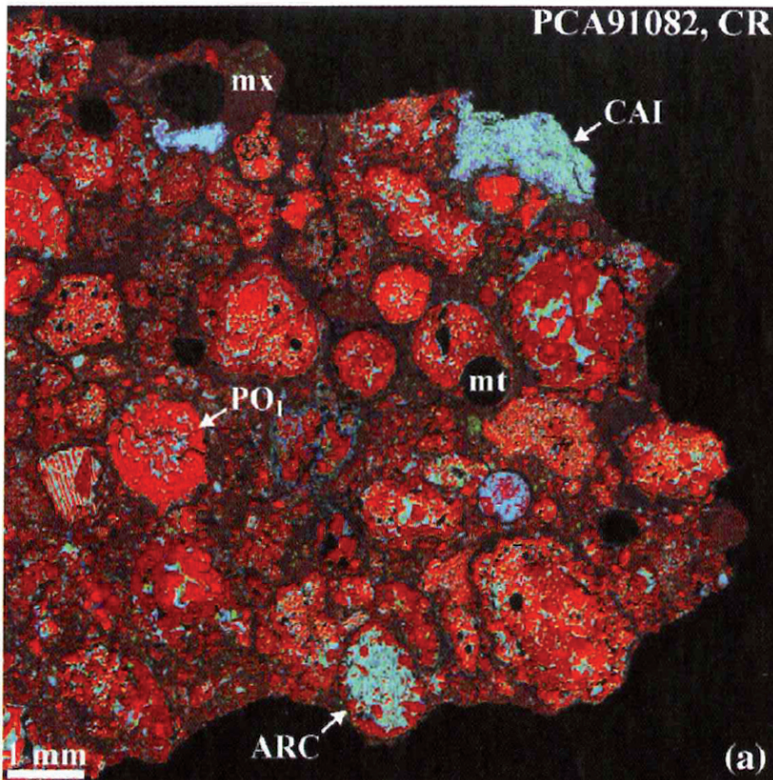


Fig. 3 : Image chimique d'une section de la chondrite CR PCA91082 (rouge = Mg, bleu = Al et vert = Ca). On observe un assemblage d'objets typique d'une chondrites : chondres (PO = chondre porphyrique à olivine, ARC = chondre riche en Al), inclusion réfractaire (CAI), nodules métalliques (mt) et matrice à grains fins (mx). Document tiré de Krot et al. (2003).

qui constitue «le ciment» des chondrites.

Cette coexistence de matériaux très disparates aussi bien en terme de composition chimique, de texture que de condition de formation (température, conditions redox ...), renforce l'hypothèse que les chondrites puissent être des objets primaires, pas ou peu altérés par des processus secondaires depuis leur formation, dans le jeune système solaire. A ce titre, il est considéré que les chondrites sont la meilleure source d'information pour remonter à la composition et aux processus

de formation du système solaire.

3.1. Classification des chondrites

Les abondances des différents constituants des chondrites peuvent varier considérablement d'un groupe de chondrite à l'autre (Tableau 1). A l'exception de deux groupes (R et K), tout les autres font partie d'une des trois grandes classes de chondrites : carbonées, ordinaires et à enstatite.

Tableau 1 : caractéristiques principales des différentes classes de chondrites.

Group	Type	Refract. incls. (vol. %)	Chondr. (vol.%) ⁺	Chondr. mean diam. (mm)	Fe,Ni metal (vol.%)	Matrix (vol.%) [§]	Fall freq. (%) [^]	Refract. lith./Mg rel. CI [#]	Exemples
Carbonaceous									
CI	1	<0.01	<5	-	<0.01	95	0.5	1.00	Orgueil
CM	1-2	5	20	0.3	0.1	70	1.6	1.15	Murchison
CO	3	13	40	0.15	1-5	30	0.5	1.13	Ormans
CV	2-3	10	45	1.0	0-5	40	0.6	1.35	Vigarano, Allende
CK	3-6	4	15	0.8	<0.01	75	0.2	1.21	Karoonda
CR	1-2	0.5	50-60	0.7	5-8	30-50	0.3	1.03	Renazzo
CH	3	0.1	~70	0.05	20	5	0	1.00	ALH 85085
CB _a	3	<0.1	40	~5	60	<5	0	1.0	Bencubbin
CB _b	3	<0.1	30	~0.5	70	<5	0	1.4	QUE 94411
Ordinary									
H	3-6	0.01-0.2	60-80	0.3	8	10-15	34.4	0.93	Dhajala
L	3-6	<0.1	60-80	0.5	3	10-15	38.1	0.94	Khohar
LL	3-6	<0.1	60-80	0.6	1.5	10-15	7.8	0.90	Semarkona
Enstatite									
EH	3-6	<0.1	60-80	0.2	8	<0.1-10	0.9	0.87	Qingzhen
EL	3-6	<0.1	60-80	0.6	15	<0.1-10	0.8	0.83	Hvittis
Other									
K	3	<0.1	20-30	0.6	6-9	70	0.1	0.9	Kakangari
R	3-6	<0.1	>40	0.4	<0.1	35	0.1	0.95	Rumuruti

Les données proviennent de l'article de synthèse de Scott et Krot, 2003. #Rapport moyen des éléments lithophiles réfractaires (Ca, Al et Ti) sur Mg et normalisé aux chondrites CI. +Comprend également les fragments de chondres et les minéraux silicatés isolés. ^D'après Grady, 2000. §Comprend les fragments constitués de grains fins qui constitue l'ensemble de la matrice pour les chondrites CH et CB.

Historiquement, la classe des chondrites carbonées a été nommée ainsi en raison de la teneur en carbone (les CI ressemblant à des morceaux de charbon). Maintenant cette classification est basée sur la composition isotopique en oxygène. La première lettre de la chondrite référence de chaque groupe est incluse dans le nom du groupe, e. g. Ivuna pour les CI ou Vigarano pour les CV.

Les chondrites ordinaires sont ainsi nommées en raison du fait qu'elles sont, de très loin, les plus abondantes (Fig. 1). Les noms de chaque groupe font références à l'abondance globale en fer, H pour «High», L pour «Low» et LL pour «very Low» (Fig. 8).

La prédominance de l'enstatite dans la minéralogie des chondrites à enstatite est à l'origine du nom de cette classe. Le nom de chaque groupe suit la même logique que pour les chondrites ordinaires.

3.2. Critères primaires et secondaires de classification

Les différents groupes de chondrites ont été définis selon des critères pétrographiques, chimiques et isotopiques. Les principaux critères primaires sont les suivants:

• *Composition chimique globale.*

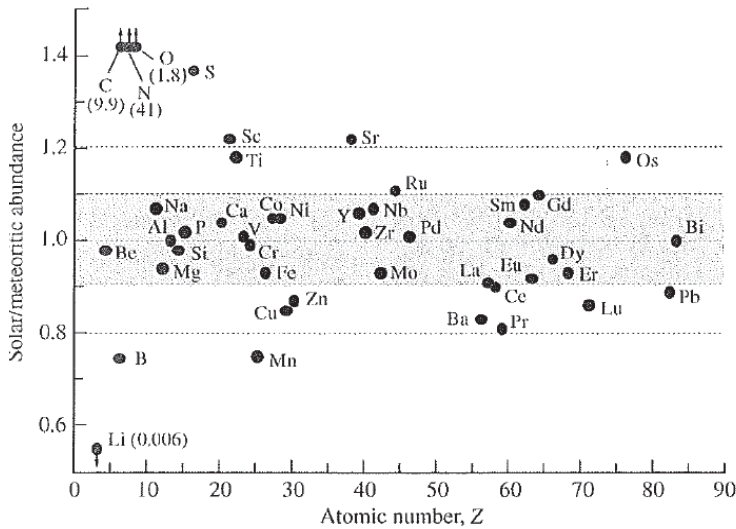
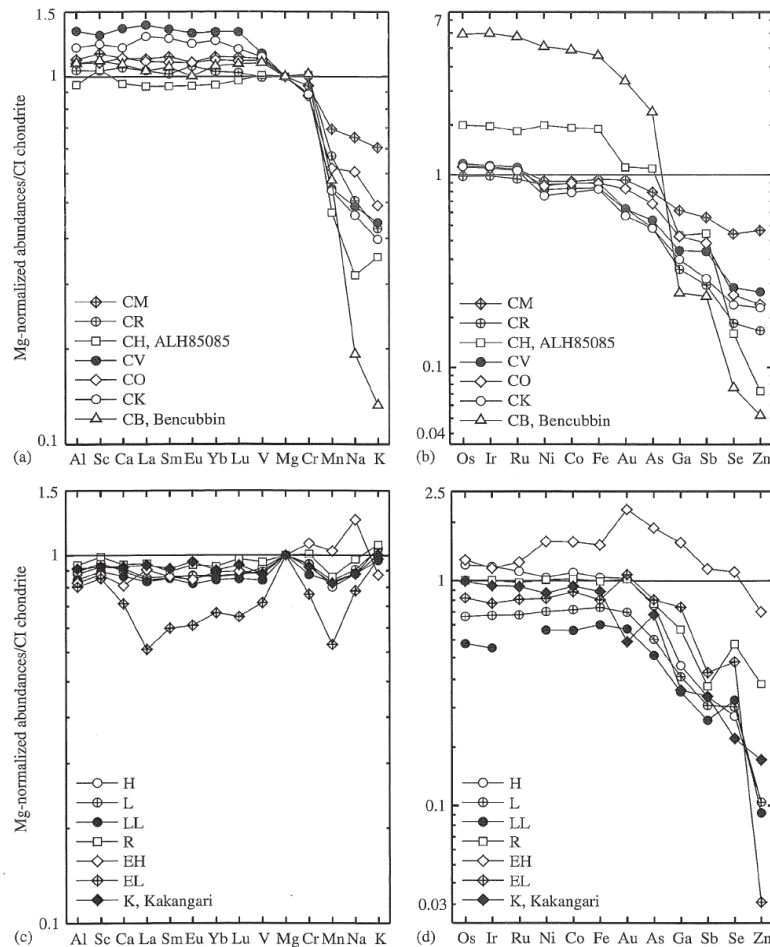


Fig. 4 : Concentrations des éléments dans la photosphère solaire normalisées aux CI en fonction du numéro atomique (Palme et Jones, 2003).

Contrairement aux autres groupes de chondrites, les CI présentent la particularité d'être constituées quasiment exclusivement d'une matrice de phyllosilicates hydratés (Tableau 1). A l'exception des éléments les plus volatils, elles présentent une composition chimique primitive, très semblable à la photosphère solaire (Fig. 4). Cependant, du fait d'une impor-

Fig. 5 : Profils de concentrations élémentaires normalisés à Mg et aux chondrites CI, des éléments lithophiles (a, c) et sidérophiles (b, d) dans les différents groupes de chondrites carbonées (a, b) et non carbonées (c, d). De gauche à droites, les éléments sont rangés du plus réfractaire au plus volatil. Les variations de concentrations élémentaires des majeurs et réfractaires (Mg, Si, Al, Ca, Fe...) d'un groupe à un autre reflètent grossièrement les différences de proportions de constituants majeurs (chondres, CAIs, métal et matrice) entre les groupes. De façon générale, les différents groupes de chondrites sont appauvris en éléments modérément volatils et volatils (Mn, Na, K, Ga, Sb, Se, Zn) par rapport aux CI (Krot et al., 2003; Kallemeyn et Wasson, 1981, 1982, 1985; Kallemeyn et al., 1978, 1989, 1991, 1994, 1996).



tante altération aqueuse sur leurs corps parents, ces météorites n'ont pas préservé leur minéralogie primaire. Toutefois, elle sont considérées comme étant issues de l'accrétion des premiers solides du système solaire.

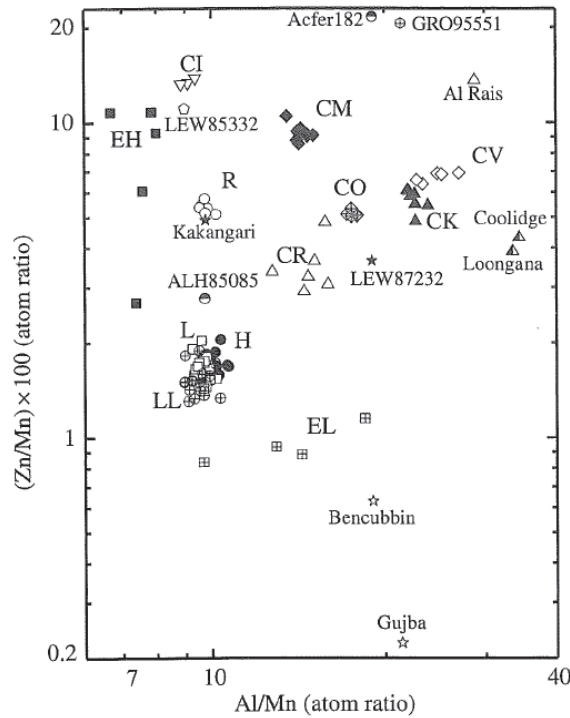


Fig. 6 : Rapports élémentaires atomiques Zn/Mn ($\times 100$) en fonction de Al/Mn dans les chondrites (même sources que pour la Fig. 5).

Bien que dans l'ensemble les compositions globales des chondrites soient assez similaires à la composition de la photosphère solaire, les différents groupes de chondrites présentent toutefois des profils de concentrations élémentaires distincts les uns des autres (Fig. 5).

Au delà des profils de compositions élémentaires, d'autres paramètres de compositions chimiques tels que les rapports d'un élément réfractaire/élément volatil, e.g. Al/Mn, en fonction des rapports d'un élément sidérophile/lithophile, e.g. Zn/Mn, permettent de discriminer les différents groupes de chondrites (Fig. 6). En effet, ces éléments ont eu des comportements très différents les uns des autres lors des divers processus de fusion, de cristallisation ou d'évaporation subit par les constituants des chondrites entraînant ainsi des fractionnements élémentaires d'un objet à un autre.

• *Composition isotopique en oxygène*

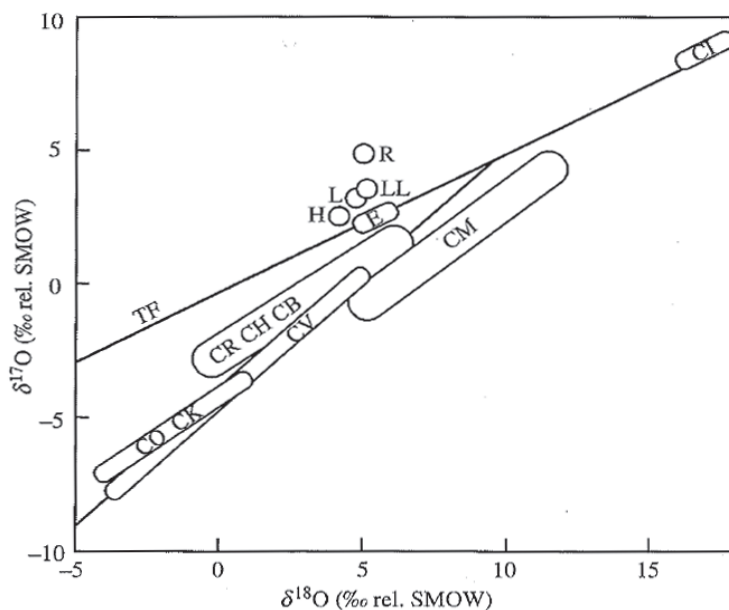


Fig. 7 : Compositions isotopiques en oxygène des différents groupes de chondrites (Clayton et Mayeda, 1999; Clayton, 2003).

Les différentes classes de chondrites présentent des compositions isotopiques en oxygène très différentes les unes des autres (Fig. 7). Les chondrites carbonées (à l'exception des CI) ont des compositions situées sous la droite de fractionnement terrestre (TF), le long de la droite des minéraux anhydres des chondrites carbonées (CCAM). Les chondrites ordinaires sont situées

au dessus de la TF tandis que les chondrites à enstatite sont sur la TF. En revanche, les champs de compositions se recoupent souvent au sein d'une même classe de chondre (par exemple les CO, CV et CK ou les L et LL).

Les compositions isotopiques en oxygène des chondrites sont en fin de compte le reflet des compositions isotopiques des constituants des chondrites et de leurs proportions. Les différences de compositions isotopiques s'expliquent par le fait que (i) les composants des chondrites (CAIs, chondres, matrice) n'ont pas les mêmes compositions isotopiques en oxygène entre eux et d'une classe de chondrite à une autre (Fig. 11, 18) et (ii) que leurs abondances ne sont pas les mêmes d'une chondrite à l'autre (Tableau 1).

• Etat d'oxydation

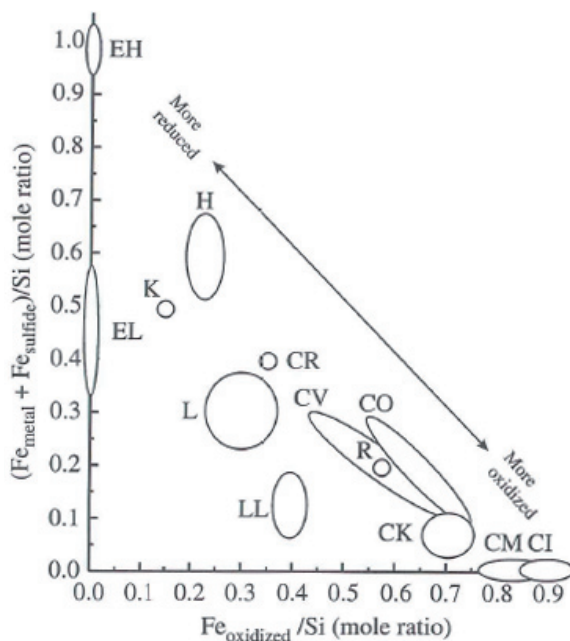


Fig. 8 : Diagramme de Urey-Craig montrant les abondances en Fe et les états d'oxydation des différents groupes de chondrites. On remarque que l'abondance en fer diminue des chondrites ordinaires H vers LL et des chondrites à enstatites EH vers EL (Krot et al, 2003; Brearley et Jones, 1998).

le degré de métamorphisme ou d'altération aqueuse expérimenté par les chondrites sur leurs corps parents. Les caractéristiques du métamorphisme s'étendent du type 3 (chondrites «unequillibrated») type le de 6 (chondrites «equillibrated») qui représentent une élévation du degré de métamorphisme (rééquilibrage chimique et textural, recristallisation). Dans l'autre sens, le type 1 représente le plus haut degré d'altération aqueuse. Ainsi le type 3 est associé aux chondrites les plus primitives.

L'état d'oxydation d'une chondrite est caractérisé par la distribution du fer dans chacun de ses trois degrés d'oxydation, 0 (Fe métal, sulfure), +2 (silicate), +3 (oxides). Ainsi, l'état d'oxydation de chaque groupe de chondrite peut être représenté dans un diagramme dit de «Urey-Craig» du nom des inventeurs (Urey et Craig, 1953) et qui compare les concentrations du fer sous forme réduite et sous forme oxydée (Fig. 8). Les états d'oxydation diminuent des chondrites à enstatites vers les chondrites ordinaires puis les chondrites carbonées.

Le principal critère secondaire de classification est basé sur le type pétrographique des chondrites (Tableau 2). Il a été proposé par Van Schmus et Wood (1967) et caractérise

Tableau 2 : Critères de classification pour le type pétrographique (Weisberg et al., 2006).

Criterion	1	2	3	4	5	6	7
Homogeneity of olivine compositions	—	>5% mean deviations		≤5%	Homogeneous		
Structural state of low-Ca pyroxene	—	Predominantly monoclinic		>20% monoclinic	≤20% monoclinic	Orthorhombic	
Feldspar	—	Minor primary grains		Secondary <2-μm grains	Secondary 2–50-μm grains	Secondary >50-μm grains	
Chondrule glass	Altered or absent	Mostly altered, some preserved	Clear, isotropic	Devitrified	Absent		
Metal: Maximum Ni (wt%)	—	<20 taenite minor or absent	>20 kamacite and taenite in exsolution relationship				
Sulfides: Mean Ni (wt%)	—	>0.5	<0.5				
Matrix	Fine grained opaque	Mostly fine-grained opaque	Opaque to transparent	Transparent, recrystallized			
Chondrule-matrix integration	No chondrules	Sharp chondrule boundaries		Some chondrules can be discerned, fewer sharp edges		Chondrules poorly delineated	Primary textures destroyed
Carbon (wt%)	3–5	0.8–2.6	0.2–1	<0.2			
Water (wt%)	18–22	2–16	0.3–3	<1.5			

D'après Van Schmus et Wood (1967), Sears et Dodd (1988) et Brearley et Jones (1998).

A titre d'exemple, la chondrite Semarkona est classée LL3.0, ce qui signifie qu'il s'agit d'une chondrite ordinaire du groupe LL pauvre en fer et qu'il n'a subi ni métamorphisme ni altération aqueuse.

4. Les inclusions réfractaires

4.1. Minéralogie et classification des inclusions réfractaires

Les abondances en inclusions réfractaires varient fortement d'un groupe de chondrite à un autre, de moins de 0,01% dans les CI jusqu'à plus de 10% dans les CO (Tableau 1, MacPherson et al., 1988). De façon générale, ces objets sont plus abondants dans les chondrites carbonées que dans les autres classes et sont le plus communément de taille infra millimétrique et très rarement pluri centimétrique. D'ailleurs, il est intéressant de noter que l'essor de l'étude des inclusions réfractaires coïncide avec la chute en 1969 de la chondrite CV Allende qui contient de nombreuses inclusions de grandes tailles (centimétriques).

Minéralogiquement, les inclusions réfractaires sont composées principalement d'oxydes et silicates de Ca, Al, Mg et Ti (Tableau 3). Ces minéraux primaires sont très appauvris en éléments modérément volatils et volatils tel que le fer, les alcalins ou l'eau et à l'inverse enrichi en éléments traces réfractaires tels que les terres rares, le zirconium ou l'hafnium (en moyenne d'un facteur 10 à 100 par rapport aux CI, Grossman, 1980; MacPherson et al., 1988). En périphérie des ces inclusions, on trouve souvent des bandes stratifiées d'épaisseur inférieure à 50μm composées de minéraux mi-

crocristallisés. Ces «Wark-Lovering rims» (WLR) du nom de leurs inventeurs présentent des compositions chimiques similaires à celles des inclusions qu’elles enveloppent (Fig. 10a).

Tableau 3 : Minéraux majeurs principaux des inclusions réfractaires (d’après MacPherson, 2003).

Minéral	Formule	Commentaires
Spinnelle	$MgAl_2O_4$ $FeAl_2O_4$	Le pôle riche en Mg est plutôt «primaire» tandis que le pôle riche en Fe est plutôt dans les zones altérées et les WLR†.
Melilite	$Ca_2MgSi_2O_7$ $Ca_2Al_2SiO_7$	Phase primaire; solution solide åkermanite – gehlenite. Commun dans les WLR.
Perovskite	$CaTiO_3$	Primaire. Commun dans les WLR.
Hibonite	$CaAl_{12}O_{19}$	Primaire. Commun dans les WLR.
Pyroxène calcique «Fassaite»	$CaMgSi_2O_6$ $CaAl_2SiO_6$ $CaTi^{4+}Al_2O_6$ $CaTi^{3+}AlSiO_6$	Primaire dans les CAIs de type B Secondaire dans les autres types d’inclusions réfractaires
Forstérite	Mg_2SiO_4	Primaire dans les FoB‡ et les AOA ϕ .
Grossite	$CaAl_4O_7$	Primaire
Corindon	Al_2O_3	Primaire, rare
Anorthite	$CaAl_2Si_2O_8$	Primaire dans les CAIs de type B et C, secondaire ailleurs.

† «Wark-Lovering rims». ‡ CAIs de type B à bordure de forstérite. ϕ Agrégats d’olivines amoiboides. L’ensemble de ces minéraux présente des températures de vaporisations supérieures à 1300 K.

Les simulations thermodynamiques montrent que la minéralogie primaire des inclusions réfractaires est remarquablement similaire aux premières phases minérales théoriques qui condenseraient par refroidissement d’un gaz de composition solaire (Fig. 9, Grossman et Larimer, 1974;

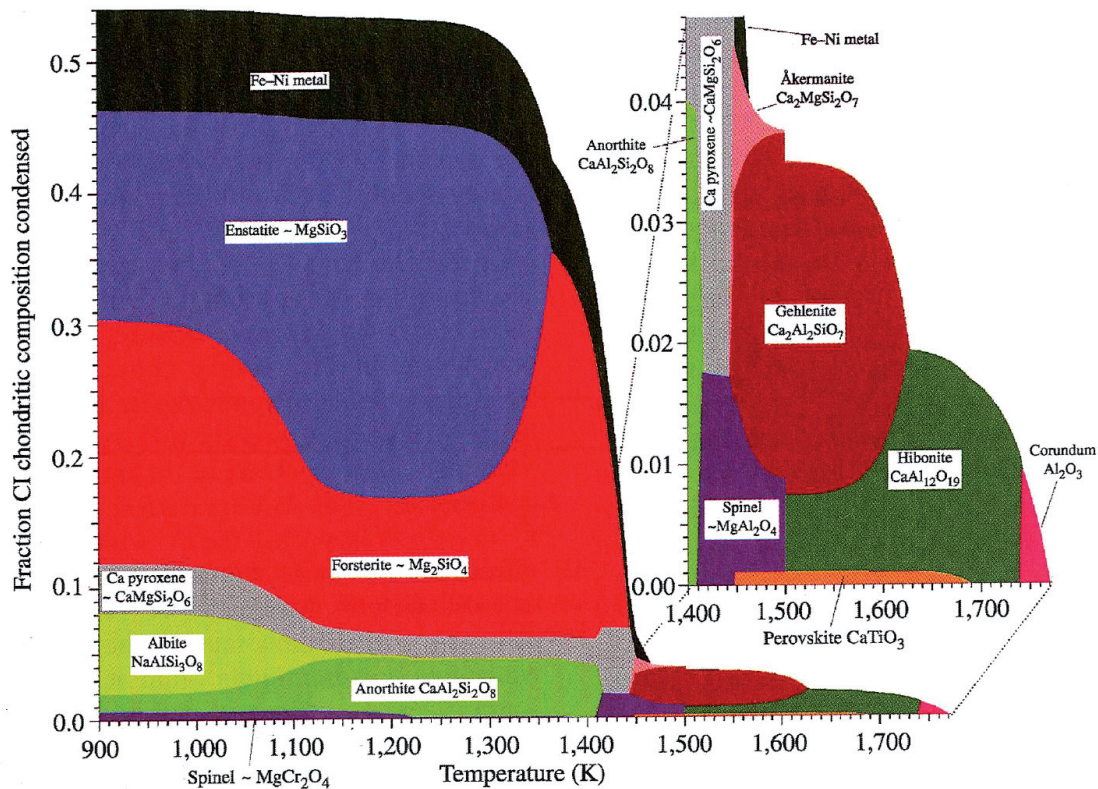


Fig. 9 : Séquence de condensation théorique d’un gaz de composition solaire pour une pression totale de 10⁻³ atm (Davis et Richter, 2003 d’après les données de Yoneda et Grossman, 1995).

Yoneda et Grossman, 1995). Ces similitude a également été confirmé expérimentalement (Toppani et al., 2006). Même s'il est maintenant acquis, à l'exception peut être des CAIs FTA («fluffy» type A), que les composants chondritiques n'ont pas directement été formés par condensation du gaz de la nébuleuse, les CAIs sont considérées comme étant les premiers solides formés dans le système solaire (voir chapitre 3 pour la partie datation).

La classification la plus courante pour les inclusions réfractaires, proposée par Grossman (1975) est fondée sur la pétrographie des objets. On distingue les inclusions à gros grains des inclu-

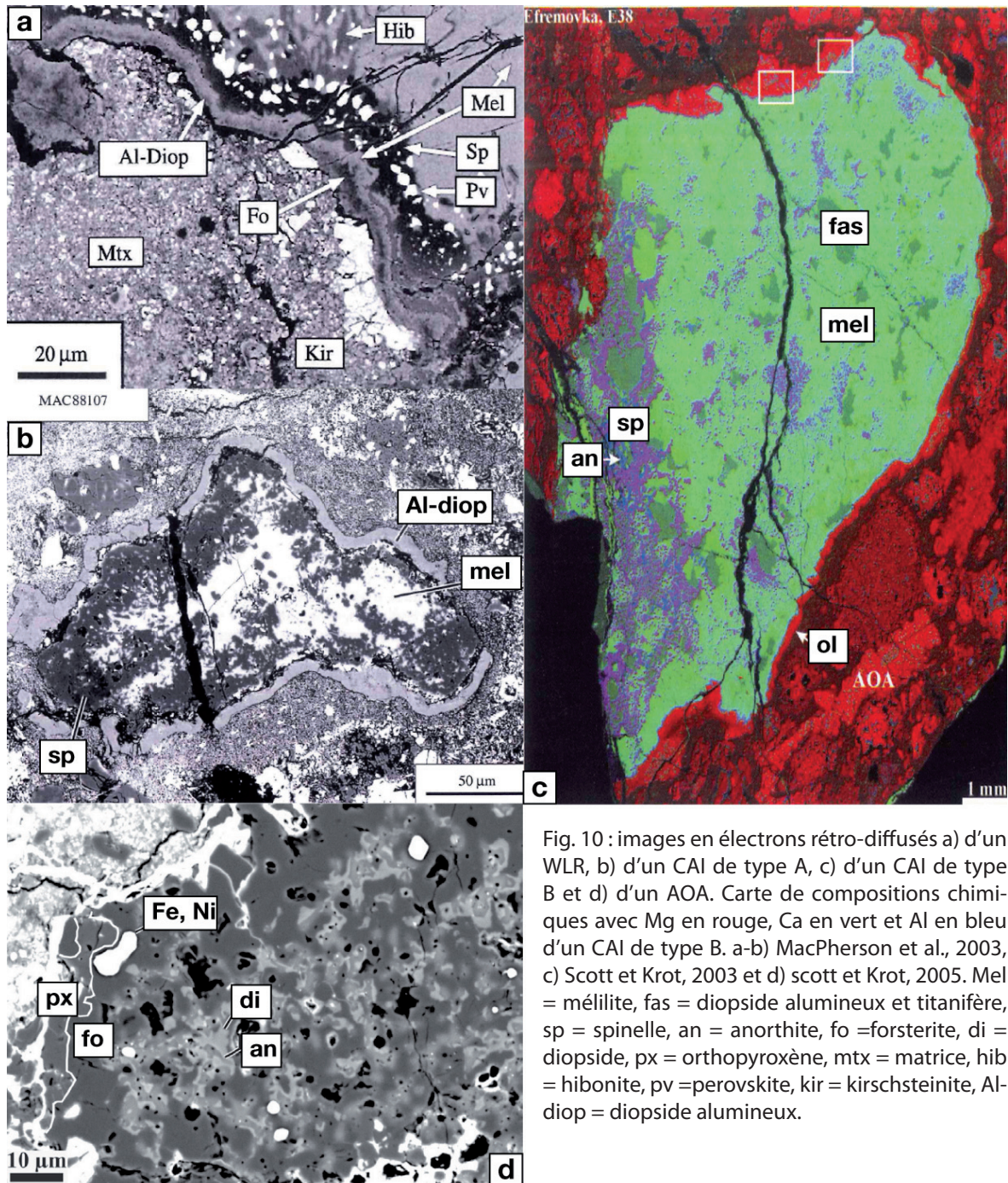


Fig. 10 : images en électrons rétro-diffusés a) d'un WLR, b) d'un CAI de type A, c) d'un CAI de type B et d) d'un AOA. Carte de compositions chimiques avec Mg en rouge, Ca en vert et Al en bleu d'un CAI de type B. a-b) MacPherson et al., 2003, c) Scott et Krot, 2003 et d) scott et Krot, 2005. Mel = méllilite, fas = diopside alumineux et titanifère, sp = spinelle, an = anorthite, fo =forsterite, di = diopside, px = orthopyroxène, mtz = matrice, hib = hibonite, pv =perovskite, kir = kirschsteinite, Al-diop = diopside alumineux.

sions à grains fins. Les inclusions à gros grains ont ensuite été subdivisées en type A (contenant principalement de la mélilite, Fig. 10b), type B (riche en pyroxène, Fig. 10c) et type C (riche en anorthite primaire). Les inclusions à grains fins comprennent les inclusions riches en spinelle et les «ameboïde olivine aggregates» (AOAs). Du point de vue des compositions chimiques, les inclusions réfractaires se divisent en deux groupes : les inclusions riches en Ca et Al (CAIs), composées de minéraux réfractaires riches en Al, Ca et Ti et les AOAs, composés principalement de forstérite (Fig. 10d).

4.2. Quelques propriétés isotopiques remarquables

Peu après leur découverte, l'étude des CAIs d'Allende a permis deux découvertes en tous points remarquables :

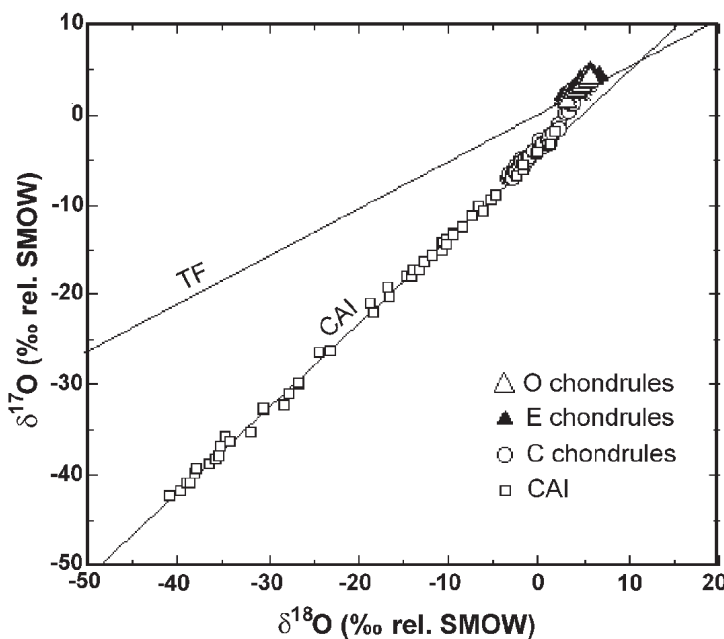


Fig. 11 : Compositions isotopiques en oxygène dans des CAIs d'Allende et des chondres de chondrites carbonées, ordinaires et à enstatite (Clayton, 2003).

- les CAIs présentent des signatures isotopiques en oxygène très enrichies en ^{16}O comparativement aux autres objets du système solaires mesurés jusqu'alors (Fig. 11, Clayton et al., 1973). Ces enrichissements sont non dépendants de la masse de telle sorte qu'ils ne peuvent être expliqués par des processus physico-chimiques classiques tels que l'évaporation ou la condensation. A l'exception des inclusions FUN (pour «Fractionation and Unidentified Nuclear isotope properties», Wasserburg et al., 1977;

Clayton et al., 1977), les mesures de compositions isotopiques en oxygène des CAIs s'alignent sur une droite de pente proche de l'unité (CCAM pour «Carbonaceous Chondrite Anhydrous Minerals line») qui implique un enrichissement exclusif en ^{16}O (Fig. 11). Ces hétérogénéités de compositions isotopiques en oxygène sont interprétées comme étant le résultat d'un mélange isotopique incomplet entre un réservoir solide (ou liquide) riche en ^{16}O et un réservoir gazeux pauvre en ^{16}O (Clayton et al., 1977, 1983).

- les minéraux des CAIs présentent des enrichissements en ^{26}Mg positivement corrélés aux rapports Al/Mg des minéraux (Lee et al., 1976). Ces corrélations sont interprétées comme étant des isochrones fossiles provenant de la décroissance radioactive in situ de l' ^{26}Al (demi-vie = 0,73 Ma)

dans les minéraux des CAIs après leurs formation. Par la suite, d'autres preuves de l'existence de radioactivité éteintes ont été trouvées dans les CAIs et les autres composants des chondrite comme par exemple, le ^{41}Ca (Srinivasan et al., 1994), le ^{10}Be (McKeegan et al., 2000) et le ^{53}Mn (Birck et Allègre, 1985). Tout ce qui concerne les radioactivités éteintes est abordé en détail dans la partie 3 du manuscrit.

4.3. Formation des inclusions réfractaires

Il est maintenant communément accepté que peu ou pas d'inclusions réfractaires sont directement formées par assemblage de condensats dans la nébuleuse comme le proposait Grossman (1972). C'est cependant le cas, entre autre, de certaines inclusions de type FTA riches en mélilite, des AOA ou des agrégats d'hibonite dans les CM qui ont préservé des caractéristiques chimiques et pétrographiques liées à la condensation (MacPherson et Grossman, 1984; Krot et al., 2004).

La plupart inclusions réfractaires ont connus une histoire complexe incluant notamment de multiples épisodes de fusion partielle qui ont effacé les témoignages morphologiques et texturaux de la condensation (Stolper et Paque, 1986; MacPherson et Davis, 1993; Mendybaev et al., 2006; Richter et al., 2007). Plusieurs études proposent que les CAIs soient les résidus de l'évaporation de matériel préexistant (Kurat, 1970; Chou et al., 1976; Hashimoto et al., 1979; Lee et al., 1979, 1980; Clayton et al., 1988; Davis et al., 1990) Un modèle plus consensuel propose un contrôle des compositions chimiques et isotopiques des CAIs d'une part par les processus de condensation et d'autre part par des processus d'évaporation lors de la fusion partielle des précurseurs condensés (Grossman et al., 2000, 2002; Richter et al., 2002). Cependant, l'importance relative des processus de condensation par rapport aux processus de fusion/cristallisation et d'évaporation dans le contrôle de la composition chimique et isotopique des inclusions réfractaires n'est pas clairement établie (MacPherson et al., 2003). D'autre part, ce modèle se heurte à certaine difficultés telles que les compositions isotopiques en oxygène, ou les concentrations en Si dans les inclusions (Richter et al., 2002). On touche ici du doigt toute la difficulté qu'il peut y avoir à essayer de trouver un scénario global de formation des CAIs.

5. Les chondres

5.1. Propriétés générales des chondres

Les chondres sont de petites sphérules silicatées, partiellement cristallisées (généralement inférieures au millimètre). Leur forme idéalement sphérique, leur texture ignée ainsi que la présence de verre indiquent qu'à un moment au cours de leur histoire les chondres ont été fondus ou partielle-

ment fondus. Bien qu'ils montrent des variations de compositions chimiques assez importantes entre les différentes classes de chondrites et au sein d'une même chondrite, ils ont dans l'ensemble des compositions silicatées riches en fer et en magnésium. Qu'il s'agisse des éléments volatils, refractaires ou sidérophiles, les abondances élémentaires sont assez fractionnées d'un chondre à l'autre et par

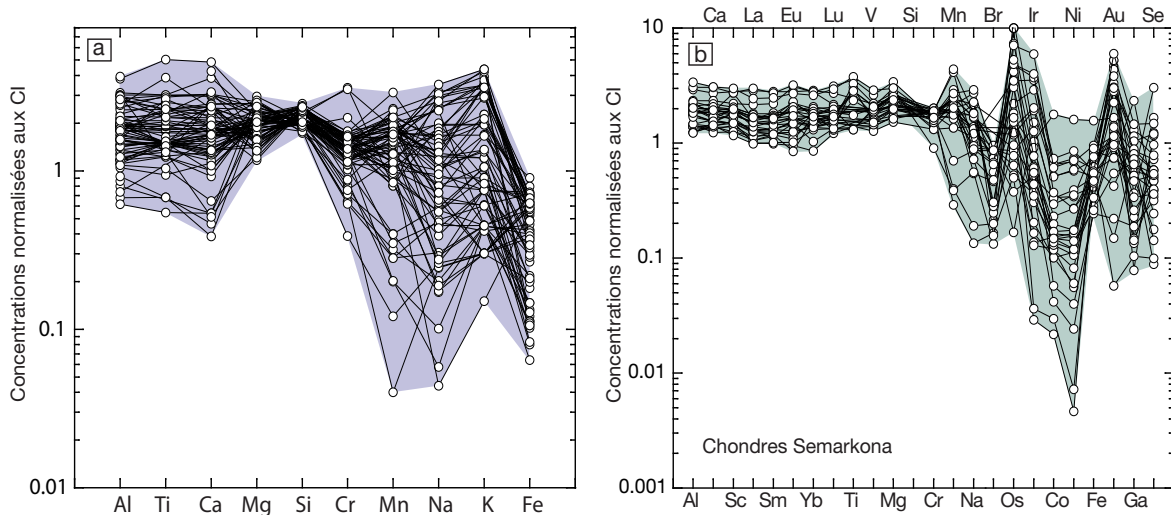


Fig. 12 : Variations des concentrations élémentaires normalisées aux CI (Lodders, 2003) des chondres de Semarkona (LL3.0). Les éléments sont rangés par ordre de volatilité. a) Données obtenues par sonde électronique : Jones et Scott, 1989; Jones 1990, 1994, 1996; Tachibana et al., 2003; cette thèse. b) Analyses par activation neutronique instrumentale (INAA) par Grossman et Wasson, 1983, 1985.

rapport aux CI (Fig. 12). Les données de compositions chimiques les plus complètes proviennent des chondres de la chondrite ordinaire Semarkona. Ces chondres riches en Fe et Mg sont regroupés sous l'appellation de chondres ferromagnésiens et représentent l'immense majorité des chondres. Il existe deux autres classes de chondres, les chondres riches en Al et les chondres riches en silice permettant la cristallisation de minéraux de silice pure.

Tableau 4 : Formule des minéraux des chondres.

Minéraux	Formule
Olivine	(Fe, Mg) ₂ SiO ₄
Orthopyroxène	(Fe, Mg)SiO ₃
Clinopyroxène	(Fe, Mg, Ca)SiO ₃
Plagioclase	CaAl ₂ Si ₂ O ₈ NaAlSi ₃ O ₈
Spinelle	MgAl ₂ O ₄
Kamacite	Fe-Ni
Chromite	FeCr ₂ O ₄
Troïlite	FeS

Les chondres ont une minéralogie très simple puisqu'ils sont composés majoritairement et dans des proportions relatives variables d'olivine, d'orthopyroxène et de clinopyroxène. Ces minéraux majeurs sont souvent accompagnés de plusieurs minéraux accessoires tels que le plagioclase, le spinelle, la chromite, la troïlite et la kamacite (Tableau 4). Entre ces minéraux, on retrouve une phase vitreuse ou microcristallisée appelée mésostase, également présente dans des proportions variables.

Les chondres sont les constituants très largement majoritaires des chondrites (jusqu'à 80%, Tableau 1). A ce titre, la compréhension de l'origine et des processus de formation des chondres est une étape indispensable vers la connaissance de l'histoire de la formation du Système Solaire.

5.2. Classification des chondres ferromagnésiens

5.2.1. Classification texturale / Classification chimique

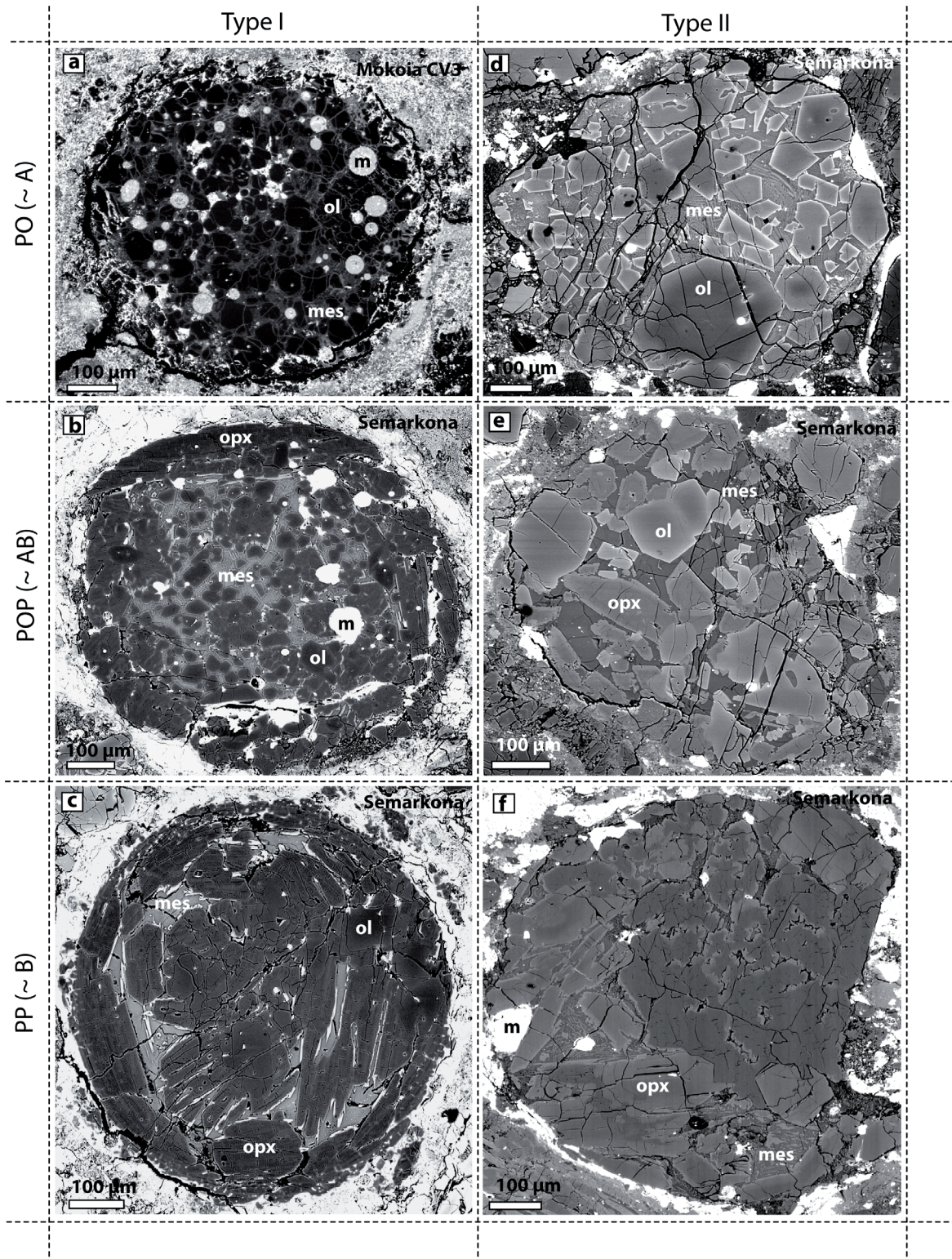


Fig. 13 : Images en électrons rétrodiffusés de chondres porphyriques de Mokoia (CV3) et Semarkona (LL3.0). a-c) Chondres de type I avec dans l'ordre type I PO, I POP et I PP. d-f) Chondres de type II avec dans l'ordre type II PO, II POP et II PP. Ol = olivine, opx = orthopyroxène, mes = mésostase et m = Fe-Ni métal.

En 1981, Gooding et Keil mirent au point une classification astucieuse des chondres des chondrites ordinaires non-équilibrées fondée sur leur texture. Deux grandes classes texturales ont ainsi pu être identifiées :

- Les chondres porphyriques constitués de cristaux automorphes ou sub-automorphes d'olivine et d'orthopyroxène entourés d'une mésostase vitreuse ou microcristallisée (Fig. 13). Ils représentent environ 80% de la population de chondres au sein d'une chondrite (Tableau 5). Cette classe est divisée en trois groupes selon les proportions relatives d'olivine et de pyroxène. Les chondres sont dits porphyriques à olivine (PO, Fig. 13a, d) lorsque leur rapport volumique olivine/pyroxène est supérieur à 10/1. Ils sont dits porphyriques à pyroxène (PP, Fig. 13c, f) lorsque le rapport pyroxène/olivine est supérieur) 10/1. enfin ils portent l'appellation de chondres porphyrique à olivine et pyroxène (POP, Fig. 13b, e) lorsque les abondances d'olivine et de pyroxène sont entre ces deux extrêmes (Tableau 5). La présentation détaillée des chondres porphyriques est abordée plus loin.

- Les chondres non-porphyriques regroupent l'ensemble des chondres dont les textures ne répondent pas aux critères de la classe ci-dessus. Cela va des chondres cryptocristallins (CC, Fig. 14f) aux chondres granulaires à olivine et/ou pyroxène (GO, GP et GOP selon le même critère que pour les chondres porphyriques) en passant par les chondres à olivine barrés (BO, Fig. 14a, b), les chondres à pyroxènes radiaux (RP, Fig. 14c-e) et les chondres métalliques (M). Les CC sont constitués de verres avec des cristaux dendritiques de tailles micrométriques. Les chondres granulaires présentent des textures assez semblables à celles des chondres porphyriques, constituées de cristaux jointifs d'olivine et de pyroxène xénomorphes de très petite taille, dans une mésostase vitreuse. Les chondres barrés sont constitués quasiment exclusivement de lattes parallèles d'olivines. Les chondres radiés sont formés d'éventails de pyroxènes avec un ou plusieurs points de départ en périphérie des chondres. Enfin les chondres métalliques sont des assemblages de Fe-Ni métal avec de la troilite (FeS) et quelques autres minéraux accessoires tels que la schreibersite et du Cu natif. Les abondances de ces différentes classes de chondres sont données dans le Tableau 5.

Ces différences de textures entre les chondres sont attribuées à des différences de compositions chimiques et donc de températures de liquidus mais également de régimes thermiques lors des épisodes de fusion. Sans rentrer dans les détails, pour former des chondres porphyriques il faut que la fusion soit partielle, c'est-à-dire que le pic de température soit proche du liquidus, afin que subsistent de nombreux sites de nucléation à partir desquels les cristaux pourront croître. En revanche, pour les chondres barrés et radiés, il faut que la fusion soit complète, c'est-à-dire que le pic de température soit supérieur au liquidus (Lofgren, 1996; Radomsky et Hewins, 1990; Hewins et Radomsky, 1990; Faure et al., 2003; Hewins et al., 2005). La vitesse de refroidissement est également un paramètre

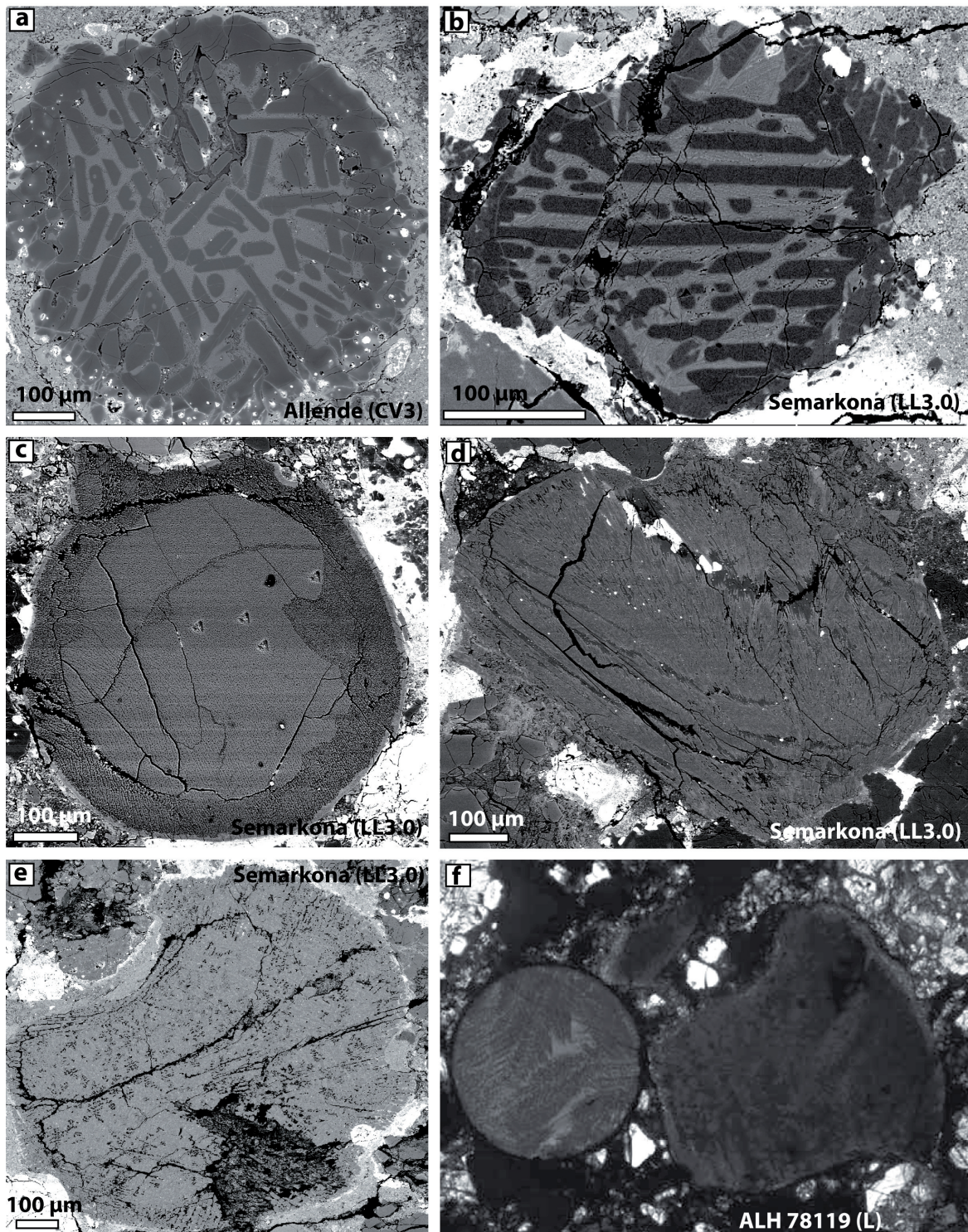


Fig. 14 : Photos de chondres en électrons rétrodiffusés (a-e) et microscope optique (f). a, b) Chondres à olivines barrées provenant d'Allende (CV3) et Semarkona (LL3). c-e) Chondres à pyroxènes radiés provenant de Semarkona (LL3). f) Chondres cryptocristallins provenant de ALH 78119 (d'après Lauretta et al., 2006).

critique pour la taille et le nombre de cristaux (Lofgren, 1996; Radomsky et Hewins, 1990).

Depuis cette classification élaborée par Gooding et Keil (1981), une autre classification fondée sur les caractéristiques chimiques des chondres et complémentaire de la classification tex-

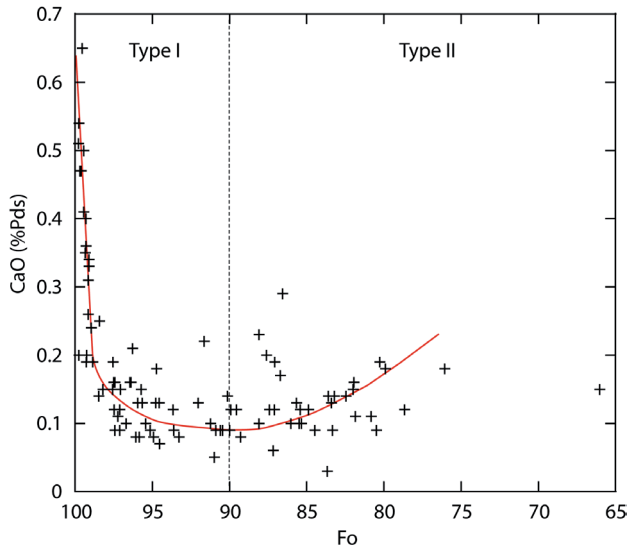


Fig. 15 : Concentration en CaO dans les olivines des chondres porphyriques de Semarkona en fonction de l'abondance en forstérite (Jones et Scott, 1989; Jones 1990, 1994, 1996; cette thèse). Fo90 signifie qu'il y a 10 % atomique de Fe dans l'olivine. Comme l'olivine est une solution solide de forstérite (pôle magnésien) et de fayalite (pôle ferrifère), une olivine Fo90 est également Fa10; par la suite nous utiliserons ces deux notations indifféremment.

turelle a été développée pour les chondres porphyriques (McSween, 1977; Scott et Taylor, 1983). Elle a permis de définir deux catégories (I et II) selon la teneur en FeO des chondres (Fig. 13). Un chondre est dit de type I s'il présente des olivines et/ou des orthopyroxènes pauvres en FeO. Cette limite est placée arbitrairement à forstérite (Fo) et enstatite (En) supérieurs à 90 [Fo, En = Mg/(Mg+Fe), en pourcentages atomiques]. A l'inverse, si Fo et En sont inférieurs à 90, les chondres sont dits de type II. Par habitude, les chondres de type I sont appelés chondres réduits (Fe⁰) tandis que les chondres de type II sont appelés chondres oxydés (Fe²⁺). Dans les faits, il ne semble pas y avoir de coupure franche entre les deux types de chondres. La

figure 15 illustre assez bien la difficulté qu'il peut y avoir certaines fois à classer les chondres dans telle ou telle catégorie. Visiblement, la teneur en CaO décroît fortement dans les olivines dès que celles-ci s'enrichissent en FeO, jusqu'à atteindre une valeur basse à environ Fo 90-88 dans le cas des

Tableau 5 : Récapitulatif des critères des classifications texturale et chimique (Gooding et Keil, 1981; McSween, 1977; Scott et Taylor, 1983), ainsi que des abondances des différentes classes de chondres dans les chondrites ordinaires.

Classification texturale			
Abréviation	Abondance dans les OCs [†]		Texture
POP	47 – 52%		Porphyrique à olivines et pyroxènes
PO	15 – 27%		Porphyrique à olivines (ratio >10/1)
PP	9 – 11%		Porphyrique à pyroxènes (ratio >10/1)
RP	7 – 9%		Pyroxènes radiés
BO	3 – 4%		Olivines barrées
CC	3 – 5%		Cryptocristallin
GOP	2 – 5%		Granulaire à olivines et pyroxènes
M	<1%		Métallique
Classification chimique			
type	Composition	Sous-type	Abondances des silicates
I	Pauvre en FeO (Fo, En > 90)	A	Olivine > 80% vol.
		AB	Intermédiaire
II	Riche en FeO (Fo, En < 90)	B	Pyroxène > 80% vol.

[†] Chondrites ordinaires.

chondres de Semarkona, avant de remonter. Ce point bas est généralement pris comme limite entre les types I et les types II. Cependant, on voit bien que pour certains chondres le classement restera très subjectif.

Ces deux catégories sont subdivisées en deux sous-types (A et B) suivant les abondances en olivine et pyroxène (Fig. 13). Les chondres de types IA et IIA contiennent principalement de l'olivine (> 80% vol.) tandis que des types IB et IIB contiennent principalement du pyroxène (> 80% vol.). Les chondres avec des abondances intermédiaires sont classés IAB et IIAB (Tableau 4). Cette subdivision de la classification chimique est assez similaire à la classification texturale de Gooding et Keil (1981) avec les trois groupes PO, POP et PP. Dans la suite du manuscrit nous utiliserons une combinaison de ces deux classifications, e.g. des chondres de type I PO ou II POP.

La description des chondres porphyriques qui suit est basée essentiellement sur l'observation de la chondrite Semarkona car cette chondrite est à la fois la plus étudiée, et une des mieux préservée parmi les chondrites ordinaires et le support d'une partie du travail de cette thèse.

5.2.2. Les chondres de type I

Comme indiqué ci-dessus, il s'agit de tous les chondres pour lesquels les teneurs en FeO des olivines et des pyroxènes n'excède pas 10% atomique. D'un point de vue textural, on retrouve tous les intermédiaires entre les PO purs ne contenant pas de pyroxène jusqu'aux PP ne contenant pas d'olivine (Fig. 13a-e).

Dans les chondres PO, les cristaux d'olivine sont dans la plupart des cas de petite taille (< 50 μm), parfois de forme automorphe à sub-automorphe au cœur des chondres mais le plus souvent résorbés avec des angles émoussés et des golfes de corrosion (Fig. 13a-c, Fig. 16a, b). Lorsqu'elles sont peu altérées, ces olivines ne présentent pas ou peu de gradients compositionnels. En revanche, on observe des augmentations de teneurs en Fe (souvent corrélées avec Mn et Cr) du cœur vers la bordure des olivines lorsque celles-ci sont résorbées (Fig. 16a, e, Jones et Scott, 1989). Dans certains chondres, les olivines renferment une multitude de minuscules billes métalliques; elles portent alors le qualificatif de «dusty olivine» (Fig. 16b). Dans les chondres POP et PP, l'altération des olivines est encore plus flagrante et l'on observe couramment des textures poecilitiques pour lesquelles les olivines sont en inclusions de grands cristaux d'orthopyroxène automorphes (Fig. 13b, Fig. 16e). Toutes ces textures d'olivines indiquent que ces dernières sont en déséquilibre avec leur mésostase et se résorbent au profit des orthopyroxènes. Ce déséquilibre chimique semble croissant des PO vers les PP avec des olivines de plus en plus altérées et résorbées (Fig. 13a-c; Fig. 16e). On retrouve également ces olivines forstéritiques sous forme de gros fragments monocristallins (plusieurs centaines

de μm) avec peu ou pas de mésostase, dispersés dans la matrice (Fig. 16d).

Dans les chondres POP, la croissance des pyroxènes pauvres en Ca (orthopyroxène) se fait en règle générale en périphérie, parallèlement aux bords des chondres. Ils forment de grands cristaux allongés automorphes avec parfois des zonation chimiques complexes (Fig.13b, Fig. 16e).

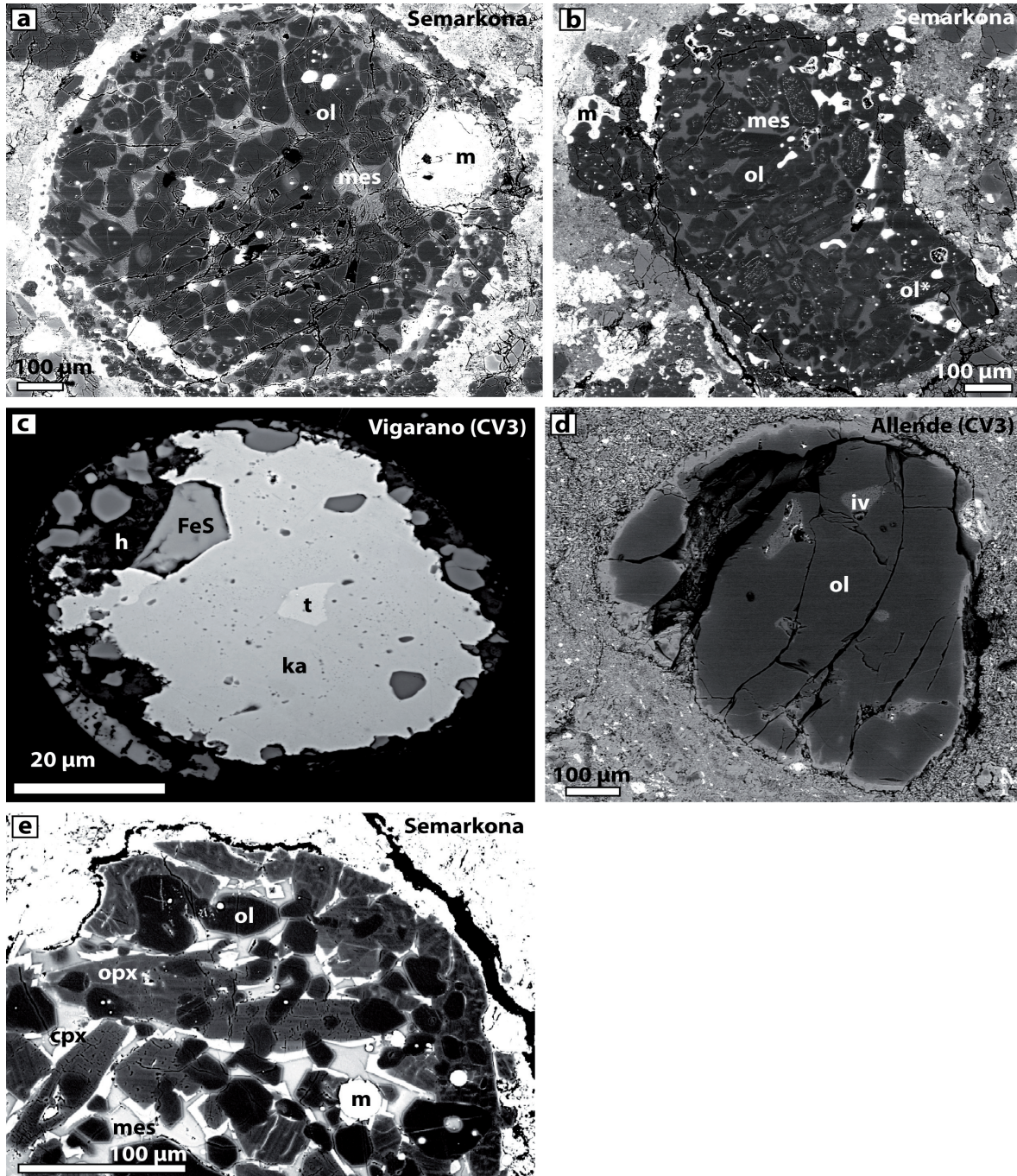


Fig. 16 : Images en électrons rétrodiffusés de chondres ou parties de chondres de type I. a) Chondres POP avec des olivines partiellement résorbées. b) chondre PO avec des «dusty» olivines. c) Détails d'un nodule métallique d'un chondre de Vigarano (CV3). d) olivine isolée dans la matrice et contenant des inclusions vitreuses. e) Bordure d'un chondre avec des textures poecilitiques. Ol = olivine, ol* = «dusty» olivine, opx = orthopyroxène, m = Fe-Ni métal, cpx = clinopyroxène, mes = mésostase, iv = inclusion vitreuse, t = taenite, ka = kamacite, FeS = sulfure de fer et h = hématite.

On observe couramment des surcroissances de pyroxènes riches en Ca (clinopyroxène) à l'interface entre les orthopyroxènes et la mésostase. Dans les chondres PP, ces grands cristaux d'orthopyroxène occupent l'ensemble du volume des chondres mais avec souvent des formes plus compactes au cœur qu'en périphérie (Fig. 13c).

La mésostase présente des abondances variables d'un chondre à l'autre (en général inférieures à 30% du volume total) et est soit vitreuse avec souvent des cristaux dendritiques de clinopyroxène soit microcristallisée (Fig. 13a-c, Fig. 16a, b, e).

Dans les chondres de type I, le Fe-Ni métal forme de sphères de diamètres variables, parfois largement supérieurs à 100 μm mais le plus souvent inférieurs à 50 μm (Fig. 13a, b, Fig. 16c). Cette forme sphérique indique que ces nodules métalliques étaient liquides lors de la formation des chondres. Dans les PO, les nodules métalliques sont en général placés aux joints des cristaux d'olivines, libres dans la mésostase et en périphérie des chondres (Fig. 13a, Fig. 16a). En revanche, dans les POP et PP le métal est plutôt soit dans la mésostase soit dans les cristaux d'orthopyroxène (Fig. 13b). Les proportions de Fe-Ni métal sont très variables d'un chondre à un autre. Lorsqu'il n'est pas altéré, ce métal est constitué d'un alliage de taenite (riche en Ni) et de kamacite (pauvre en Ni). Son altération fait apparaître des phases oxydées telles que des sulfures et des oxydes de fer (Fig. 16c).

5.2.3. Les chondres de type II

Les chondres de type II sont par définition beaucoup plus riches en FeO que les types I, et bien qu'ils présentent des minéralogies similaires (olivine + pyroxène + mésostase) avec la même variabilité entre le pôle olivine et le pôle orthopyroxène, ils sont visuellement très différents (Fig.

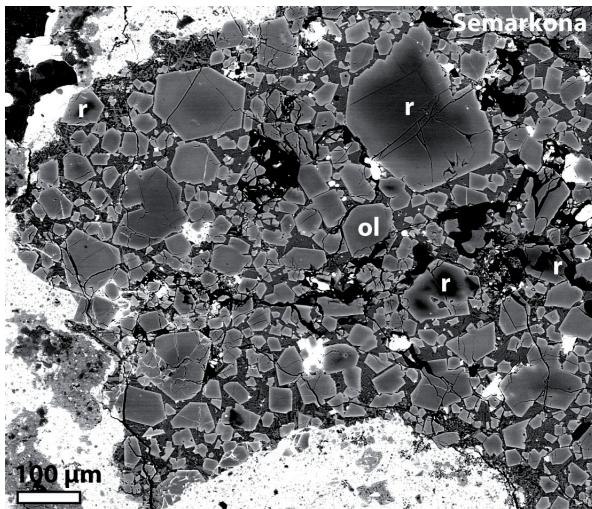


Fig. 17 : Cœurs reliques de forstérite dans des fayalites d'un chondre de type II PO.

13). En règle générale, les chondres de type II sont de plus grande taille que les type I (0,5 à 2mm en moyenne contre 0,2 à 1 mm). Leurs formes sont souvent plus irrégulières.

Dans les types II PO, les olivines sont automorphes et de tailles variables allant d'une dizaine de μm jusqu'à plusieurs centaines de μm (Fig. 13d). Elles présentent des zonations chimiques plus importantes que dans les types I et les gradients de concentration en Fe peuvent varier de Fa10 au cœur jusqu'à Fa40 en

bordure des olivines (e.g. Jones, 1990). Cette zonation en Fe s'accompagne souvent de celle d'éléments traces dans les olivines tels que Ca, Mn ou Cr. Enfin, dans certains chondres on trouve des forstérites reliques au cœur d'olivines fayalitiques (Fig. 17). On les suppose héritées des précurseurs de ces chondres (e.g. Jones, 1996; Pack et al., 2004; Ruzicka et al., 2007).

Dans les classes POP et PP, les orthopyroxènes sont présents sous forme de grands cristaux automorphes, allongés. Ils présentent en général une zonation importante avec des cœurs à enstatite ou clinoenstatite et des bordures plus riches en Ca, composées d'augite et de pigeonite (Fig. 13e, f). On retrouve également des zonations en Fe similaires à celles des olivines. Bien que l'abondance des olivines décroît vers la classe PP, on retrouve rarement de texture poecilitique comme dans les chondres de type I (Fig. 13e). Dans la plupart des cas, on observe des interpénétrations d'olivines et de pyroxènes avec systématiquement des cristaux automorphes.

La mésostase dont les proportions varient en moyenne de 5 à 30%, est soit vitreuse soit le plus souvent, recristallisée sous forme de petits cristaux de clinopyroxènes dendritiques (Fig. 13d-f).

5.3. Les chondres alumineux

Les chondres alumineux diffèrent des chondres ferromagnésiens en ce sens qu'ils présentent des concentrations importantes en éléments réfractaires (Al et Ca). Cette classe a été arbitrairement définie pour des chondres qui comprenaient plus de 10 wt% d'Al₂O₃ en composition globale.

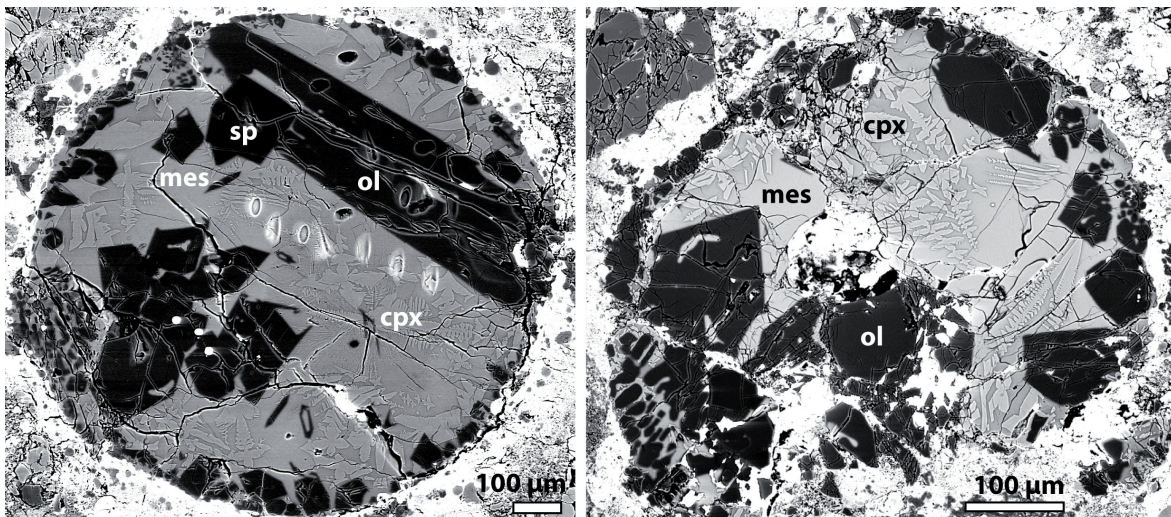


Fig. 18 : Chondres alumineux de Semarkona. Ol = olivine, sp = spinelle, mes = mésostase et cpx = clinopyroxène.

De ce fait, ils ont une composition chimique intermédiaire entre les CAIs et les chondres ferromagnésiens. Ils présentent cependant des caractéristiques typiques des chondres avec des minéralogies composées de forstérite, d'orthopyroxène, de plagioclase et de spinelle, le tout baignant dans une

abondante mésostase (Fig. 18). La mésostase est souvent vitreuse avec des cristaux dendritiques de clinopyroxène. Le fer est pratiquement toujours absent des chondres alumineux.

5.4. Propriétés isotopiques remarquables des chondres

5.4.1. Compositions isotopiques en oxygène

Il existe une grande variabilité de compositions isotopiques en oxygène entre les chondres des différentes classes de chondrites (Fig. 19). Les compositions des chondres des chondrites carbonées sont plus ou moins enrichies en ^{16}O et s'alignent assez bien sur la droite des CAIs, sous la

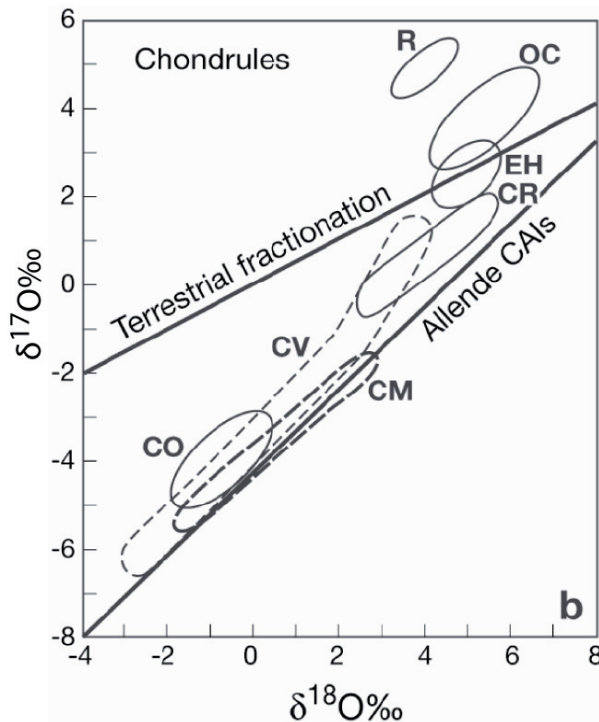


Fig. 19 : Champs de compositions isotopiques en oxygène des chondres des chondrites carbonées, ordinaires et à enstatite (Scott et Krot, 2005).

droite de fractionnement terrestre. Celles des chondres des chondrites à enstatite sont pour leur part homogènes et proches de la droite de fractionnement terrestre et sont peu ou pas enrichies en ^{16}O . Enfin, les chondrites ordinaires et les rumurutites ont des compositions homogènes et situées au-dessus de la droite de fractionnement terrestre. Sans surprise, la comparaison des compositions isotopiques des chondres avec celles des chondrites correspondantes (Fig. 7, Fig. 19) donne des résultats concordants.

le modèle dit du «CO self-shielding» a été développé (Clayton, 2002). Le principe du «CO self-shielding» repose sur la photodissociation préférentielle des molécules lourdes de CO ($^{12}\text{C}^{17}\text{O}$ et $^{12}\text{C}^{18}\text{O}$), au dépend du $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$, contenues dans le nuage moléculaire par photolyse UV (Federman et al., 2003), en raison de l'auto-écranage de l'isotopologue $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$, dû à son abondance relative par rapport aux $^{12}\text{C}^{17}\text{O}$ et $^{12}\text{C}^{18}\text{O}$. Ensuite, Les oxygènes lourds peuvent ensuite se combiner avec de l'hydrogène pour former une glace d'eau qui une fois assemblée en amas est capable, contrairement au CO, de rentrer dans le nuage moléculaire, de migrer rapidement vers le Soleil, puis en s'évaporant d'enrichir le disque en oxygène lourd de façon efficace (Cuzzi et Zahnle, 2004). Dans ce modèle de «self-shielding», les compositions isotopiques des CAIs et des chondres sont expliquées par un mélange entre des précurseurs hérités du disque protoplanétaire initialement riche en ^{16}O ($\Delta^{17}\text{O} \approx -$

Pour essayer d'expliquer l'ensemble de ces fractionnements isotopiques en oxygène non dépendants de la masse aussi bien dans les CAIs que dans les chondres,

25%, Clayton 2002; Lyons et Young, 2005; Yurimoto et Kuramoto, 2004) et le gaz et les poussières de la nébuleuse interne qui progressivement s'enrichissent en isotopes lourds (^{17}O et ^{18}O). Ce modèle prédit une composition du système solaire, donc du Soleil, très enrichie en ^{16}O . La mesure de compositions isotopiques en oxygène du vent solaire implanté dans des grains de sol lunaire (Hashizume et Chaussidon, 2005, 2009) et des échantillons de la mission Genesis (McKeegan et al., 2009) semble confirmer cette prédiction.

Ces fractionnements non dépendants de la masse peuvent également être combinés à des fractionnements dépendants de la masse, notamment par interaction avec un réservoir gazeux ou liquide sur les corps parents ou lors de processus secondaires d'altération et de métamorphisme (Krot et al., 2006)

5.4.2. Autres éléments

Il est assez remarquable de constater que dans les chondres, à l'exception des isotopes formés par décroissance de radionucléides et de l'oxygène, on observe une grande homogénéité des compositions isotopiques aussi bien pour les éléments réfractaires (Ca, Al, Ti) que les éléments modérément volatils et volatils (Si, Mg, Fe, K, Na, Alexander et al., 2000; Alexander et Wang, 2001, Yu et al., 2003). Cette absence de fractionnement dépendant de la masse notamment pour les volatils implique que les chondres n'ont pas subi de processus d'évaporation hors équilibre lors de leur formation, ce qui comme on le verra dans la suite apporte d'importantes contraintes pour les modèles de formation.

Les hétérogénéités isotopiques liées aux radioactivités éteintes, notamment le système ^{26}Al - ^{26}Mg , sont traitées dans le chapitre 3.

5.5. Origine des chondres : précurseurs et principaux modèles de formation

5.5.1. Le modèle canonique

Jusqu'à récemment, il était communément admis que les chondres avaient été formés par chauffe à haute température de «dustballs», accrétées à partir de poussières elles même condensées lors du refroidissement du gaz de la nébuleuse (conformément à la séquence de condensation à l'équilibre). De plus, la plupart des chercheurs considéraient que ce processus s'effectuait en système fermé, ce qui impliquait des mécanismes de chauffe extrêmement brefs («flash heating») afin d'empêcher toute interaction entre les chondres et le gaz de la nébuleuse (Grossman et Wasson, 1983a, b; Rubin et Wasson, 1988; Grossman 1988; Hewins, 1991; Jones, 1994). Ce processus avait la vertu de la simplicité et expliquait l'absence d'évaporation dans les chondres. Selon ce modèle, la diversité chimique et isotopique entre les chondres s'expliquait par la diversité des précurseurs (Fig. 22).

Cependant, pour de multiples raisons, fondées sur des observations pétrographiques, chimiques et isotopiques, ce modèle est aujourd'hui très largement remis en question. En raison de la grande diversité chimique, isotopique, morphologique et texturale des chondres il est très difficile voir impossible d'établir un modèle de formation applicable à l'ensemble des chondres. La nature des précurseurs des chondres, le rôle du gaz de la nébuleuse, les régimes thermiques de chauffe, les mécanismes de fusion sont, comme nous allons le voir, autant de sujets encore très largement débattus et controversés.

5.5.2. Quels précurseurs pour les chondres?

La formation de «dustballs» comme précurseurs des chondres, telle qu'elle est considérée dans le modèle canonique, n'est pas forcément quelque chose de trivial à faire car cela requière des processus d'accrétion très rapides afin d'éviter un trop important mélange des poussières et de préserver les hétérogénéités chimiques et isotopiques des chondres (Wood, 1996). D'autre part, la présence de minéraux reliques dans les chondres va à l'encontre de ce modèle canonique de formation des chondres en système fermé directement à partir de «dustballs» (Nagahara, 1981, 1983; Rambaldi, 1981; Jones 1996; Kunihiro et al., 2004; Pack et al., 2004; Ruzicka et al., 2007).

Afin d'expliquer au mieux les compositions des chondres, de nombreux autres modèles de précurseurs pour les chondres ont été proposés (voir Wood, 1996, Zanda 2004, Laurretta et al., 2006; Jones et al., 2005; Hewins et al., 2005 pour des articles de synthèse). Certains modèles suggèrent que les chondres ont été formés à partir de liquides directement condensés à partir du gaz (Nelson et al., 1972; Blander et al., 2001, 2004). Ebel et Grossman (2000) ont montré que des liquides avec des compositions proches de celles des chondres pouvaient condenser mais uniquement dans des conditions de pression ($>10^{-3}$ bar) et de densité de poussières (de 100 à 1000 fois la densité nébulaire) très supérieures aux valeurs canoniques de la nébuleuse et à température fixe ($\sim 900^\circ\text{C}$). Ceci dit, ce modèle est compatible avec l'absence de fractionnement isotopique par distillation de Rayleigh dans les chondres. De plus, ce modèle est avancé pour expliquer la formation des chondres du groupe de chondrite CH (Krot et al., 2001). Cependant, les conditions nébulaires drastiques nécessaires à ce modèle, l'existence de minéraux reliques dans de nombreuses variétés de chondres ainsi que la nécessité de l'existence de nombreux nuclei pour former les chondres PO (voir 5.5.4.) sont autant d'obstacles à la formation des chondres directement par condensation du gaz.

Wood (1996) propose un modèle dérivé du modèle de la «dustball» dans lequel les chondres sont formés par accumulation de poussières et de gouttelettes de liquide chaude. Ce modèle privilégie un simple processus continu de formation en une seule étape, plus rapide que le modèle canonique et plus à même de préserver l'hétérogénéité chimique et isotopique entre les chondres

(Wood et Holmberg, 1994). Il permet d'expliquer simplement certaines textures particulières de chondres dans les chondrites carbonées et qui semblent avoir été formées par agrégation de composants liquides et de poussières. Cependant la rareté des chondres de taille micrométrique, formées à partir de gouttelettes de liquide chaud, dans les chondrites ne plaide pas en faveur de ce modèle.

D'autres modèles suggèrent que les chondres soient du matériel éjecté de planétésimaux partiellement différenciés, soit par volcanisme (Hutchison et Graham, 1975; Kennedy et al., 1992) soit par impacts entre planétésimaux (Hutchison et al., 1988, 2005). Cependant, à l'exception de fragments ignées dans certaines les chondrites ordinaires, aucun chondre ne possède de signature chimique et isotopique attribuable à la fusion partielle et la différenciation de planétésimaux.

La présence de grains reliques d'olivine et d'orthopyroxène chimiquement et isotopiquement différents dans les chondres de type II et de «dusty» olivines dans les chondres de type I est interprétée comme étant due à la présence de grands cristaux (peut-être jusqu'à plusieurs centaines de μm) parmi les précurseurs des chondres (Nagahara, 1981, 1983; Rambaldi, 1981; Jones 1996; Kunihiro et al., 2004; Pack et al., 2004; Ruzicka et al., 2007). Jones (1996) estime qu'au moins 15% des chondres contiennent des minéraux reliques. De par leurs compositions chimiques, ces reliques sont interprétées comme provenant de générations plus anciennes de chondres (Jones, 1996; Nagahara, 1983; Pack et al., 2004). La présence de ces reliques, de nombreux fragments de chondres et d'olivines forstéritiques isolées dans la matrice des chondres suggèrent que la fragmentation des

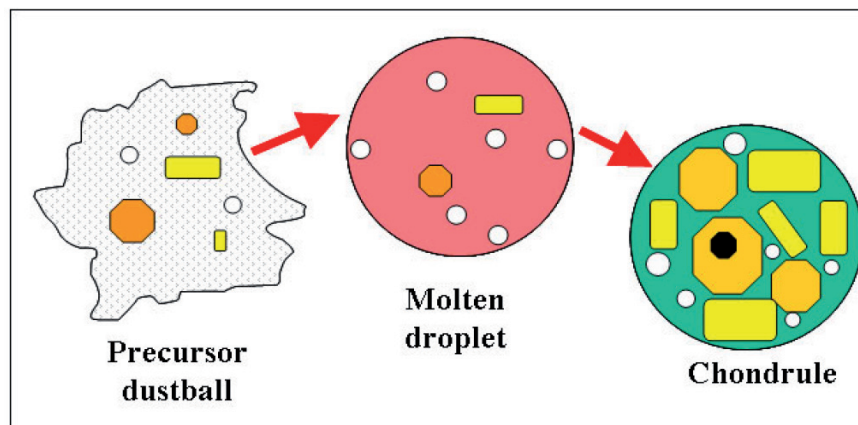


Fig. 20 : Modèle classique de formation des chondres (Jones et al., 2005).

chondres par impacts ainsi que le recyclage de générations antérieures de chondres est un processus important dans la formation des chondres (Alexander et al., 1989; Alexander, 1996; Jones, 1992). Dans le modèle classique de formation des chondres, un agrégat de précurseurs mêlant des minéraux reliques, des poussières, du métal et divers oxydes subit un épisode de chauffe le transformant en une gouttelette fondue qui peut cristalliser lors du refroidissement et former un chondre (Fig. 20).

Récemment, il a été montré que les olivines magnésiennes des chondres de type I ne sont pas en équilibre chimique et isotopique avec la mésostase dans laquelle elles baignent (Libourel et al., 2006; Chaussidon et al., 2008). Cela implique que ces olivines n'ont pas cristallisé à partir du

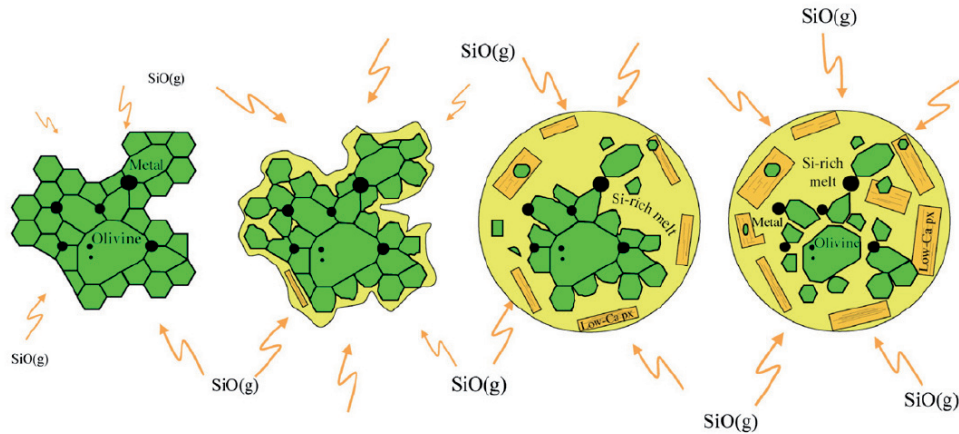


Fig. 21 : Modèle de formation des chondres de type I. A la faveur d'un épisode de chauffe, l'assemblage granoblastique d'olivine et de métal hérité d'un planétésimal interagit avec le gaz de la nébuleuse et s'enrichit en éléments volatils et modérément volatils (notamment Si), ce qui entraîne la dissolution des olivines reliques et la cristallisation d'une nouvelle phase minérale, l'orthopyroxène (Libourel et Krot, 2007).

liquide des chondres et par conséquent qu'elles sont reliques. Libourel et Krot (2007) suggèrent sur la base d'arguments pétrographiques que ces olivines sont issues de la partie mantellique de planétésimaux différenciés, fragmentées par des impacts. Ainsi, les auteurs proposent un modèle de formation des chondres de type I par l'interaction de précurseurs provenant de planétésimaux avec le gaz de la nébuleuse (Fig. 21).

5.5.3. Système fermé versus système ouvert

Il existe deux courants de pensée quant aux conditions de formation des chondres : (i) soit les chondres se forment en système fermé, auquel cas les éléments volatils ne sont pas perdus par les chondres lors des épisodes de chauffe et les chondres n'interagissent pas avec leur environnement, i. e. le gaz nébulaire (Wasson et Chou, 1974; Grossman et Wasson, 1983a, b; Rubin et Wasson, 1988; Grossman 1988; Hewins, 1991; Jones, 1994), soit (ii) les chondres se forment en système ouvert, c'est-à-dire qu'ils peuvent subir des processus d'évaporation (Larimer et Anders, 1967; Gooding et al., 1983; Kurat et al., 1983; Clayton et al., 1991; Matsunami et al., 1993; Alexander 1996, 2001; Sears et al., 1996; Hewins et al., 1996, 1997; Galy et al., 2000; Alexander et Wang, 2001) et de condensation (McSween, 1977; Ikeda, 1982; Matsunami et al., 1993; Kong et Palme, 1999; Tissandier et al., 2002; Libourel et al., 2003). Cette question de savoir si les chondres ont ou non interagi avec le gaz de la nébuleuse lors de leur formation est étroitement liée à la nature des précurseurs des

chondres et à leur histoire thermique.

Si les chondres ont été formés en système fermé, cela implique que la composition chimique des chondres est innée, i.e. les chondres riches en volatils dérivent de précurseurs riches en volatils (Fig. 22). Cela signifie que d'une part les précurseurs sont chimiquement et isotopiquement

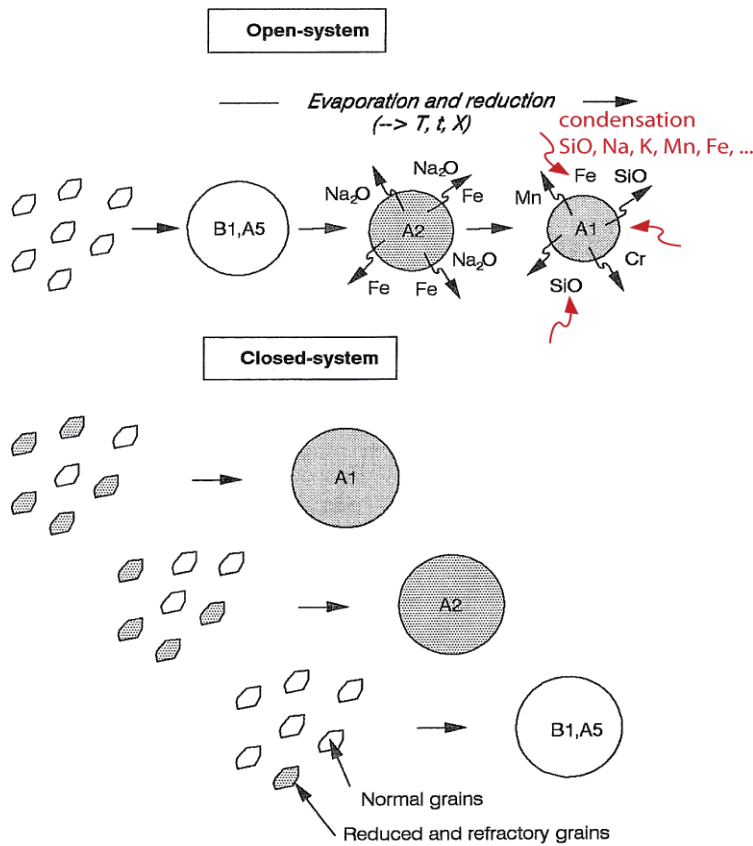


Fig. 22 : Modèles de formation des chondres en système ouvert et en système fermé (modifié d'après Sears et al., 1996).

fractionnés et d'autre part qu'un mécanisme de chauffe instantanée («flash heating») est requis pour que les chondres ne perdent pas leur contenu en volatils par évaporation. Si avec des modèles ad hoc de mélange de précurseurs il reste plus ou moins possible d'expliquer la variabilité des compositions chimiques et isotopiques globales des chondres, il est en revanche impossible d'expliquer bon nombre d'observations pétrographiques, chimiques et isotopiques comme par exemple la présence de minéraux reliques dans les chondres aussi bien de type I que de type II (Nagahara, 1981, Jones, 1996,

Libourel et al., 2006), les déséquilibres isotopiques en oxygène entre les olivines des chondres de type I et la mésostase (Chaussidon et al., 2007) ou les gradients de compositions chimiques en Si, Na et K du cœur vers la bordure des chondres (Matsunami et al., 1993; Nagahara et al., 1999; Libourel et al., 2003; Krot et al., 2004). D'autre part, le mécanisme de fusion des chondres les plus populaires par ondes de choc qui prédit des temps de chauffe beaucoup trop longs, rendant ainsi inévitable l'évaporation des éléments volatils (Desch et Connoly, 2002; Ciesla et Hood, 2002).

Des expériences ont montré qu'il était impossible d'expliquer les teneurs en volatils des chondres de type II avec ce modèle (Yu et Hewins., 1998; Yu et al., 2003). En effet, même lors d'un épisode de «flash heating», des conditions de fugacité en oxygène, de pressions partielles et totale très largement supérieures aux valeurs canoniques (e.g. Grossman et al., 2008) de la nébuleuse sont nécessaires pour empêcher la perte complète d'éléments volatils tels que S, Na ou K. Ainsi, même

si les conditions de pressions partielles canoniques des éléments volatils dans la nébuleuse sont mal connues, ces expériences montrent que les chondres de type II ont forcément interagi avec le gaz lors de leur formation. Tissandier et al. (2002) ont montré que les textures des chondres POP étaient aisément reproductibles par la condensation et la diffusion d'un gaz de SiO dans les chondres lors de leur chauffe. La question est donc plutôt de savoir dans quelles conditions et avec quel gaz ces interactions se sont elles produites?

De nombreux arguments pétrographiques, chimiques, isotopiques et expérimentaux sont favorables au modèle d'évolution des chondres en système ouvert. Certains de ces arguments parmi les plus pertinents sont listés ci-dessous :

- Ce modèle permet d'expliquer assez aisément les compositions chimiques globales observées dans les chondres sans qu'il faille que les précurseurs soient fractionnés. Ainsi, suivant les conditions lors de la chauffe (durée, température, pressions partielles et total du gaz), la diversité des compositions des chondres peut s'expliquer dans un premier temps par une perte plus ou moins importante des éléments les plus volatils (Fig. 20), puis par la recondensation de ces mêmes volatils lors du refroidissement des chondres. Ce processus expliquerait la corrélation qui existe entre la taille des chondres et leur teneurs en éléments réfractaires, i.e. les chondres les plus riches en éléments réfractaires (type I) sont les plus petits et inversement (Sears et al., 1996), mais également la présence de gradients chimiques dans la mésostase des chondres avec des enrichissements en volatils en bordure (Matsunami et al., 1993; Nagahara et al., 1999; Libourel et al., 2003; Krot et al., 2004).

- Ce modèle est compatible avec l'ensemble des modèles pour les précurseurs des chondres et ainsi s'accommode parfaitement de la présence de minéraux reliques dans les chondres.

- Plusieurs études montrent que pour expliquer les hétérogénéités de compositions isotopiques en oxygène dans les chondres il est indispensable que ces derniers aient interagi avec le gaz de la nébuleuse (Thiemens, 1996; Clayton, 2004; Chaussidon et al., 2008).

Si l'on accepte le fait qu'il faille des régimes thermiques moins brefs que le «flash heating» pour former les chondres (voir 5.5.4.), alors, pour expliquer l'absence de fractionnements isotopiques des éléments volatils par distillation de Rayleigh (Alexander et al., 2000; Alexander et Wang, 2001) il est nécessaire que les chondres aient été en équilibre chimique et isotopique avec le gaz de la nébuleuse lors des éventuels processus d'évaporation et de condensation. En d'autres termes, afin de permettre la recondensation des éléments les plus volatils il faut donc que la formation des chondres s'effectue dans un environnement avec des densités de gaz et de poussières supérieures aux valeurs canoniques de la nébuleuse (Lewis et al., 1993; Galy et al., 2000; Alexander, 2008; Mathieu, 2009).

5.5.4. Histoires thermiques des chondres

Comprendre au mieux les histoires thermiques (e.g. températures de chauffe, vitesse de refroidissement ...) subies par les chondres est indispensable pour contraindre les modèles de formation des chondres (e.g. mécanisme de fusion, environnement nébulaire ou planétaire ...). Pour cette raison, les histoires thermiques permettant de reproduire les textures et les propriétés chimiques des minéraux (compositions, zonations) des chondres ont été abondamment étudiées en laboratoire et sont maintenant assez bien connues même si l'accomplissement de nombreux progrès est encore nécessaire, notamment en ce qui concerne les vitesses de refroidissement (e.g. articles de synthèse de Connolly et Hewins, 1996; Hewins et al., 2005). Indépendamment du type de chondres, les histoires thermiques peuvent être scindées en deux étapes, la fusion des précurseurs et le refroidissement des gouttelettes liquides et être contraintes par deux paramètres physiques, la température et le temps.

a. Pics de température, compositions chimiques et préservation des sites de nucléation.

Plusieurs études expérimentales montrent que le paramètre clé pour expliquer les textures des chondres (porphyriques, BO, RP, ...) est le nombre de sites de nucléation préservés lors de la fusion des précurseurs. Si les précurseurs sont complètement fondus, i. e. température de chauffe supérieures à la température de liquidus, peu ou pas de site de nucléation seront préservés et les textures reproduites seront CC, BO ou RP (Hewins, 1988; Radomsky et Hewins, 1990; Lofgren et Lanier, 1990, Lofgren, 1996). A l'inverse, pour obtenir les textures porphyriques, il est nécessaire de préserver de nombreux sites de nucléation et donc de fondre partiellement les précurseurs, i.e. température de chauffe inférieure à la température de liquidus (e.g. Lofgren, 1989; Hewins et Radomsky, 1990; Connolly et al., 1998; Hewins et Fox, 2004; Lofgren et al., 1999; Lofgren et Le, 2000).

Afin de contraindre les pics de températures auxquels ont été soumis les précurseurs des chondres, il est indispensable de connaître les températures de liquidus de ces derniers. Suivant leurs compositions chimiques, les chondres dont les précurseurs ont été complètement fondus, i. e. textures de types CC, BO ou RP, ont des températures de liquidus comprises entre 1200°C et 1900°C (Herzberg, 1979; Hewins et Radomsky, 1990). Cela montre clairement que la composition chimique est un paramètre aussi important que le pic de température pour expliquer les textures des chondres. En se basant sur les abondances, les compositions et les textures des chondres partiellement ou complètement fondus Radomsky et Hewins (1990) ont estimé que la plupart des chondres ont été soumis à des pics de températures de 1500-1550°C.

Il est également important de contraindre la durée de l'épisode de chauffe. En effet, il est par exemple tout aussi bien possible de reproduire des textures porphyriques par une chauffe longue sous la température du liquidus (Hewins et Radomsky, 1990) que par une chauffe instantanée très supérieure à la température liquidus (Connolly et al., 1998). Cela est rendu possible par l'inertie cinétique de fusion et de dissolution des précurseurs.

L'abondance des textures porphyriques parmi les chondres (> 80%) et la présence de nombreux minéraux reliques impliquent nécessairement que la plupart des chondres n'ont pas été soumis à de trop forts pics de températures ou qu'ils n'ont pas été chauffés trop longtemps («flash heating»).

b. Vitesses de refroidissement

Les vitesses de refroidissement des chondres peuvent être contraintes encore une fois par les textures que l'on observe mais également par les compositions chimiques et les zonations chimiques des minéraux cristallisés lors du refroidissement. Les vitesses de refroidissement lentes qui sont requises pour produire des textures porphyriques sont comprises entre 100°C/h (reproduit au mieux les textures) et 1000°C/h (Lofgren, 1989; Radomsky et Hewins, 1990) tandis que pour reproduire des textures de type BO il faut des vitesses comprises entre 500°C/h et 2300°C/h (Lofgren et Lanier, 1990; Tsuchiyama et al., 2004). Il est possible de reproduire certaines textures classiques de chondres avec des épisodes de chauffe très brefs (quelques secondes) à des températures proches du liquidus suivies de vitesses de refroidissement très rapides (de l'ordre de 1000°C/h), qui simule des conditions de de type «flash heating» (Hewins, 1991).

La présence de zonations chimiques dans les minéraux, notamment les olivines, de certains chondres laisse penser que les vitesses de refroidissement ont été suffisamment rapides pour préserver ces hétérogénéités. Cependant, les zonations chimiques importantes dans les olivines riches en fer des chondres de type II des chondrites ordinaires (Jones, 1990) peuvent être expérimentalement reproduites avec des vitesses de refroidissement de l'ordre de 100°C/h (Jones et Lofgren, 1993). D'autre part, des zonations chimiques dans les olivines, compatibles avec celles observées dans les olivines des chondres, sont reproduites expérimentalement pour des vitesses refroidissement variant de 1 à 3600 °C/h (Radowski et Hewins, 1990; Weinbruch et al., 1998). D'autres études qui s'intéressent aux profils de diffusion des éléments entre les olivines magnésiennes reliques et leurs surcroissances ferrifères pour contraindre les vitesses de refroidissement des chondres concluent à des vitesses de refroidissement comprises entre ~ 50 °C/h et ~ 6000°C/h (Greeney et Ruzicka, 2004; Béjina et al., 2009, Hewins et al., 2009).

c. Un ou plusieurs épisodes de chauffe?

La présence de minéraux reliques héritées de générations plus anciennes de chondres (e.g. Nagahara, 1981, 1983; Rambaldi, 1981; Jones 1996; Kunihiro et al., 2004; Pack et al., 2004; Ruzicka et al., 2007), suggèrent que certains chondres ont été recyclés et fondus plusieurs fois.

D'autre part, dans certains objets des preuves texturales directes de chauffés multiples sont visibles telles que les couronnes à grains plus moins fins autour de certains chondres et qui sont interprétées comme étant formées par la fusion de poussières accrétées sur des chondres déjà formés. Enfin certains chondres sont formées de plusieurs chondres soit imbriqués les uns dans les autres soit disposés de façon concentrique (Rubin et Krot, 1996).

5.5.5. Quel mécanisme physique pour fondre les chondres?

Les différents mécanismes de fusion des chondres proposés par les chercheurs peuvent être classés parmi deux grands types d'environnements pour la formation des chondres, soit planétaire, soit nébulaire (e.g. Boss, 1996; Desch et al., 2005; Sanders et Taylors, 2005; Hutchison et al., 2005 pour des articles de synthèse).

Les tenants des modèles planétaires proposent que les chondres ont pu être formés par des collisions entre planétésimaux suffisamment énergétiques pour éjecter du matériel en fusion dans la nébuleuse (Urey, 1956; Hutchison et al., 1988, 2005), par du volcanisme (Hutchison et Graham, 1975; Kennedy et al., 1992) ou par ablation de gouttelettes liquides à partir d'astéroïdes au contact de l'atmosphère de planètes. A l'exception du modèle par collision entre planétésimaux, les autres sont quelque peu tombés en désuétude au profit des modèles nébulaires. Il existe un modèle hybride à la fois planétaire et nébulaire et qui propose de former les chondres par la fusion d'agrégats de poussières et/ou de débris de planétésimaux sous l'effet d'ondes de choc dans le voisinage de planétésimaux placés en résonance jovienne (Weidenschilling et al., 1998).

L'opinion majoritaire parmi la communauté scientifique est que l'origine du ou des mécanismes de fusion des chondres est à chercher dans un environnement nébulaire (Taylor et al., 1983; Grossman, 1988). Parmi la pléthore de modèles nébulaires on peut citer la condensation à partir de la nébuleuse proposée par Urey (1953), les «nebula lightning» produits par le frottement des poussières les unes contre les autres, les éruptions magnétiques et l'ensemble des modèles selon lesquels l'énergie nécessaire à la fusion des chondres est produite lors de l'accrétion du disque : les chocs accréionnels (Wood, 1984), les ondes de chocs produites causée par des amas de gaz interstellaire tombant sur le disque (Boss et Graham, 1993) et les jets bipolaires émis par le soleil jeune (Shu et al., 1996). Ces modèles présentent de sérieux problèmes lorsqu'on les confronte aux observations pétrographiques

et aux données chimiques et isotopiques sur les chondres. En effet, certains sont trop inefficaces pour expliquer l'abondance des chondres («nebula lightning», éruptions magnétiques), d'autres incompatibles avec les compositions chimiques et les multiples épisodes de chauffe subit par les chondres (condensation directe, ondes de chocs liées aux amas de gaz) et d'autres encore, incohérents avec les durées de formation des chondres et des CAIs (chocs accréionels, jets bipolaires).

Actuellement, il existe deux grands modèles de formation des chondres :

- Le modèle du vent X (Fig. 23, Shu et al., 1996, 1997, 2001). Selon ce modèle, le jeune Soleil émet des pulses d'énergie induit par des variations du champs magnétique, permettant d'amener suffisamment de chaleur pour fondre les précurseurs des CAIs et des chondres. Les CAIs sont formés dans une région appauvrie en gaz proche du Soleil ($\sim 0,06$ UA) appelée anneau de reconnexion tandis que les chondres sont formés plus loin du Soleil, dans une région riche en gaz proche de la région X (Fig.23).

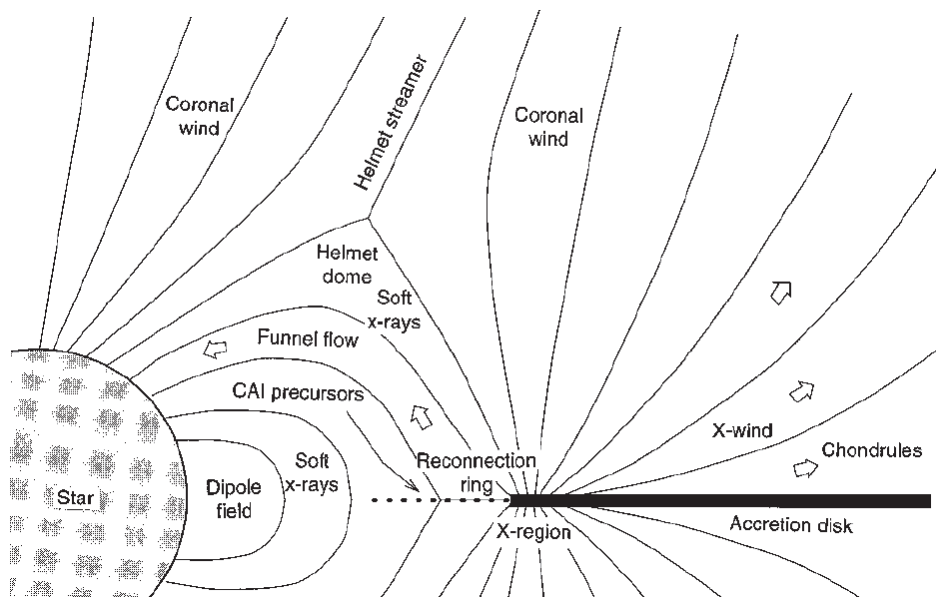


Fig. 23 : Modèle du vent X permettant d'expliquer la formation des CAIs et des chondres (Shu et al., 1996, 1997, 2001). Les CAIs et les chondres sont expulsés vers l'extérieur du disque le long des lignes de champs magnétique sous l'effet du vent X.

- Le modèle d'ondes de chocs se propageant au sein de la nébuleuse et qui est le plus populaire car il permet d'assez bien expliquer beaucoup des propriétés pétrographiques et géochimiques des chondres (Fig. 24, Hood et Horanyi, 1991, 1993; Desch et Connolly, 2002; Ciesla et Hood, 2002). Il propose que la fusion des chondres soit le résultat de la propagation d'ondes de chocs dans la nébuleuse, à une distance d'environ 1 UA, et explique les vitesses de refroidissement des chondres par la dissipation plus ou moins rapide de la chaleur en fonction de leur voisinage (gaz chaud et autres chondres). Dans ce modèle, les CAIs sont formés à proximité du Soleil ($\sim 0,06$ UA) avant

d'être éjectées dans la région de formation des chondres par le vent solaire. En revanche, la nature et l'origine des ondes de chocs demeure largement débattue (Boss et Durisen, 2005).

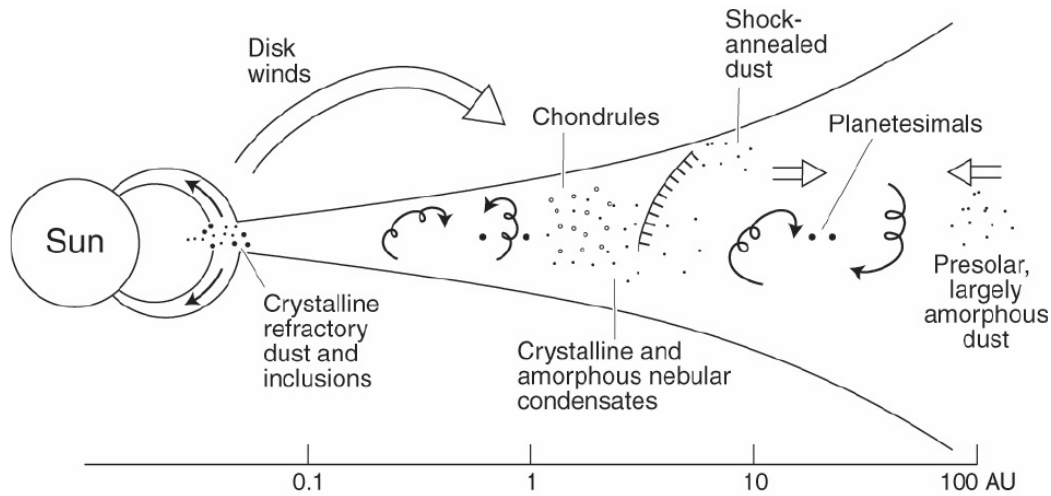


Fig. 24 : Modèle de formation des CAIs et des chondres par ondes de choc se propageant dans le disque d'accrétion (Scott et Krot, 2005).

Ce bref aperçu sur l'état de l'art de nos connaissances sur l'origine et les processus de formation des chondres nous montre combien ceux-ci sont complexes et combien il est et sera difficile d'appréhender l'ensemble des processus physiques et chimiques ayant présidé à la formation des chondres. Même si de nombreuses études récentes ont permis d'affiner nos connaissances, la nature des précurseurs des chondres au même titre que le rôle du gaz de la nébuleuse lors des processus de fusion des chondres demeure très controversés. Si l'histoire thermique du dernier épisode de fusion subit par les chondres (pic et durée du pic de température, vitesse de refroidissement) est assez bien contraint, il n'en va pas de même pour l'histoire et l'origine des minéraux reliques. Les processus responsables des épisodes de fusion des chondres sont également mal contraints.

Chapitre 3

Géochronologie de la Formation du Jeune Système Solaire : Que Nous Disent les Météorites?

1. Introduction	53
2. Théorie de la datation isotopique	54
2.1. La radioactivité	54
2.2. Radioactivités à longue période - Les âges absolus	56
2.3. Radioactivités à courte période - Les âges relatifs	57
2.4. Limites et incertitudes liées aux datations isotopiques	57
3. Quels processus peut-on dater?	59
3.1. Fractionnement géochimiques père/fils	59
3.2. Isochrones roches totales <i>versus</i> isochrones internes	60
4. La question de l'homogénéité de la distribution des radioactivités éteintes	61
4.1. Formation des radioactivités éteintes par irradiation par le jeune Soleil	61
4.2. Injection des radioactivités éteintes à partir d'une ou plusieurs étoiles massives	64
5. Chronologie absolue de la formation des premiers solides du Système Solaire	65
6. Chronologie relative de la formation du Système Solaire	67
6.1. Chronologie relative de formation des premiers solides fondée sur la radioactivité éteinte de l' ²⁶ Al	67
6.2. Chronologie relative de la différenciation des planétésimaux fondée sur la radioactivité éteinte de l' ¹⁸² Hf	71
6.3. Apport des autres radioactivités à courtes périodes	72

1. Introduction

Le temps est un paramètre clé qu'il est indispensable de bien connaître pour tout modèle de formation du Système Solaire. Pour déterminer et comprendre les processus physiques et chimiques mis en jeu lors de la formation du Système Solaire, il faut savoir quand et à quelle vitesse les objets se sont formés. Ainsi, à titre d'exemple, connaître les âges et les vitesses de formation des chondres permet de faire un tri parmi les différents mécanismes physiques potentiellement responsables de la

fusion des chondres pour ne conserver que ceux compatibles avec les âges géochronologiques (voir chapitre 2, partie 5.5.5.). A plus grande échelle, savoir quand, à quelle vitesse et dans quel contexte astrophysique le Soleil et les planètes se sont formés nous permet de comparer le Système Solaire aux autres systèmes planétaires et de confronter les données des géochimistes aux observations des astrophysiciens.

Classiquement, il existe quatre approches complémentaires permettant d'obtenir des informations sur la chronologie de la formation du système solaire : (i) les datations isotopiques des échantillons extraterrestres (principalement les météorites), reflétant différents stades d'évolution de la nébuleuse, (ii) les modélisations des processus physiques et chimiques mis en jeu lors de la formation du système solaire et (iii) les études pétrographiques et expérimentales visant à reproduire en laboratoire les conditions de formation des premiers solides et (iv) les observations astrophysiques. La combinaison de ces quatre approches doit permettre de répondre à tout un ensemble de questions fondamentales, comme par exemple :

- Combien de temps dure l'accrétion du Soleil?
- En combien de temps peut-on accréter et différencier un planétésimal?
- Est-il possible d'homogénéiser la répartition de la matière injectée par une supernova dans le disque d'accrétion? Et si oui, en combien de temps?
- Quels sont les processus responsables de la formation des premiers solides? ...

De nombreux articles de synthèse très complets touchant aux problématiques de la chronologie de la formation du Système Solaire au sens large, l'origine des radioactivités éteintes la formation des premiers solides ou la différenciation des planétésimaux ont été publiés (Wasserburg, 1987; Podosek et Swindle, 1988; Tilton, 1988; Wadhwa et Russell, 2000; Goswami et Vanhala, 2000; McKeegan et Davis, 2003; Kita et al., 2005; Chaussidon et Gounelle, 2006; Chaussidon, 2006; Krot et al., 2009; Kleine et al., 2009). Ce chapitre est axé sur l'apport fondamental des âges géochronologiques mesurés dans les météorites pour notre connaissance de la chronologie de la formation du jeune système solaire tout en mettant l'accent sur les questions importantes restant en suspend.

2. Théorie de la datation isotopique

2.1. La radioactivité

Les âges géochronologiques reposent sur la radioactivité naturelle des minéraux. Il existe plusieurs types de désintégrations radioactives ainsi qu'un grand nombre d'isotopes radioactifs (voir Faure, 1986; Albarède, 2003 pour une présentation détaillée des principes de datation en géologie). Cependant, dans tous les cas, la radioactivité est un processus de désintégration nucléaire d'un iso-

tope père en un isotope fils qui est indépendant de tous les processus physiques et chimiques que peuvent subir les roches, ce qui en fait potentiellement un chronomètre fiable. Le taux de désintégration (λ) est la probabilité qu'un élément radioactif se désintègre par unité de temps et est donc propre à chaque isotope radioactif. Il est défini par :

$$\lambda = dN / (N \times dt)$$

L'intégration de cette équation donne la loi de la radioactivité :

$$N = N_0 \times e^{-\lambda t}$$

avec N le nombre d'atomes de l'isotope père radioactif subsistant au temps t et N_0 le nombre d'atomes au temps t = 0. Le taux de désintégration a une dimension en 1/t. Par commodité, on emploie souvent la notion de demi-vie ($T_{1/2}$) à la place de λ . Elle correspond au temps nécessaire à la désintégration de la moitié du nombre d'atomes pères radioactifs de départ :

$$T_{1/2} = \text{Ln}(2) / \lambda$$

Classiquement, on distingue les radioactivités à longue période des radioactivités à courte période qui si elles ont existé au début de l'histoire du système solaire, il y a 4,56 Ga, sont aujourd'hui considérées comme éteintes du fait de leurs courtes demi-vies. Ces deux types de radioactivités sont intéressantes et permettent d'obtenir des informations différentes sur le paramètre temps : les radioactivités à longue période fournissent des datations, c'est-à-dire qu'elles permettent de déterminer des âges absolus, tandis que les radioactivités à courte période donnent des durées, c'est-à-dire des âges relatifs.

Tableau 1 : Liste des radioactivités éteintes et à longue période utilisées en cosmochimie.

Courte période				Longue période	
système	$T_{1/2}$ (Ma)	Rapport initial [†]	Référence	système	$T_{1/2}$ (Ga)
⁷ Be- ⁷ Li	53 jours	⁷ Be/ ⁹ Be = 6×10^{-3}	Chaussidon et al., 2006	⁴⁰ K- ⁴⁰ Ar	1,25
⁴¹ Ca- ⁴¹ K	0,1	⁴¹ Ca/ ⁴⁰ Ca = $1,5 \times 10^{-8}$	Srinivasan et al., 1994	⁸⁷ Rb- ⁸⁷ Sr	48,8
²⁶ Al- ²⁶ Mg	0,73	²⁶ Al/ ²⁷ Al = 5×10^{-5}	Lee et al., 1976	¹⁸⁷ Re- ¹⁸⁷ Os	41,6
⁶⁰ Fe- ⁶⁰ Ni	2,62	⁶⁰ Fe/ ⁵⁶ Fe < $1,6 \times 10^{-6}$	Tachibana et Huss, 2003 Mostéfaoui et al., 2004 Rugel et al., 2009	²³² Th- ²⁰⁸ Pb	13,9
¹⁰ Be- ¹⁰ B	1,38	¹⁰ Be/ ⁹ Be = $9,5 \times 10^{-4}$	McKeegan et al., 2000 Chmeleff et al., 2010	²³⁵ U- ²⁰⁷ Pb	0,704
⁵³ Mn- ⁵³ Cr	3,7	⁵³ Mn/ ⁵⁵ Mn = $3,7 \times 10^{-4}$	Birck et Allègre, 1985	²³⁸ U- ²⁰⁶ Pb	4,468
¹⁰⁷ Pd- ¹⁰⁷ Ag	6,5	¹⁰⁷ Pd/ ¹⁰⁸ Pd = 2×10^{-5}	Kelly et Wasserburg, 1978		
¹⁸² Hf- ¹⁸² W	9	¹⁸² Hf/ ¹⁸⁰ Hf = $1,6 \times 10^{-4}$	Quitté et Birck, 2004		
¹²⁹ I- ¹²⁹ Xe	15,9	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I = 1×10^{-4}	Jeffery et Reynolds, 1961		

[†] La valeur de ces rapports initiaux ainsi que le concept même de l'existence d'un rapport initial homogène à un temps 0 sont très discutés et sont la clé de l'interprétation chronologique qui peut être faite ou non à partir de ces radioactivités éteintes. C'est le cas notamment pour le système ⁵³Mn-⁵⁴Cr qui semble être très perturbé dans les CAIs.

Historiquement, les radioactivités à longue période ont été les premières utilisées pour déterminer les âges des météorites et de leurs composants (Patterson, 1956; Tatsumoto et al., 1973; Chen et Tilton, 1976; Minster et al., 1982). Ces études pionnières donnent des âges compris entre 4,5 et 4,6 Ga pour les différents types de météorites. Cependant, les faibles taux de désintégration de ces radioactivités limitent la précision des mesures, empêchant ainsi l'élaboration d'une chronologie fine. L'existence des radioactivités éteintes lors de la formation du système solaire a été initialement mise en évidence par la mesure d'excès de ^{129}Xe produit par la décroissance de ^{129}I dans des météorites (Jeffery et Reynolds, 1961). Par la suite, l'existence de plusieurs autres radioactivités éteintes a été mise en évidence, e.g. ^{26}Al (Lee et al., 1976). La liste des principales radioactivités à courte et longue période utilisées en cosmochimie est donnée dans le tableau 1.

2.2. Radioactivités à longue période - Les âges absolus

Pour obtenir un âge absolu, on mesure dans l'échantillon à dater les quantités d'isotopes fils (F) et d'isotopes père (P). Si le système est resté isotopiquement fermé depuis la formation de l'échantillon, on peut écrire le bilan de masse suivant :

$$P_0 - P = F - F_0$$

Dans cette équation, P_0 et F_0 , les quantités d'élément père et fils à $t = 0$, sont des inconnues que l'on ne peut pas mesurer dans l'échantillon actuellement. En revanche, on peut exprimer P_0 en fonction de ce qui est mesurable en utilisant la loi de la radioactivité. On obtient :

$$F - F_0 + P \times (e^{\lambda t} - 1)$$

En pratique cette équation est ensuite transformée en divisant tous les termes par le nombre d'atomes d'un isotope stable (c'est-à-dire ni radiogénique, ni radioactif) de l'élément fils, pour faire apparaître des rapports isotopiques et élémentaires qui sont plus facilement mesurables par spectrométrie de masse. On obtient ainsi l'équation isochrone qui dans le cas par exemple du système $^{87}\text{Rb}/^{87}\text{Sr}$ ($T_{1/2} = 48,8 \text{ Ma}$) s'écrit :

$$(^{87}\text{Sr} / ^{86}\text{Sr}) = (^{87}\text{Sr} / ^{86}\text{Sr})_0 + (^{87}\text{Rb} / ^{86}\text{Sr}) \times (e^{\lambda t} - 1)$$

Cette équation peut être résolue graphiquement si dans un même échantillon il est possible de mesurer plusieurs fractions ayant des rapports élémentaires Rb/Sr différents. Si le système est resté fermé depuis la formation de l'échantillon, les rapports isotopiques du fils doivent s'aligner sur une droite isochrone en fonction des rapports élémentaires, dont la pente ($e^{\lambda t} - 1$) donne accès à l'âge

et l'ordonnée à l'origine au rapport initial du fils lors de la formation de l'échantillon.

2.3. Radioactivités à courte période - Les âges relatifs

Dans le cas de figure d'une radioactivité éteinte, on fait l'approximation qu'aujourd'hui la concentration de l'élément père dans un échantillon formé il y a 4,5 Ga est égale à zéro, $P = 0$. L'équation de bilan de masse se simplifie pour devenir :

$$F = F_0 + P_0$$

De la même façon que précédemment, on peut faire apparaître des rapports isotopiques, ce qui donne par exemple dans le cas du système ^{26}Al - ^{26}Mg ($T_{1/2} = 0,73 \text{ Ma}$) le bilan de masse suivant:

$$(^{26}\text{Mg} / ^{24}\text{Mg}) = (^{26}\text{Mg}_0 / ^{24}\text{Mg}) + (^{26}\text{Al}_0 / ^{24}\text{Mg})$$

L'équation isochrone apparaît en introduisant le rapport isotopique du père dans l'équation ci-dessus :

$$(^{26}\text{Mg} / ^{24}\text{Mg}) = (^{26}\text{Mg} / ^{24}\text{Mg})_0 + (^{26}\text{Al} / ^{27}\text{Al})_0 \times (^{27}\text{Al} / ^{24}\text{Mg})$$

Le temps n'apparaît pas directement mais il est présent au travers du rapport $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$. De la même façon que pour les radioactivités à longue période, cette équation peut être résolue graphiquement. Ainsi la pente, $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$, donne accès à la composition isotopique initiale du père lors de la formation de l'échantillon et l'ordonnée à l'origine à la composition isotopique du fils lors de la formation de l'échantillon.

En utilisant la loi de décroissance radioactive, on s'aperçoit que si deux échantillons A et B sont formés à partir d'un même réservoir homogène, i.e. s'ils ont les mêmes rapports $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})$ à $t = 0$, alors il est possible d'établir une chronologie relative entre leurs âges de formation t_A et t_B :

$$(^{26}\text{Al} / ^{27}\text{Al})_A / (^{26}\text{Al} / ^{27}\text{Al})_B = e^{\lambda \times \Delta t} \text{ avec } \Delta t = t_A - t_B$$

Ainsi, il est en théorie possible d'établir une chronologie relative entre plusieurs échantillons issus d'un même réservoir.

2.4. Limites et incertitudes liées aux datations isotopiques

Pour obtenir un âge absolu ou relatif à partir d'un échantillon, il est indispensable que ses différentes composantes soient cogénétiques et surtout qu'il soit resté en système fermé depuis sa formation pour l'isotope père et l'isotope fils utilisés pour la datation. Au delà de ces impératifs valables pour tous les systèmes isotopiques et tous les contextes géologiques, plusieurs autres problèmes

spécifiques au contexte de la formation du système solaire doivent être mentionnés.

La datation de minéraux condensés à haute température ou cristallisés à partir d'un liquide magmatique n'est possible que si le système est resté ouvert suffisamment longtemps, i.e. à haute température, pour permettre une homogénéisation isotopique par diffusion dans le liquide ou le solide. Cette homogénéisation est indispensable pour que les différentes phases minérales cristallisées aient la même composition isotopique initiale et s'alignent sur une isochrone. Si en pratique cette condition est en général satisfaite dans le cas des processus magmatiques terrestres ce n'est en revanche pas forcément le cas, par exemple, pour les processus de fusion très brefs de type «flash heating», envisagés pour la formation des chondres. Dans ce cas de figure, il est tout à fait envisageable que certains éléments chimiques contenus dans les précurseurs solides n'aient pas eu le temps d'être homogénéisés isotopiquement, e.g. les isotopes de l'oxygène (Chaussidon et al., 2008).

La température de fermeture isotopique d'un élément caractérise la température en deçà de laquelle le système est considéré comme étant clos, c'est-à-dire que la diffusion est trop lente pour permettre une homogénéisation isotopique. Cette température de fermeture est variable suivant l'élément considéré et peut varier de plusieurs ordres de grandeurs entre les différents éléments (Richter et al., 2003). Derrière ce paramètre, se trouve en filigrane la question cruciale suivante : que peut-on espérer dater? En effet, si pour les CAIs et les chondres, formés dans un contexte nébulaire, les vitesses de refroidissement déduites des expérimentations sont très grandes, i.e. de 0,1 à 10 K/heure pour les CAIs (e.g. Stolper et Paque, 1986) jusqu'à plusieurs milliers de degrés par heure pour les chondres (e.g. Lofgren, 1989; Radomsky et Hewins, 1990), ce n'est évidemment pas le cas pour les processus magmatiques et métamorphiques se produisant sur les corps parents des météorites. Ainsi, si il est possible d'obtenir l'âge de cristallisation dans la nébuleuse d'une CAI ou d'un chondre issu d'une chondrite de type 3, il ne sera possible d'obtenir qu'un âge de métamorphisme pour une chondrite ayant subi un épisode de métamorphisme sur son corps parent ou qu'un âge de refroidissement pour une météorite différenciée.

Les radioactivités éteintes permettent potentiellement d'établir une chronologie relative entre plusieurs échantillons à la condition qu'ils proviennent d'un même réservoir dans lequel les isotopes père et fils sont répartis de façon homogène. Appliquée au contexte de formation du système solaire, cette condition nécessite par exemple que les chondres et les CAIs aient été cristallisés à partir d'un même réservoir homogène. En d'autres termes, si on prend l'exemple du système isotopique ^{26}Al - ^{26}Mg qui est le plus étudié en cosmochimie, celui-ci aura valeur de chronomètre pour la formation des CAIs et des chondres, si et seulement si ^{26}Al et les isotopes du Mg étaient répartis de façon homogène dans la nébuleuse solaire au moment de leur formation. Cette condition est la clé de

voûte de toute chronologie relative basée sur les radioactivités éteintes.

Au delà de ces problèmes spécifiques aux météorites, ils existent des limitations analytiques aux datations isotopiques. La précision des mesures isotopiques (correction des blancs, statistique de comptage...) limite fortement la qualité d'une mesure. Par exemple, dans le cas du système U/Pb la précision peut difficilement être meilleure que $\sim 0,1-0,2$ Ma (Amelin et al., 2002). D'autre part, dans certains cas, une erreur non négligeable sur l'âge peut provenir de l'incertitude avec laquelle la constante de désintégration est connue, avec des conséquences d'autant plus grandes que les âges sont anciens. Un exemple est celui du système $^{176}\text{Lu}/^{176}\text{Hf}$ (demi-vie d'environ 35,7 Ma) dont la constante de désintégration montre des variations de l'ordre de $\sim 4\%$ (Begemann et al., 2001). Récemment, la demi-vie du ^{60}Fe a été réévaluée et augmentée de $\sim 175\%$ (2,62 Ma contre 1,5 Ma précédemment, Rugel et al., 2009).

Il est donc important de garder à l'esprit que les âges isotopiques reposent sur un certain nombre d'hypothèses et de conditions que ne sont pas toujours évidentes à tester et valider. A ce titre, les différentes données chronologiques provenant des différents systèmes isotopiques n'ont pas tous la même robustesse et ne sont en aucun cas gravées dans le marbre.

3. Quels processus peut-on dater?

3.1. Fractionnement géochimiques père/fils

Les différents constituants des chondrites (CAIs, chondres ...) et des météorites différenciées (achondrites, météorites de fer, pallasite ...) ont subi au cours de leur formation divers processus physiques et chimiques à haute température ayant conduit à des fractionnements chimiques entre les éléments. Afin de pouvoir obtenir un âge isotopique, il faut qu'un fractionnement géochimique entre un isotope père et son isotope fils ait eu lieu. C'est le cas par exemple avec une datation isotopique utilisant le système $^{26}\text{Al}-^{26}\text{Mg}$ dans un chondre pour lequel les constituants (olivine, pyroxène, mésostase...) ont subi un fractionnement géochimique de l'Al par rapport au Mg au cours de la cristallisation. Trois processus majeurs peuvent amener de tels fractionnements géochimiques lors de l'évolution précoce du système solaire et ainsi être datés isotopiquement :

- La condensation qui induit un fractionnement entre le gaz et le solide et dont l'ampleur dépend de la température de condensation et du caractère volatil (condense à basse température) ou réfractaire (condense à haute température) de l'élément considéré.

- La fusion/cristallisation qui induit des fractionnements entre le liquide et les solides et

dont l'ampleur va dépendre des conditions de réaction (température, composition chimique, vitesse de cristallisation, conditions d'oxydo-réduction ...) et du comportement chimique de l'élément considéré suivant son affinité avec la phase solide (compatible) ou la phase liquide (incompatible).

- La différenciation métal-silicate-sulfure qui induit des fractionnements entre les liquides silicatés, métalliques et sulfurés en fonction du caractère lithophile (affinité avec les liquides silicatés), sidérophile (affinité avec les liquides métalliques) ou chalcophile (affinité avec les liquides sulfurés) de l'élément considéré.

Les processus survenus à basse température, tels que l'accrétion des chondrites, ne peuvent pas être datés à l'aide des chronomètres isotopiques car ils n'ont pas entraîné de fractionnements géochimiques suffisants.

3.2. Isochrones roches totales versus isochrones internes

Suivant la méthode de spectrométrie de masse employée pour mesurer les compositions isotopiques, on obtient des isochrones différentes qui informent sur l'âge de processus différents.

Avec les spectromètres de masse de type ICP-MS ou TIMS, les mesures peuvent être conduites sur des objets complets ou des fragments d'objets. Dans ce cas de figure les isochrones obtenues à partir de plusieurs fragments d'un même objet sont des isochrones roche totale et renseignent sur l'âge de formation du

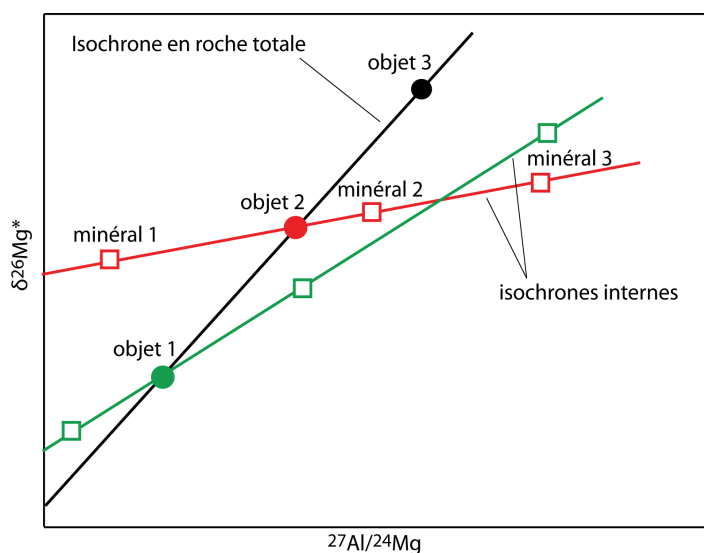


Fig. 1 : Illustration de la différence entre une isochrone en roche totale et une isochrone interne dans le cas du système isotopique ^{26}Al - ^{26}Mg . Les isochrones internes sont déterminées à partir de la mesure des compositions isotopiques de plusieurs minéraux d'un même objet tandis que les isochrones en roches totales correspondent à la mesure des compositions isotopiques de plusieurs fragments d'un objet.

ou des objets, c'est-à-dire le moment où les précurseurs des objets se sont assemblés (Fig. 1). On date ainsi le fractionnement géochimique de ces objets à partir de la nébuleuse.

Les instruments d'analyse *in situ*, tels que les sondes ioniques mais aussi certaines ICP-MS permettent d'effectuer des mesures dans les minéraux des objets et renseignent ainsi sur le dernier épisode thermique subi par l'objet, c'est-à-dire le dernier épisode de fractionnement géochimique subi par l'objet, e.g. un fractionne-

ment lié à la cristallisation de minéraux (Fig. 1). On parle ici d'isochrone interne ou d'isochrone minérale. Celles-ci peuvent indiquer des âges très différents de ceux indiqués par les isochrones en roche totale.

4. La question de l'homogénéité de la distribution des radioactivités éteintes

L'interprétation chronologique qui peut être faite à partir des variations de compositions isotopiques d'une radioactivité éteinte repose sur l'hypothèse très forte que cette radioactivité éteinte était, à un certain temps 0, répartie de façon homogène dans le disque d'accrétion. Même si classiquement la plupart des travaux sur la chronologie de la formation du système solaire appliquent cette hypothèse d'homogénéité des radioactivités éteintes (e. g. Kita et al., 2005), il est possible de bâtir une chronologie relative en faisant l'hypothèse d'une distribution hétérogène (Gounelle et Russell, 2005).

La question de l'homogénéité de la distribution des radioactivités éteintes est en fait étroitement liée à l'origine nucléosynthétique de ces radioactivités éteintes. Les radioactivités éteintes ont soit une origine locale par irradiation du soleil jeune (e.g. Lee, 1978; Lee et al., 1998; Shu et al., 1996, 1997; Gounelle et al., 2001, 2006; Leya et al., 2003; Chaussidon et Gounelle, 2006), soit elles ont une origine externe via un ensemencement de la nébuleuse par de la matière provenant de l'explosion d'une supernova et/ou d'une étoile massive proche (e.g. Cameron et al., 1977, 1995; Wasserburg et al., 1994; Goswami et al., 2000, 2005; Busso et al., 2003; Meyer et al., 2000, 2003; Ouellette et al., 2005). Ces deux origines pour les radioactivités éteintes sont couramment associées aux deux grands modèles de formation des chondres : (i) le modèle du vent X pour l'origine par irradiation (Shu et al., 1996, 1997 2001) et (ii) le modèle par ondes de choc pour l'origine par injection (Desch et Connolly, 2002; Ciesla et Hood, 2002). Comme nous allons le voir dans la suite, aucune des deux origines proposées ne permet d'expliquer l'ensemble des observations et des mesures de radioactivités éteintes.

4.1. Formation des radioactivités éteintes par irradiation par le jeune Soleil

Le modèle du vent X développé par Shu et ses collaborateurs (Shu et al., 1996, 1997, 2001; Lee et al., 1998; Gounelle et al., 2001) est basé sur (i) les observations astrophysiques qui indiquent que les étoiles jeunes dans leur phase T-Tauri présentent des phases d'activité X très intenses caractérisées par de forts pulses de rayons X (e.g. Feigelson et Montmerle, 1999; Montmerle, 2001; Glassgold et al., 2005), (ii) les modèles théoriques des interactions entre le champ magnétique d'une étoile et son disque d'accrétion (Shu et al., 1996) et (iii) les modèles théoriques d'irradiation qui montrent que les radioactivités éteintes détectées dans les CAIs (^7Be , ^{10}Be , ^{26}Al , ^{41}Ca , ^{53}Mn) peuvent

être produite par irradiation dans le cadre du modèle de vent X avec des abondances proches, i.e. à un facteur 10 près, des valeurs des CAIs (Lee et al., 1998; Gounelle et al., 2001, 2006; Leya et al., 2003; Chaussidon et Gounelle, 2006). Le modèle du vent X prédit qu'une partie du gaz et de la poussière s'accrétant vers le Soleil sous l'effet des pulses produits par la contraction du champ magnétique peut être entraînée vers la zone de reconnexion à proximité du Soleil (~ 0,06 UA) où elle est irradiée par des particules énergétiques de ^1H , ^4He et ^3He , avant d'être rejetée périodiquement à des distances as-

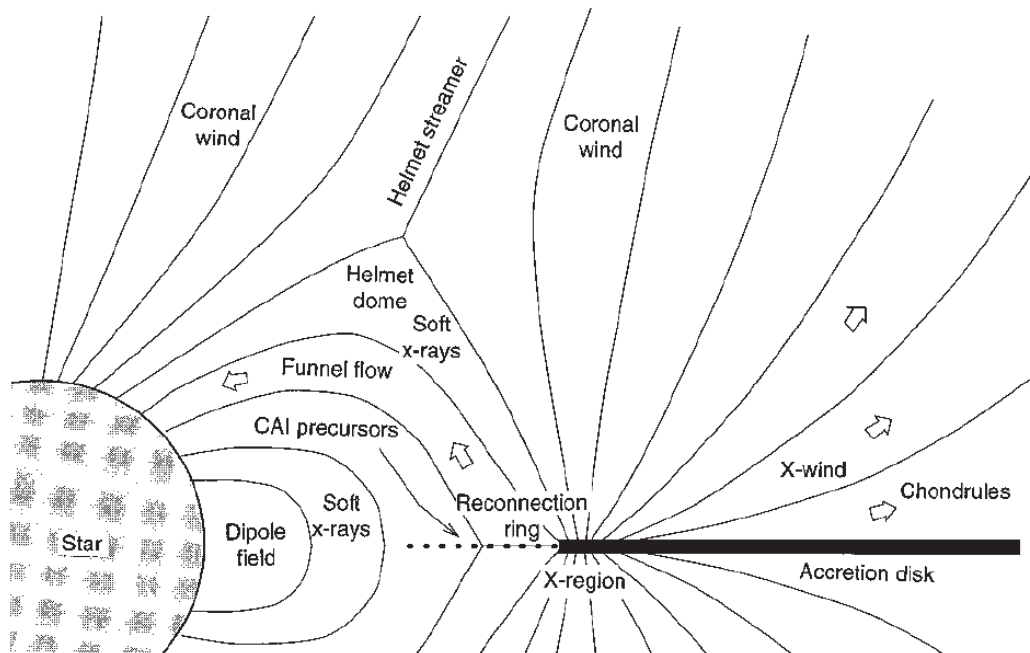


Fig. 2 : Schéma du modèle de vent X. Il permet d'expliquer la formation des CAIs et des chondres mais également l'origine locale par irradiation des radioactivités éteintes (Shu et al., 1997, 2001). Les CAIs se forment dans une région pauvre en gaz, la zone de reconnexion où elles sont exposées à l'irradiation par des particules très énergétiques émises par le Soleil. Les chondres sont formés simultanément dans une zone plus riche en gaz située proche de la région X ce qui les protège de l'irradiation selon divers degrés, ce qui explique les variations d'abondances en radioactivités éteintes. Les CAIs et les chondres sont ensuite transportés par le vent X jusqu'à des distances astéroïdales.

téroïdales (1-20 UA) sous l'effet conjugué des fluctuations du champ magnétique et du vent X (Fig. 2, Shu et al., 1996, 1997, 2001). Dans ce modèle, les précurseurs des CAIs et des chondres sont donc irradiés avant d'être assemblés et fondus pour former des CAIs et des chondres.

Dans ce modèle, l'abondance des différentes radioactivités éteintes dans chaque CAI ou chondre dépend de plusieurs paramètres tels que la durée d'irradiation, l'intensité de l'irradiation, i.e. la distance entre la cible et la source ainsi que les éventuels écrans, ou la composition chimique de la cible. Dans ce cas de figure, il est évident que l'hypothèse d'une homogénéité des radioactivités éteintes à un temps 0 devient difficile à satisfaire et qu'à ce titre il ne semble pas possible de construire une chronologie relative de formation des différents constituants des chondrites. Accessoirement, cela pourrait permettre d'expliquer certaines incohérences chronologiques observées entre

les différentes radioactivités éteintes. D'autre part, des modèles théoriques d'irradiation ont montré que celle-ci n'était pas suffisamment efficace pour produire les abondances de radioactivités éteintes (notamment ^{26}Al) mesurées dans les CAIs dans l'ensemble de la matière du disque d'accrétion interne (Duprat et Tatischeff, 2007; Fitoussi et al., 2008).

Néanmoins, plusieurs observations viennent conforter la véracité du modèle de vent X et une origine par irradiation de certaines radioactivités éteintes. On peut citer notamment la découverte de la radioactivité éteinte du ^{10}Be dans les CAIs, dont le noyau n'est produit efficacement que par des réactions de spallation et non pas lors de la nucléosynthèse stellaire (Fig. 3a, McKeegan et al., 2000; Sugiura et al., 2001; MacPherson et al., 2003) ou encore la découverte d'anomalies de ^7Li dans une CAI, probablement dues à la décroissance radioactive in situ de ^7Be et qui suggèrent fortement l'existence d'un lien temporel étroit entre l'irradiation et la formation des CAIs (Fig. 3b, Chaussidon et al., 2006). Les variations isotopiques du Li et du B, produits de façon importante par les processus d'irradiation, dans les chondres suggèrent que leurs précurseurs contiennent une proportion signifi-

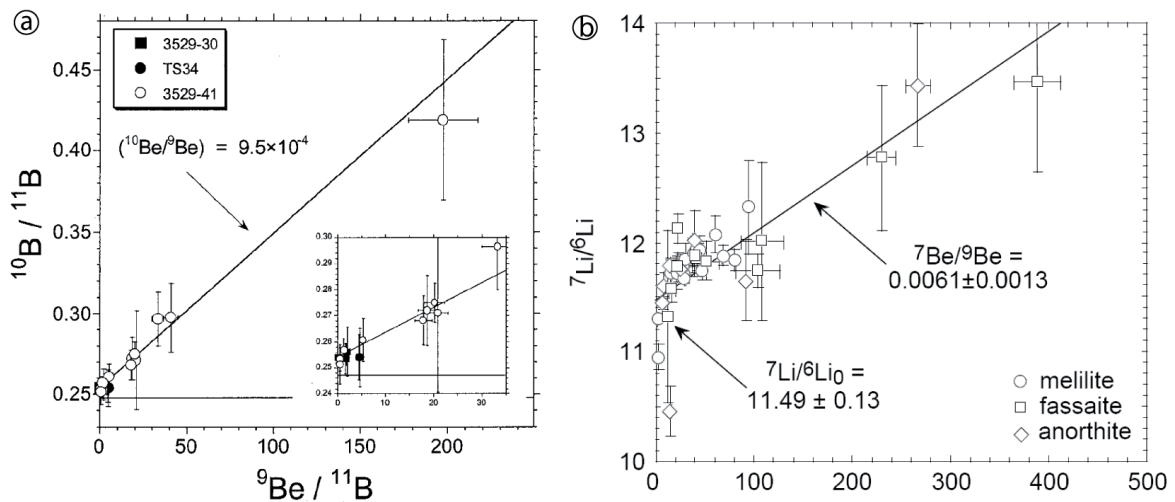


Fig. 3 : a) droite isochrone déterminée pour le système isotopique ^{10}Be - ^{10}B dans une CAI d'Allende (McKeegan et al., 2000). b) droite isochrone déterminée pour le système isotopique ^7Be - ^7Li dans une CAI d'Allende (Chaussidon et al., 2006).

ficative de produits d'irradiation (Chaussidon et Robert, 1995, 1998). On peut également souligner que la découverte de fragments de CAIs et de chondres dans les échantillons de la comète 81P/Wild 2 avait été prédit par le modèle du vent X (McKeegan et al., 2006; Brownlee et al., 2006; Zolensky et al., 2006). Ceci dit, d'autres mécanismes sont à même d'expliquer la présence de CAIs et de chondres dans des échantillons cométaires (e.g. Boss, 2004; Ciesla, 2007).

En revanche, le modèle de formation des radioactivités éteintes par irradiation est incompatible avec les arguments favorables à l'homogénéité de certaines radioactivités éteintes (notamment ^{26}Al), les âges absolus des CAIs et des chondres d'Allende (Connelly et al., 2008) ainsi qu'avec l'existence du ^{60}Fe qui ne peut pas être produit par irradiation.

4.2. Injection des radioactivités éteintes à partir d'une ou plusieurs étoiles massives

Le modèle d'ondes de choc prévoit que les CAIs et les chondres soient formés dans la partie interne du disque d'accrétion (entre 1 et 4 UA) sous l'effet de brefs et répétés épisodes de chauffe provoqués par des ondes de choc (Fig. 4, Desch et Connolly, 2002; Ciesla et Hood, 2002).

Dans ce modèle de formation des chondres et des CAIs, les radioactivités éteintes sont synthétisées au cours de l'explosion d'une ou plusieurs supernovae et/ou à partir d'une ou plusieurs étoiles massives à proximité du futur système solaire et sont injectées dans le nuage moléculaire présolaire ou le disque d'accrétion (Cameron et al., 1977, 1995; Wasserburg et al., 1994; Goswami et al., 2000, 2005; Busso et al., 2003; Meyer et al., 2000, 2003; Ouellette et al., 2005; Gounelle et al., 2009). Dans ce cas de figure, les radioactivités éteintes sont rapidement homogénéisées, e.g. 30 000 ans pour homogénéiser l' ^{26}Al \sim 10% (Boss, 2007). Cela implique que les radioactivités éteintes peuvent être utilisées comme chronomètre pour établir une chronologie de formation du jeune système solaire.

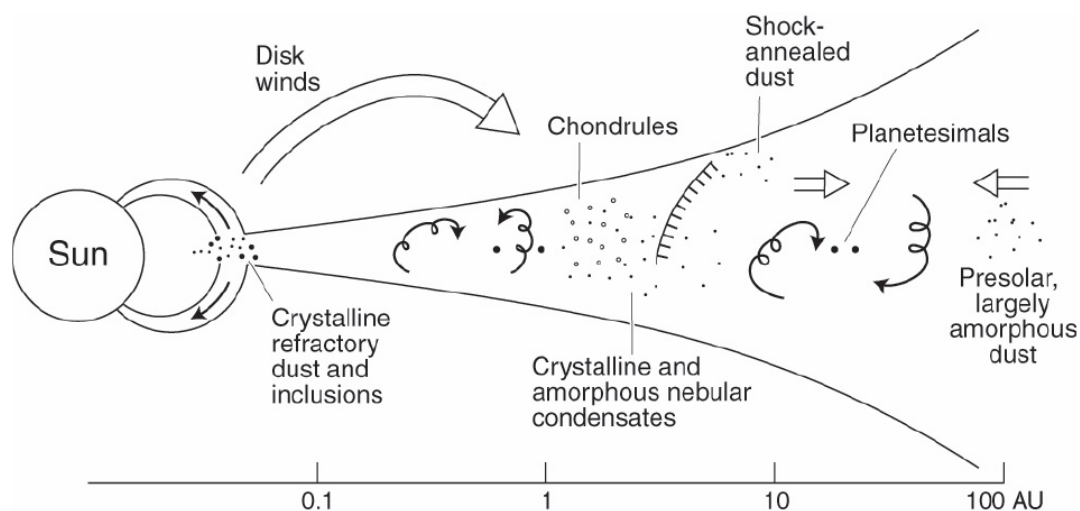


Fig. 4 : Schéma du modèle d'ondes de choc de formation des CAIs et des chondres avant leur accrétion en planétésimaux (Scott et Krot, 2005).

Certaines observations vont dans le sens d'une injection des radioactivités éteintes dans le disque d'accrétion ou dans le nuage moléculaire. Parmi elles, on peut citer une preuve indiscutable qui est la présence de ^{60}Fe dans les météorites primitives (Fig. 5a, Birck et Lugmair, 1988; Tachibana et Huss, 2003; Mostéfaoui et al., 2004). Plusieurs observations qui peuvent laisser penser que l' ^{26}Al était réparti de façon homogène dans le disque d'accrétion vont également dans le sens d'une injection des radioactivités éteintes : (i) existence d'un rapport $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ canonique dans les CAIs

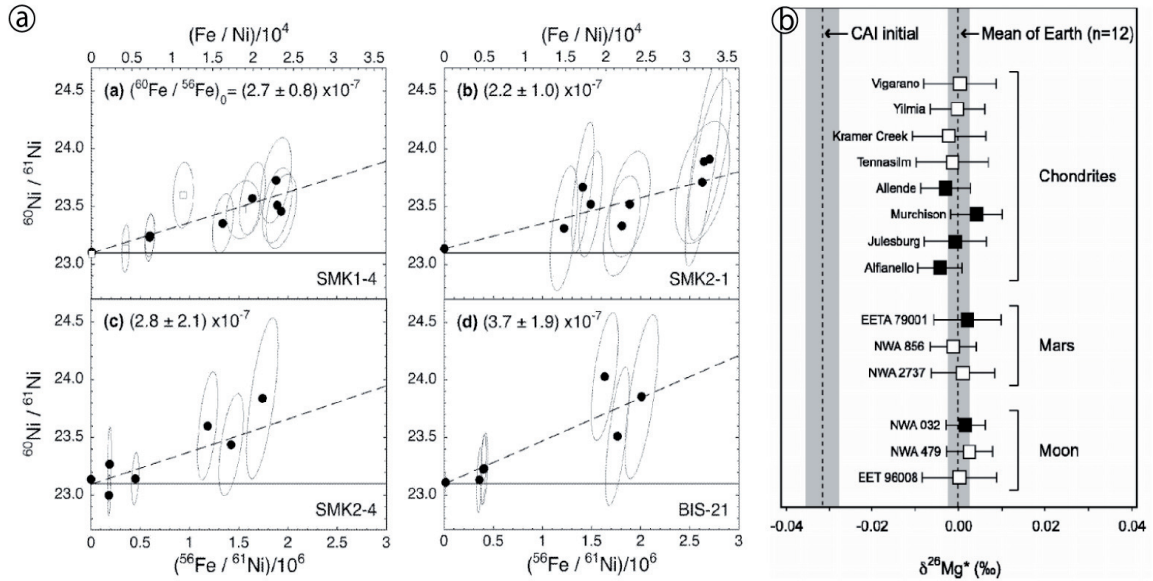


Fig. 5 : a) droites isochrones déterminées pour le système isotopique ^{60}Fe - ^{60}Ni dans des chondres de Bis-hunpur et Semarkona (Tachibana et al., 2003). b) valeurs de $\delta^{26}\text{Mg}^*$ dans des échantillons de la Terre, Lune, Mars et de chondrites (Thrane et al., 2006).

(article de synthèse de MacPherson et al., 1995), (ii) absence d'anomalie des isotopes du Mg dans des échantillons de chondrites, de Mars, de la Lune et de la Terre qui suggère une large distribution de ^{26}Al dans le disque d'accrétion interne (Fig. 5b, Thrane et al., 2006). Cependant, aucune de ces observations ne permet d'affirmer avec certitude que ^{26}Al était bien réparti de façon homogène dans le système solaire interne.

Le timing et le mécanisme d'injection des radioactivités éteintes dans le jeune système solaire demeurent très controversés. A titre d'exemple, il a été proposé (i) que ^{26}Al ait été injecté dans le nuage moléculaire protosolaire par le vent stellaire d'une étoile massive avant que l'explosion d'une supernova injecte le ^{60}Fe (Bizzarro et al., 2007, dont l'étude est néanmoins très controversée), (ii) que ^{26}Al et le ^{60}Fe ont été produits localement dans la région de formation du Soleil par l'explosion d'une ou plusieurs supernova avant d'être injectés dans le nuage moléculaire protosolaire (Gounelle et al., 2009), ou encore (iii) que l'abondance solaire de ^{53}Mn pouvait provenir de l'évolution géochimique galactique (Huss et al., 2009). Toutes ces controverses autour du modèle d'injection sont nées du fait qu'il n'existe pas de processus simple avec l'explosion d'une unique supernova qui puisse expliquer les abondances de toutes les radioactivités éteintes.

5. Chronologie absolue de la formation des premiers solides du Système Solaire

Le chronomètre le plus utilisé pour dater de façon absolue la formation du Système Solaire est le système U-Pb (Tableau 1). Afin d'obtenir la meilleure précision possible sur les âges de cristallisation, les variations du couple $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ et $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ sont utilisées plutôt que l'approche

classique U-Pb.

L'âge absolu Pb-Pb de formation des CAIs a exclusivement été déterminé dans des CV, en raison de leur abondance et de leur taille dans ces chondrites. Bien que l'âge moyen trouvé soit souvent considéré comme étant le début de la formation du Système Solaire, il n'existe pas de consensus quant à la valeur exact de cet âge, qui varie entre ~ 4567 et $\sim 4558,5$ Ma (Amelin et al., 2002, 2006; Bouvier et al., 2007, 2008; Jacobsen et al., 2008). La première étude montrant une différence d'âge absolu significative entre des CAIs et des chondres donnait un âge absolu de $4567,17 \pm 0,70$ Ma pour une CAI de type B de la chondrite CV Efremovka et un âge absolu de $4564,66 \pm 0,63$ Ma pour un échantillonnage de chondre de la chondrite CR Acfer 059 (Fig. 6, Amelin et al., 2002). Le fait qu'il s'agisse d'échantillons provenant de deux classes de météorites différentes laissait planer le doute quant à l'existence réelle d'une différence d'âge entre les CAIs et les chondres. Par la suite Amelin et al., (2006) ont amélioré la précision de l'âge des CAIs d'Efremovka avec un âge de $4567,11 \pm 0,16$

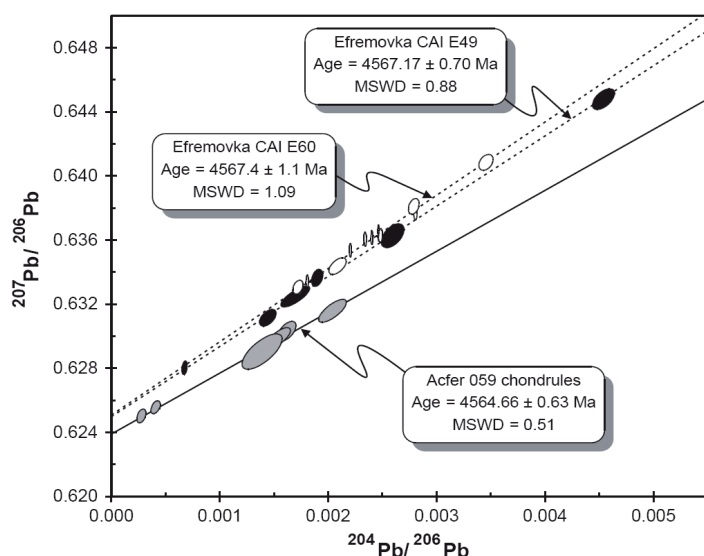


Fig. 6 : Droites isochrones Pb-Pb donnant les âges absolus de cristallisation d'une CAI d'Efremovka (CV) et d'un échantillonnage de chondre d'Acfer 059 (CR). Ces résultats montrent une différence d'âges de cristallisation de $2,5 \pm 1,2$ Ma entre la CAI et les chondres (Amelin et al., 2002).

Ma. Finalement, la première différence d'âge significative entre CAIs et chondres d'une même classe de chondrite montre que les chondres de la chondrite CV Allende sont plus jeune de $1,66 \pm 0,48$ Ma par rapport aux CAIs d'Efremovka (Connelly et al., 2008). Si l'on considère l'ensemble des âges absolus de chondres des chondrites CV ($4565,45 \pm 0,45$ Ma, Connelly et al., 2008), des chondrites CR ($4564,66 \pm 0,63$ Ma, Amelin et al., 2002) et des chondrites CB ($4562,7 \pm 0,6$ Ma, Krot et al., 2005), on peut considérer que la formation

des chondres a débuté environ 1 Ma après celle des CAIs et qu'elle s'est prolongée sur environ 3 Ma.

Il est important de noter que très récemment l'invariabilité du rapport $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ dans les météorites, i.e. 137,88, utilisé dans la systématique de datation Pb-Pb a été remise en question suite à la découverte de l'existence de variations de ce même rapport en fonction du rapport curium/uranium dans les CAIs et qui sont imputées à la production de ^{235}U par décroissance de la radioactivité à courte période ^{247}Cm ($T_{1/2} = 15,6$ Ma). La négligence de cette variabilité du rapport $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ peut

être la cause d'incertitudes sur les âges Pb-Pb pouvant atteindre dans certains cas plusieurs millions d'années (Brennecka et al., 2010).

6. Chronologie relative de la formation du Système Solaire

6.1. Chronologie relative de formation des premiers solides fondée sur la radioactivité éteinte de l' ^{26}Al

Depuis la découverte par Lee et al., (1976) d'excès de ^{26}Mg dus à la décroissance radioactive *in situ* d' ^{26}Al dans des CAIs d'Allende et en raison de sa demi-vie, le système isotopique ^{26}Al - ^{26}Mg a été abondamment étudié dans les CAIs, les chondres et les météorites différenciées. Cela en fait la radioactivité éteinte la mieux documentée et donc potentiellement, la plus propice pour établir une chronologie fine de formation des premiers solides du Système Solaire.

Dans une étude de synthèse compilant l'ensemble des rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) mesurés par sonde ionique, i.e. isochrones internes, dans des CAIs avant 1995, MacPherson et al. (1995) ont montré que la majorité des CAIs présente des rapports de $\sim 5 \times 10^{-5}$, appelé «rapport canonique» et qui est couramment considéré comme le rapport initial du Système Solaire (Fig. 7a). Plusieurs travaux récents présentant des mesures de compositions isotopiques du Mg *in situ* par sonde ionique

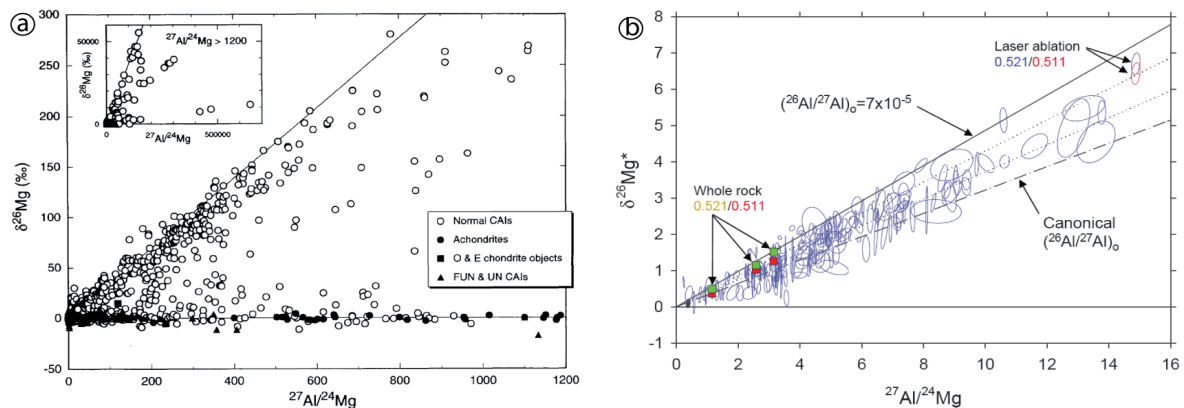


Fig. 7 : a) Ensemble des données d'isochrones internes publiées avant 1995 pour les inclusions réfractaires. Les CAIs dites «normales» définissent le «rapport canonique» de $\sim 5 \times 10^{-5}$ (MacPherson et al., 1995). b) Rapports supra-canoniques mesurés par LA-MC-ICPMS dans des CAIs (Young et al., 2005).

de haute précision sont en bon accord avec un rapport ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initial canonique pour le Système Solaire (Hsu et al., 2000; Kita et al., 2007; Jacobsen et al., 2008; Nagashima et al., 2007; Makide et al., 2009). Cependant, des rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) supra-canoniques variant de $\sim 5,5 \times 10^{-5}$ à $\sim 7 \times 10^{-5}$ ont également été reportés (Fig. 7b, 8a, Bizzarro 2004, 2005; Young et al., 2005; Thrane et al., 2006; Cosarinsky et al., 2007). Ces rapports supra-canoniques ont été obtenus (i) soit par analyses en roche totale par MC-ICPMS donnant une isochrone en roche totale avec un rapport ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) de $5,85 (\pm 0,05) \times 10^{-5}$ et dont la fiabilité est très contestée dans la communauté scientifique (Fig. 8a, Bizzarro

2004, 2005; Thrane et al., 2006), (ii) soit par mesure de minéraux par sonde ionique ou LA-MC-ICPMS (spectrométrie de masse par ablation laser) donnant des rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) supra-canoniques, i. e. et non pas des isochrones, pouvant aller jusqu'à $\sim 7 \times 10^{-5}$ (Fig. 7b, Young et al., 2005) et des isochrones internes-modèles, i.e. avec un forçage à l'origine, avec des rapports variants entre $3,8 \times 10^{-5}$ et $6,1 \times 10^{-5}$ (Cosarinsky et al., 2007).

Les deux études présentant des mesures de compositions isotopiques du Mg de haute précision en roche totale de CAIs d'Allende donnent des résultats non réconciliables entre eux avec un rapport ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initial de $5,85 (\pm 0,05) \times 10^{-5}$ pour l'une (Fig. 8a, Bizzarro 2004, 2005; Thrane et al., 2006) et de $5,23 (\pm 0,13) \times 10^{-5}$ pour l'autre (Jacobsen et al., 2008). Il est important de noter que ces deux études permettent également pour la première d'associer au rapport ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initial la composition initiale des isotopes du Mg lors de la formation des CAIs d'Allende, i.e. $\delta^{26}\text{Mg}^*_0 =$

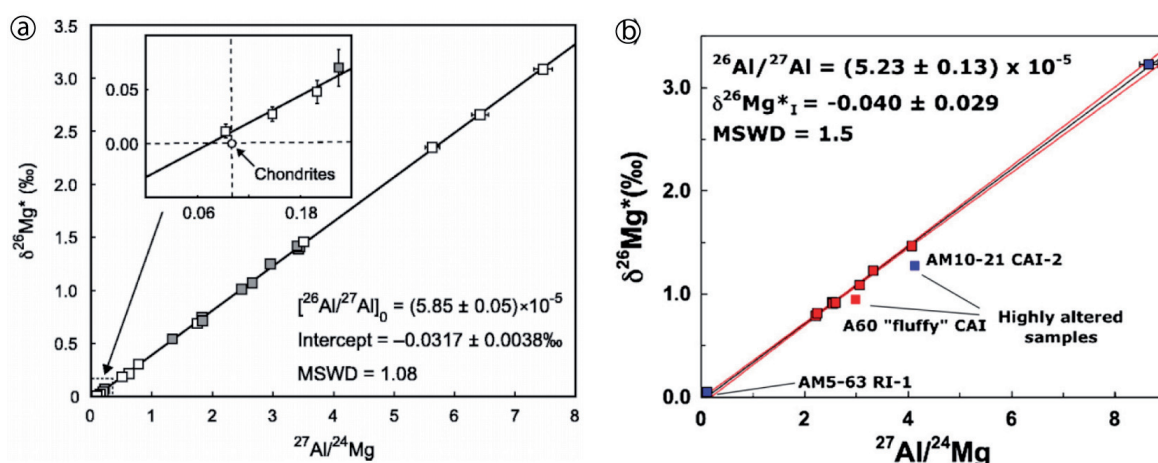


Fig. 8 : Isochrones en roche totale déterminées par MC-ICPMS selon la même procédure dans des CAIs d'Allende. a) Bizzarro et al., 2004, 2005; Thrane et al., 2006, b) Jacobsen et al., 2008.

$-0,0317 (\pm 0,0038)\%$ (Bizzarro 2004, 2005; Thrane et al., 2006) et $\delta^{26}\text{Mg}^*_0 = -0,040 (\pm 0,029)\%$ (Jacobsen et al., 2008). Une minorité de CAIs, d'inclusions de type FUN et d'autres inclusions réfractaires particulières ne présentent pas d'excès de ^{26}Mg ou ont pour certaines des rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) très inférieurs à la valeur canonique, i.e. $< 1 \times 10^{-5}$.

Avec l'amélioration des techniques analytiques par sonde ionique, des excès de ^{26}Mg dus à la décroissance radioactive de ^{26}Al ont été trouvés dans de nombreux chondres des chondrites carbonées et ordinaires. Les isochrones internes ainsi calculées montrent des rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initiaux systématiquement inférieurs à la valeur canonique, i.e. $< 2 \times 10^{-5}$ (Fig. 9, voir légende de la figure pour les sources). Les chondres des chondrites ordinaires, des CO et des CV montrent des rapports similaires majoritairement compris entre $\sim 1,5 \times 10^{-5}$ et $\sim 0,3 \times 10^{-5}$. Cependant, de façon générale, les rapports des chondres des chondrites ordinaires sont supérieurs à ceux des chondres des chondrites carbonées (Fig. 9). Les rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initiaux des CR sont, pour leur part, globalement infé-

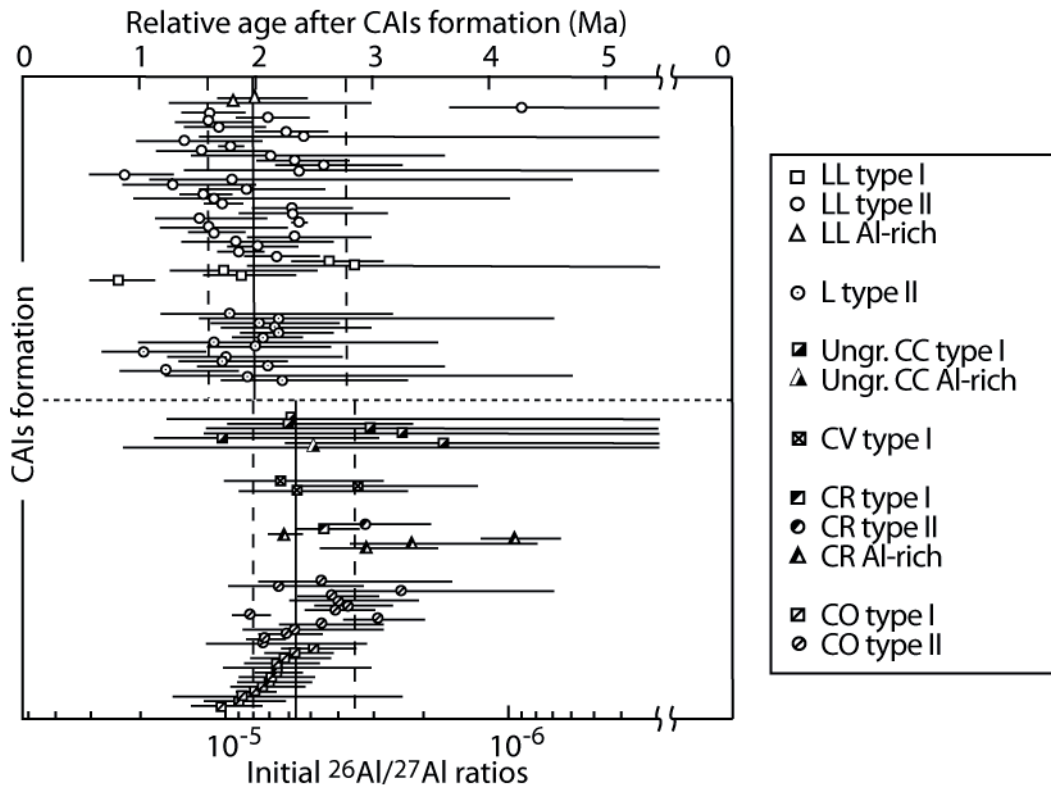


Fig. 9 : Rapport ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initiaux des chondres des chondrites ordinaires et carbonées. Les âges relatifs après les CAIs correspondant sont calculés pour un rapport initial des CAIs d'Allende de $5,23 (\pm 0,13) \times 10^{-5}$ (Jacobsen et al., 2008). Les traits verticaux pleins et pointillés correspondent aux rapports moyens et aux l'écart types des chondres des chondrites ordinaires et carbonées, respectivement. Les données proviennent de Hutcheon et Hutchison, 1989; Russell et al., 1996, 1997; Kita et al., 2000; Hutcheon et al., 2000; Mostefaoui et al., 2002; Yurimoto et Wasson, 2002; Hsu et al., 2003; Kunihiro et al., 2004; Sugiura et Krot, 2007; Nagashima et al., 2007, 2008; Rudraswami et Goswami, 2007; Rudraswami et al., 2008; Kurahashi et al., 2008.

rieurs à ceux des autres groupes et sont compris entre $\sim 0,6 \times 10^{-5}$ et $\sim 0,1 \times 10^{-5}$ (Fig. 9). Les mesures en roche totale effectuées dans des chondres donnent des rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) élevés variant entre $\sim 2 \times 10^{-5}$ et $\sim 5 \times 10^{-5}$, soit des valeurs supérieures à celles des isochrones internes et parfois similaires à celles des CAIs (Galy et al., 2000; Bizzarro et al., 2004, 2005). Actuellement, aucune mesure des isotopes du Mg n'est suffisamment précise pour donner des informations sur la composition isotopique initiale du Mg lors de la formation des chondres.

Un rapport ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) de $7,5 (\pm 0,9) \times 10^{-7}$ beaucoup plus bas que celui des CAIs et des chondres, a été mesuré dans les plagioclases de l'eucrite Piplia Kalan (Srinivasan et al., 1999). D'autre part, la présence d' ^{26}Al a également été mesurée en petite quantité dans des plagioclases formés secondairement lors du métamorphisme dans le corps parent de plusieurs chondrites H4. Ces plagioclases montrent des rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) variant de $2,9 (\pm 0,6) \times 10^{-7}$ à $1,5 (\pm 0,5) \times 10^{-7}$ (Zinner et Göpel, 2002).

Si on suppose que l'hypothèse d'homogénéité de l' ^{26}Al est valide, il est possible d'inter-

prêter les différences de rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) en termes de différences d'âges. Les rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initiaux des isochrones en roche totale des CAIs d'Allende peuvent donner le rapport ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initial lors de la formation des CAIs d'Allende et par extension celle du système solaire (Bizzarro 2004, 2005; Thrane et al., 2006; Jacobsen et al., 2008). On considérera dans la suite que le rapport de $5,23 (\pm 0,13) \times 10^{-5}$ pour la formation des CAIs déterminé par Jacobsen et al. (2008) est le rapport initial du système solaire à partir duquel tous les autres âges relatifs seront calculés. Ce rapport suggère que le temps écoulé entre la formation des précurseurs des CAIs d'Allende et leur cristallisation, i.e. le temps de formation des CAIs d'Allende, est court, puisque inférieur à 30 000 ans, i.e. ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) connu à $\pm 0,13 \times 10^{-5}$. En revanche, les mesures d'isochrones internes des CAIs des CV suggèrent plutôt une durée de formation des CAIs étendue de l'ordre de 300 000 ans avec de multiples épisodes de fusion (Hsu et al., 2000; Kita et al., 2007; Jacobsen et al., 2008; Nagashima et al., 2007; Makide et al., 2009). Dans un tel contexte, les rapports supra-canoniques peuvent être interprétés comme étant dus à l'intégration dans certaines CAIs d'une fraction de matériel présentant des anomalies isotopiques pour l' ^{26}Al et/ou les isotopes du Mg. Les inclusions réfractaires ne présentant pas ou peu d'excès de ^{26}Mg peuvent être expliquées soit par une formation très précoce avant l'injection et/ou l'homogénéisation de l' ^{26}Al dans le système solaire (Sahijpal et Goswami, 1998), soit par des perturbations secondaires tardives du système isotopique, i.e. métamorphisme.

Les rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initiaux des isochrones internes mesurés dans les chondres impliquent des âges de cristallisations pour les chondres supérieurs à 1 Ma après la formation des CAIs d'Allende (Fig. 9). Pour les chondres des chondrites ordinaires, des CO et des CV les âges de cristallisation sont compris dans la majorité des cas entre $\sim 1,3$ Ma et ~ 3 Ma après la formation des CAIs. Pour les chondres des CR ces âges de cristallisation sont moins vieux, i. e. entre $\sim 2,3$ Ma et ~ 4 Ma après la formation des CAIs (Fig. 9). La cristallisation des chondres se prolonge donc sur environ 3 Ma, ce qui implique un processus de fusion des chondres pérenne et répétitif lors des quelques premiers millions d'années de l'histoire du système solaire. Les rapports ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) initiaux des isochrones en roche totale indiquent que la formation des précurseurs des chondres a pu commencer bien avant leur cristallisation, probablement simultanément de la formation des CAIs.

Les plagioclases de l'eucrite Piplia Kalan sont interprétés comme ayant été formés lors de la différenciation du corps parent des eucrites (peut être l'astéroïde Vesta). Cela impliquerait une différenciation de Vesta ou d'un planétésimal de taille équivalente moins de 4,5 Ma après la formation des CAIs. Les désintégrations radioactives de l' ^{26}Al et du ^{60}Fe sont couramment proposées comme sources de chaleur potentielle permettant une différenciation aussi rapide. Le métamorphisme du corps parent des chondrites H4 est daté à partir des mesures dans les plagioclases secondaires entre $\sim 5,3$ Ma et $\sim 6,6$ Ma après la formation des CAIs.

6.2. Chronologie relative de la différenciation des planétésimaux fondée sur la radioactivité éteinte de l' ^{182}Hf

De par sa demi-vie relativement longue (tableau 1), le système ^{182}Hf - ^{182}W permet de suivre les processus de différenciation sur une période allant des processus nébulaires jusqu'à la différenciation des planètes telluriques. D'autre part étant donné les propriétés chimiques de l'Hf et du W, ce système isotopique permet en théorie de tracer à la fois la différenciation métal-silicate (formation du noyau et du manteau des planétésimaux) et silicate-silicate (formation de la croûte et du manteau). En effet, l'Hf et le W sont tout deux des incompatibles mais le W est plus incompatible, i.e. il a une plus grande solubilité dans le liquide que l'Hf. D'autre part, le W est sidérophile tandis que le Hf est lithophile. En première approximation on peut considérer que d'une part, le rapport Hf/W sera plus bas dans le liquide que dans la source solide et que d'autre part, le métal du noyau d'un planétésimal «figera» la composition isotopique du W du réservoir de départ au moment de la différenciation (absence de ^{182}Hf), tandis que les silicates résiduels verront par bilan de masse au bout de quelques millions d'années de forts excès de ^{182}W produits par la décroissance du ^{182}Hf .

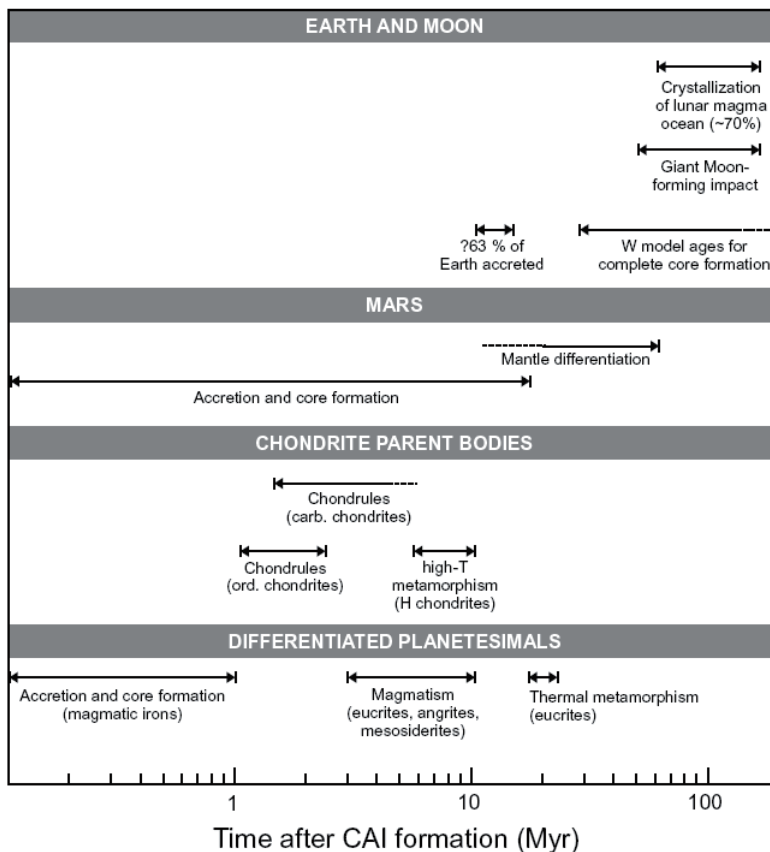


Fig. 10 : Chronologie des événements survenus lors des 100 premiers millions d'années du système solaire tels qu'ils ont été datés le plus souvent par le chronomètre ^{182}Hf - ^{182}W (Kleine et al., 2009).

Avec l'amélioration des techniques analytiques, plusieurs événements clés de la formation et l'évolution du système solaire ont pu être datés assez précisément avec le chronomètre ^{182}Hf - ^{182}W . On peut citer par exemple la formation des CAIs, la différenciation des noyaux des corps parents des météorites de fer, le magmatisme et le métamorphisme dans les corps parents des météorites. Le calcul des âges relatif pour la systématique Hf-W est calé sur le rapport ($^{182}\text{Hf}/^{180}\text{Hf}$) initial de l'angrite d'Orbigy, i. e. 7,20

($\pm 0,21$) $\times 10^{-5}$ (Markowski et al., 2007), et pour laquelle l'âge absolu Pb-Pb est également bien connu, i. e. 4564,42 \pm 0,12 Ma (Amelin, 2008). Les CAIs montrent un rapport ($^{182}\text{Hf}/^{180}\text{Hf}$) initial de

$9,72 (\pm 0,44) \times 10^{-5}$ (Burkhardt), ce qui donne un âge relatif de formation d'environ $3,8 (\pm 0,7)$ Ma avant d'Orbigny et un âge absolu de $4568,3 (\pm 0,7)$ Ma. La systématique Hf-W montre que d'une part les corps parents des météorites de fer magmatiques (et peut-être des eucrites, angrites et mésosidérites) ont été accrétés durant le premier million d'années après les CAIs et que d'autre part, ils ont été fondus et différenciés, i. e. formation des noyaux, durant le même laps de temps, avant même la cristallisation des chondres (Fig. 10, Kleine et al., 2005; Markowski et al., 2006; Schersten et al., 2006; Qin et al., 2008). Le métamorphisme haute température du corps parent des chondrites ordinaires de type H est daté entre ~ 5 et ~ 10 Ma après les CAIs (Kleine et al., 2008). La différenciation silicate-silicate des corps parents des eucrites, angrites et mésosidérites est quant à elle datée entre ~ 5 et ~ 10 Ma après les CAIs (voir l'article de revue de Kleine et al., 2009).

Au delà de cette histoire précoce des planétésimaux, le chronomètre Hf-W est très utilisé pour dater la formation et la différenciation des planètes telluriques (Mars, Terre) mais également la formation de la Lune. Nous ne rentrerons ici pas plus dans les détails (voir Kleine et al., 2009).

6.3. Apport des autres radioactivités à courtes périodes

Parmi les autres radioactivités éteintes celle du ^{53}Mn est également beaucoup étudiée. Cependant, le système isotopique ^{53}Mn - ^{53}Cr est délicat d'utilisation car il existe des anomalies nucléosynthétiques sur les isotopes du Cr (Birck et Allègre, 1988). Une isochrone obtenue pour une CAI d'Allende donne un rapport ($^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$) initial de $3,7 (\pm 1,2) \times 10^{-5}$ (Birck et Allègre, 1985). Les compositions isotopiques des chondres indiquent des rapports plus faibles, e. g. $7,3 (\pm 3,5) \times 10^{-6}$ pour les chondres de la météorite Chainpur (Nyquist et al., 2001), ce qui correspondrait dans le cas d'une interprétation chronologique à un écart compris entre $\sim 4,5$ Ma et $\sim 13,5$ Ma entre la formation des chondres et des CAIs. On voit ici qu'il existe d'importantes disparités entre les âges établis avec le chronomètre ^{26}Al - ^{26}Mg et ceux établis avec le chronomètre ^{53}Mn - ^{53}Cr . Cette radioactivité éteinte a aussi été étudiée pour établir une chronologie de différenciation des planétésimaux. Les eucrites définissent une isochrone en roche totale avec un rapport ($^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$) initial de $4,7 (\pm 0,5) \times 10^{-6}$ (Lugmair et Shukolyukov, 1998), qui correspondrait à un écart de ~ 11 Ma entre la formation des eucrites et celle des CAIs. Les angrites étudiées définissent une isochrone très précise avec un rapport de $1,25 (\pm 0,07) \times 10^{-6}$ (Lugmair et Shukolyukov, 1998), qui correspondrait à un écart d'âge avec les CAIs d'environ 18 Ma.

Les autres radioactivités éteintes telles que le ^{60}Fe ou encore le ^{10}Be n'ont pas été suffisamment étudiées pour permettre l'élaboration de chronologies de formation des premiers solides du système solaires cohérentes fondées sur leur décroissance radioactive.

Chapitre 4

Protocoles Analytiques

1. Préparation des échantillons	74
2. Le microscope électronique à balayage (MEB)	74
3. La microsonde électronique (ou microsonde de Castaing)	75
4. Analyses isotopiques avec la sonde ionique CAMECA IMS 1270	76
4.1. Instrumentation	77
4.1.1. La source d'ions primaires	80
4.1.2. La colonne primaire	81
4.1.3. La colonne secondaire	81
4.1.4. La détection	84
4.2. Analyse	86
4.2.1. Filtrage en énergie	86
4.2.2. Résolution de masse	87
4.2.3. Fractionnement instrumental	88
4.3. Mesure isotopique du magnésium et de l'aluminium	90
4.3.1. Variations de bruit de fond des cages de Faraday	91
4.3.2. Fractionnement de masse instrumental	92
4.3.3. Rendements de ionisation du magnésium et de l'aluminium	94

La présentation des différentes techniques d'observation et d'analyse, indispensables à la caractérisation des échantillons naturels de chondrites et des charges expérimentales, employées au cours de cette étude est l'objet du présent chapitre. Les observations pétrographiques à différentes échelles ont été réalisées au moyen de microscopes optiques et d'un microscope électronique à balayage (MEB). Les analyses élémentaires et isotopiques in situ ont été conduites respectivement à la microsonde électronique et à la microsonde ionique

Les protocoles de synthèse des échantillons expérimentaux sont également présentés dans ce chapitre.

1. Préparation des échantillons

Les échantillons de chondrites se présentent sous la forme de sections polies coulées dans une résine formant des cylindres de 2,5 cm (1 pouce) de diamètre et épais de 0,5 cm adaptés aux portes échantillons des microsondes électronique et ionique. Ces échantillons sont métallisés à l'aide d'un fin dépôt de carbone (10 nm) avant observation et analyse au MEB et aux microsondes, afin de permettre une bonne conduction des électrons et des ions à la surface.

Afin d'être observées et analysées, les charges expérimentales sont placées dans des bagues métalliques puis enrobées dans une résine qui, une fois polymérisée, est polie. Le polissage est effectué sur des papiers abrasifs au carbure de silicium de granulométries décroissantes (240, 600, 1200, 2400 grains/cm²) et finalisé sur des disques de feutres imprégnés de pâte diamantée de granulométrie 3 et 1 µm. De même que pour les chondrites, les bagues sont métallisées au carbone avant observation et analyse.

2. Le microscope électronique à balayage (MEB)

Le microscope utilisé est un MEB à effet de champ Hitachi S-4800 appartenant au Service Commun de Microscopie Electronique et de Microanalyses X (SCMEM) de l'université Henri Poincaré Nancy I. De part ses spécificités, il permet des observations à très haute résolution spatiale (du µm au nm).

Le principe de fonctionnement du MEB repose sur les interactions électrons – matière. Il consiste en un faisceau d'électrons primaires accélérés par une haute tension (entre 0,1 et 30 kV) balayant la surface de l'échantillon à analyser qui, en réponse, réémet un signal secondaire. Suivant la nature des électrons de ce signal secondaire produit par interaction avec la matière de l'échantillon, il est possible d'obtenir diverses informations :

- les électrons secondaires sont éjectés de la cible après un choc inélastique avec des électrons primaires (Fig. 1). En raison de leur faible énergie (50 eV), ils sont principalement émis dans les couches superficielles de l'échantillon (< 10nm) et sont de ce fait très sensibles aux variations de surface. Ainsi, ils permettent d'avoir une image de la topographie de l'échantillon.

- les électrons rétrodiffusés résultent de la collision quasi élastique des électrons primaires avec des noyaux d'atomes (Fig. 1). Très énergétiques (jusqu'à 30 keV), ils peuvent être émis en profondeur dans l'échantillon et se révèlent ainsi peu sensibles aux variations de topographie. En revanche ils sont sensibles au numéro atomique des atomes ce qui permet par contraste de phase d'avoir

une information chimique qualitative sur l'échantillon.

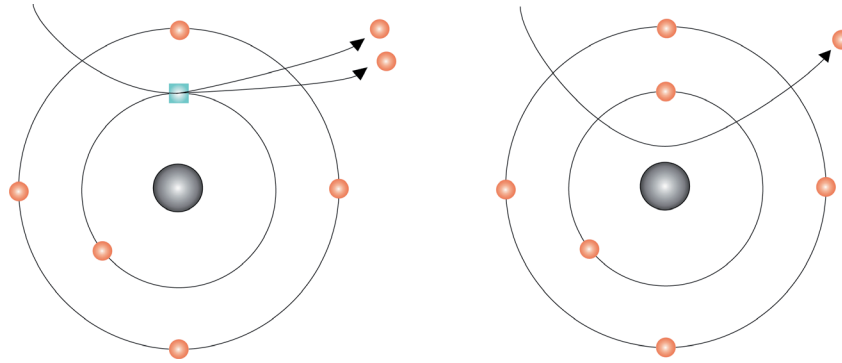


Fig. 1 : Schéma de formation des électrons secondaires (à gauche) et des électrons rétrodiffusés (à droite).

Ainsi le MEB est avant tout un appareil d'observation et d'imagerie. Cependant, lors de ces interactions électrons–matière, d'autres particules sont émises, et en particulier des photons X produits par la désexcitation des atomes de la cible. La récupération de ces X dans un spectromètre à dispersion d'énergie couplé au MEB permet d'avoir une analyse chimique semi-quantitative de la zone cible.

3. La microsonde électronique (ou microsonde de Castaing)

La microsonde utilisée au cours de cette étude est une CAMECA SX-100 appartenant au Service Commun de Microscopie Electronique et de Microanalyses X (SCMEM) de l'université Henri Poincaré Nancy I.

Tableau 1 : standards utilisés pour calibrer la sonde électronique.

Elément	Standard
Na	Albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$)
Mg	Olivine (Mg_2SiO_4)
Al	Albite
Si	Orthose (KAlSi_3O_8)
K	Orthose
Ca	Wollastonite (CaSiO_3)
Ti	MnTiO_3
Cr	Cr_2O_3
Mn	MnTiO_3
Fe	Hématite (Fe_2O_3)
Ni	NiO

toute la gamme des longueurs d'ondes et donc des éléments chimiques.

La calibration des spectres d'émission X à partir de standards permet de faire des analyses quantitatives. Le Tableau 1 présente les différents standards utilisés dans nos analyses.

L'échantillon est bombardé par un faisceau d'électrons produit par une cathode de tungstène. Ici, les particules analysées ne sont plus les électrons, mais les photons X émis lors de la désexcitation des atomes de la cible et dont les longueurs d'onde dépendent de la nature de l'atome. Ces rayons X vont être réfléchis par un cristal monochromateur courbé qui les dirige vers un détecteur à flux gazeux. Les cristaux monochromateurs utilisent les propriétés de réflexion sélective des rayons X par une famille de plans réticulaires. Le domaine d'utilisation d'un cristal étant limité, il est nécessaire d'utiliser 4 cristaux (correspondant aux 4 spectromètres de la microsonde) de distance réticulaire différente afin de couvrir

Les paramètres analytiques (tension et intensité primaire, temps de comptage) sont choisis en fonction des éléments présents que l'on souhaite mesurer dans l'échantillon, et de leur concentration. La tension d'accélération des électrons primaires joue sur l'intensité émise et le volume d'interaction avec la cible. En d'autres termes, on augmente la sensibilité en augmentant la tension mais on perd en résolution spatiale. L'intensité du courant du faisceau primaire influe sur l'intensité du signal X émis. Cependant une intensité trop forte est destructrice pour l'échantillon.

Les analyses ponctuelles classiques ont été conduites avec une intensité primaire fixée à 10 nA, une tension primaire à 15 kV et un taille de faisceau de 2 μm . En revanche, les cartographies chimiques ont été obtenues à partir d'analyses ponctuelles dont l'intensité primaire était de 100 nA, la tension primaire de 15 kV et la taille de faisceau de 3 – 5 μm . Les temps de comptages ainsi que les seuils de détection et les écart-types pour les éléments mesurés suivant les modalités d'analyses sont compilés dans le Tableau 2.

Tableau 2 : Paramètres de détection de la sonde électronique pour les analyses classiques et les cartographies chimiques.

Eléments	Durée (s)	Limite de Détection (ppm)	Ecart-type (%)	Eléments	Durée (s)	Limite de Détection (ppm)	Ecart-type (%)
Analyses classiques				Cartographies chimiques			
Na	10	640	8	Na	0.5	-	12
Mg	20	370	2	Mg	1	-	3
Al	10	510	3	Al	0.5	-	5
Si	20	420	3	Si	1	-	5
K	10	700	15	K	0.5	-	22
Ca	20	510	4	Ca	1	-	6
Ti	10	400	7	Ti	0.5	-	10
Cr	20	350	10	Cr	1	-	15
Mn	10	1800	30	Mn	1	-	45
Fe	10	2000	7	Fe	1	-	10
Ni	10	2300	-	Ni	0.5	-	-

4. Analyses isotopiques avec la sonde ionique CAMECA IMS 1270

Une partie de ce travail de thèse a été consacrée au développement d'une méthode de mesure du ^{26}Mg formé par décroissance radioactive de l' ^{26}Al à la microsonde ionique suffisamment précise pour être utilisée dans des phases minérales de chondres ou de CAIs pauvres en aluminium (précision de l'ordre de 0,05 ‰ pour $\delta^{26}\text{Mg}^*$, i.e. l'excès de ^{26}Mg produit par la décroissance radioactive de l' ^{26}Al , dans les olivines et les orthopyroxènes).

De façon très générale, le principe de la sonde ionique consiste à bombarder la surface d'un échantillon avec un faisceau d'ions primaires de grande énergie pour en arracher des ions secondaires, qui sont ensuite focalisés, triés selon leur énergie et leur masse et finalement comptés. La

microsonde ionique est donc un spectromètre de masse permettant d'effectuer des microanalyses isotopiques in situ de minéraux dans des échantillons préparés de manière à présenter une surface plane au faisceau primaire.

Pratiquement tous les éléments chimiques de l'hydrogène jusqu'à l'uranium peuvent être mesurés et la plupart peuvent être analysés de manière quantitative jusqu'à quelques parties par million. Les premiers développements d'une technique de mesure in situ ont été conduits par Slodzian (1954), dont l'appareil consistait essentiellement en un microscope d'ions secondaires capable de résolution de masse. Par la suite, de nombreuses applications de mesures à la microsonde ionique ont été détaillées, notamment en géochimie, cosmochimie et géochronologie par, entre autres, Shimizu et al. (1978), Shimizu et Hart (1982), Reed (1984), Hinton (1995) et Ireland (1995).

Avant de décrire en détail les conditions d'analyse des isotopes du magnésium et de l'aluminium, je vais revenir rapidement sur les principes de fonctionnement de la sonde ionique (Slodzian, 1980).

4.1. Instrumentation

De façon simplifiée, la microsonde ionique 1270 peut être décomposée en quatre parties (Fig. 2) :

- Un sas à échantillons («airlock system»), permettant l'introduction simultanée de deux porte-échantillons sans altérer le vide du reste de la machine.

- Une colonne primaire, comprenant les sources d'ions primaires, ainsi qu'un ensemble de lentilles électrostatiques, de stigmatiseurs et de défecteurs permettant de focaliser le faisceau d'ions primaires sur l'échantillon.

- Une colonne secondaire, consistant en un système d'extraction qui transfère et accélère les ions secondaires de la surface de l'échantillon vers le spectromètre de masse qui permet un tri des ions en fonction de leur énergie et de leur masse. La colonne secondaire comprend également plusieurs systèmes de lentilles électrostatiques, de stigmatiseurs et défecteurs nécessaires à la focalisation des ions secondaires.

- Un bloc de détection placé à la sortie du spectromètre de masse permettant de visualiser les ions secondaires sur un écran fluorescent, de compter ces ions en monocollection ou multicollection sur des cages de Faraday ou des multiplicateurs d'électrons.

Microsonde ionique IMS 1270

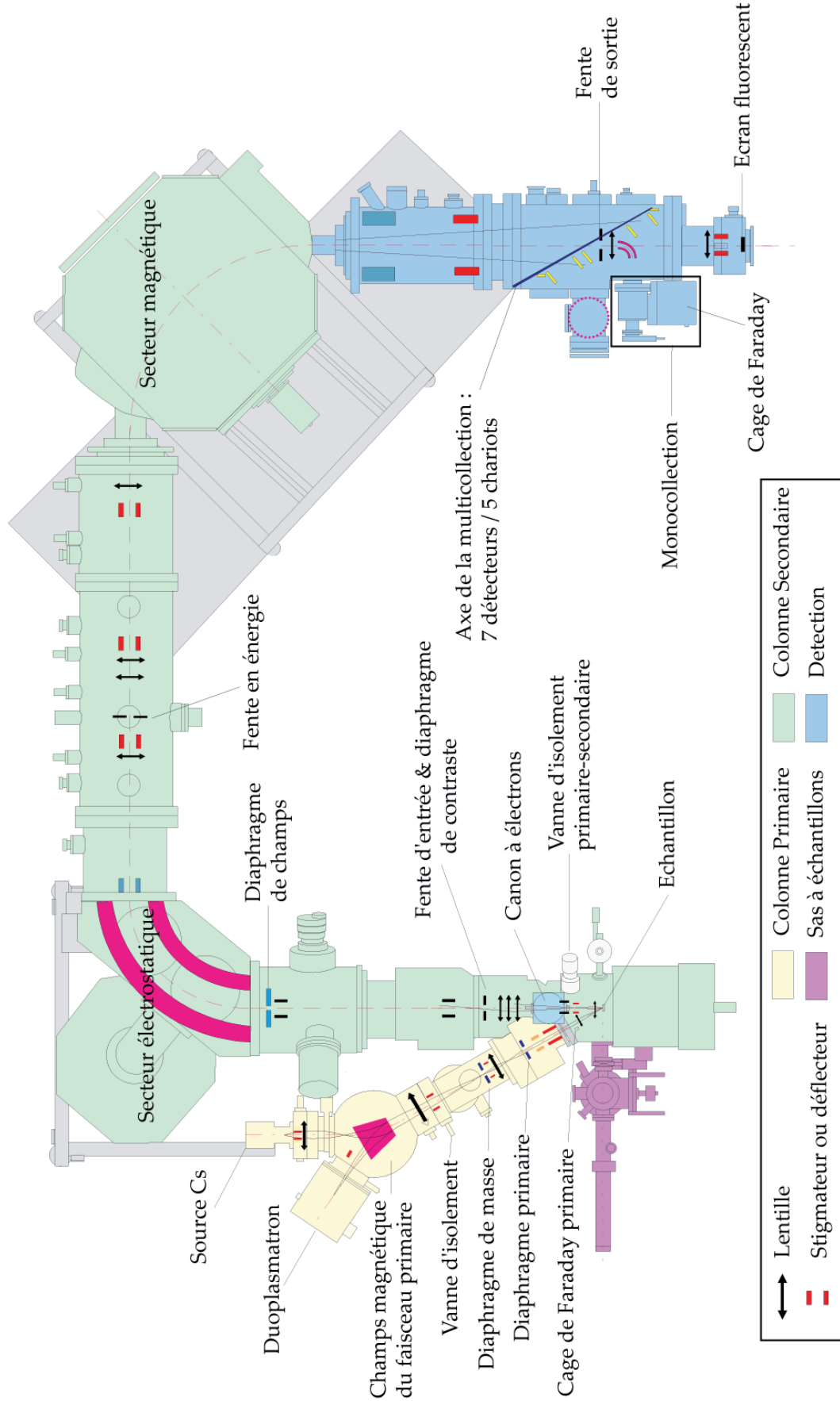


Fig. 2 : Schéma de la sonde ionique Caméca ims 1270 (d'après un document Caméca et Rollion-Bard, 2001).

La sonde ionique est pourvue d'un système de traitement optique du signal au moyen de diverses lentilles et diaphragmes, ce afin d'optimiser la qualité et la reproductibilité des mesures. Ceci lui confère la qualité de microscope ionique. La dualité microscope – spectromètre de la sonde requiert trois plans de focalisation : en image, en énergie et en masse assurés respectivement par l'optique de transfert, le secteur électrostatique et le secteur magnétique. La distribution des ions secondaires est visualisable au moyen d'un écran fluorescent selon deux plans optiques différents (Fig. 3) :

- «image mode», qui correspond au plan image dans lequel la position des ions dépend de leur position initiale dans l'échantillon lors de l'émission. Il donne une image de la surface de l'échantillon pour une masse sélectionnée.

- «slit mode», qui correspond au plan focal (ou cross-over) dans lequel la position des ions dépend de leur énergie initiale lors de l'émission. Il donne une image du cross-over et des fentes

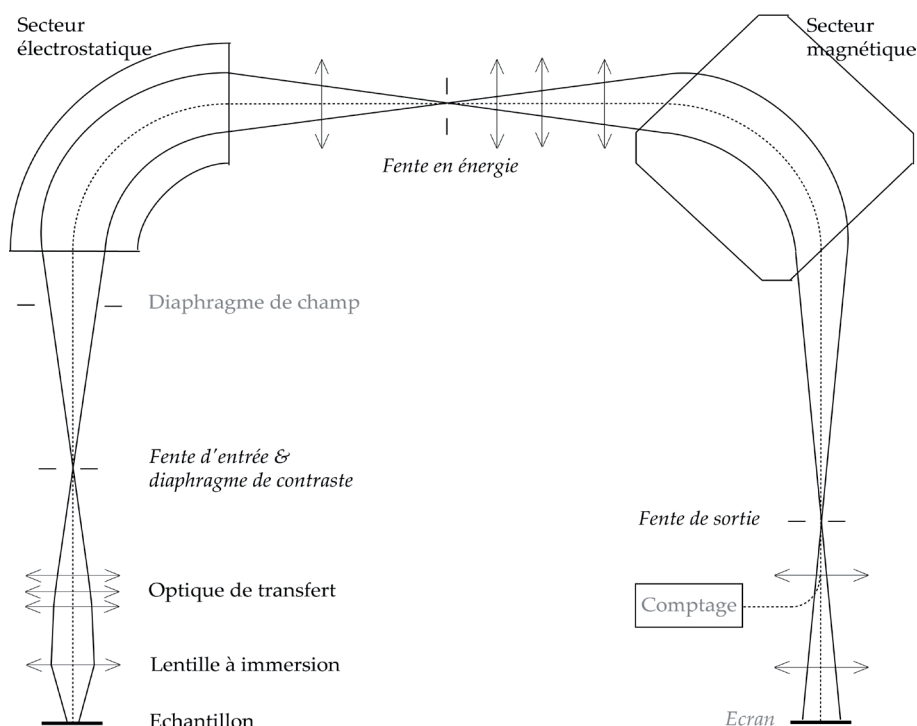


Fig. 3 : Position des plans image (en gris) et cross-over (en italique) (d'après Rollion-Bard, 2001). d'entrée, en énergie et de sortie.

La visualisation de ces deux plans optiques est permise par le système de projection optique qui, au moyen de deux lentilles électrostatiques, permet de transformer l'image virtuelle des plans image et focale en image réelle.

4.1.1. La source d'ions primaires

Le choix de la source dépend du potentiel d'ionisation de l'élément à analyser préférentiellement en anions (ions primaires positifs) ou en cations (ions primaires négatifs) :

- Le duoplasmatron (O^- , O_2^- , O_2^+ , Ar^+) ; il consiste en une cathode de nickel creuse, une électrode intermédiaire et une anode percée (Fig. 4, Von Ardenne, 1956). Un plasma est formé par une fuite de gaz dans la cathode creuse, puis confiné physiquement et magnétiquement par l'électrode intermédiaire et la bobine pour être enfin extrait via l'anode percée et accéléré dans la colonne primaire.

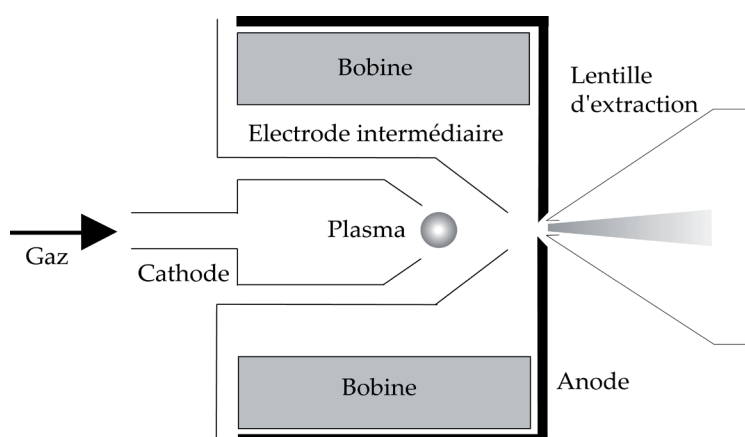


Fig. 4 : Schéma d'un duoplasmatron (d'après un document Caméca).

Le choix de la polarité des ions primaires dépend de la polarité de la tension d'accélération ainsi que de la position de l'électrode. Un filtrage magnétique primaire des ions est également assuré afin d'éliminer les impuretés provenant du gaz ou des métaux formant les parties internes de la source (notamment le nickel).

- La source à Césium ; les ions Cs^+ sont produits par chauffage d'un réservoir de carbonate de Cs, diffusion du Cs le long d'un capillaire puis évaporation et ionisation sur la surface d'une plaque de tungstène chauffée au bout du capillaire (Fig. 5, Storms et al., 1977). Les ions sont ensuite extraits et accélérés dans la colonne primaire.

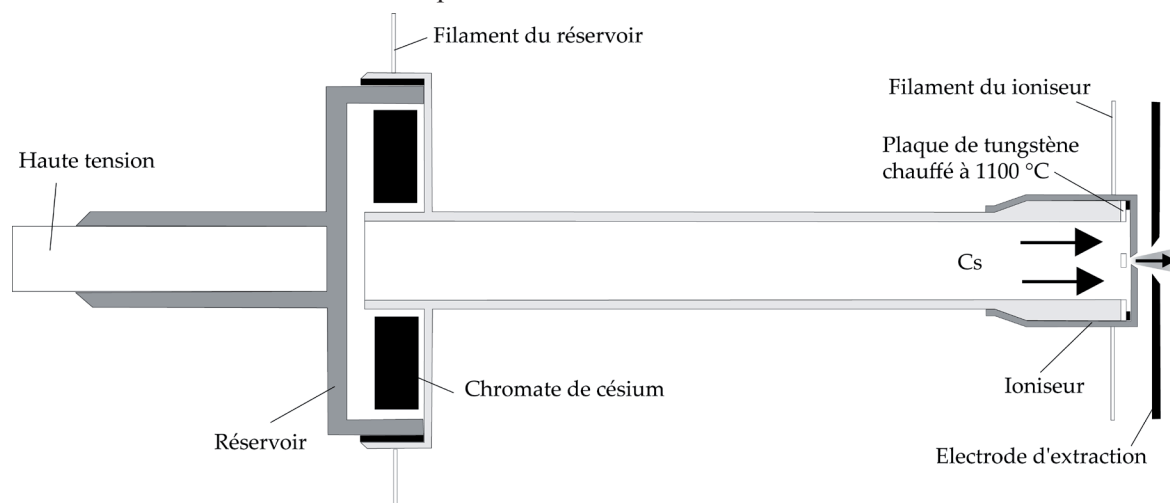


Fig. 5 : Schéma d'une source à Césium (d'après un document Caméca).

Lors du bombardement par des ions positifs Cs^+ , une accumulation de charges positives en surface de l'échantillon se crée en raison de l'implantation de ces ions et de l'émission d'électrons. Pour compenser cet effet de charge, on utilise un canon à électrons qui permet la formation d'un nuage électronique au dessus de la surface de l'échantillon.

Le faisceau primaire utilisé pour l'analyse des échantillons géologiques consiste pratiquement exclusivement en ions O^- , O^{2-} et Cs^+ .

4.1.2. La colonne primaire

Le faisceau primaire est focalisé par une série de lentilles électrostatiques, déflecteurs et stigmatiseurs (Fig. 2). Suivant les réglages des diaphragmes et des lentilles de la colonne primaire, on obtient deux types de sondes différents :

- «Mode gaussien», qui donne une image focalisée de la source elle-même. Ce réglage présente une distribution de courant spatialement hétérogène mais un faisceau très dense et de taille théoriquement très petite, limitée uniquement par les aberrations du système de focalisation optique.

- «Mode du diaphragme projeté» ou «mode Kohler», qui donne une image focalisée du diaphragme primaire illuminé de façon uniforme. Dans ce cas, la distribution du courant est homogène mais le faisceau est moins dense. La taille du faisceau est fixée par la taille du diaphragme primaire.

4.1.3. La colonne secondaire

Les ions qui composent le faisceau secondaire proviennent des couches atomiques superficielles de l'échantillon arrachées par l'impact du faisceau primaire (Fig. 6).

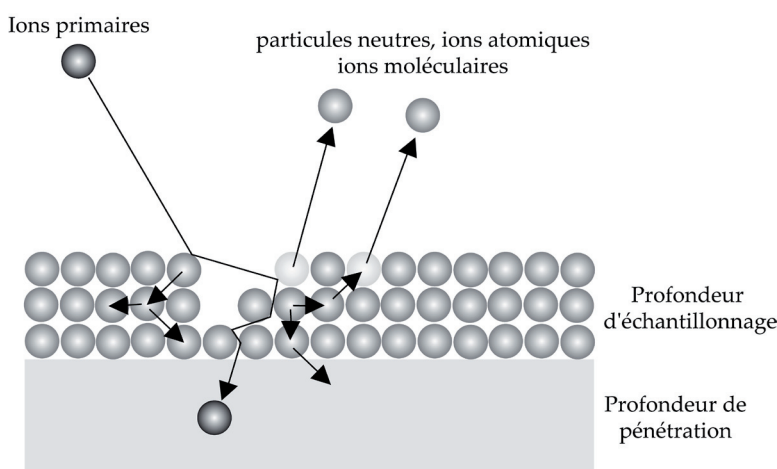


Fig. 6 : Processus d'ionisation dans l'échantillon lors du bombardement par un faisceau d'ions primaires (d'après Hinton, 1995 et Rollion-Bard, 2001).

Ces ions secondaires sont éjectés avec des énergies initiales très variables (de quelques eV à 1 keV), des distributions angulaires extrêmes et des positions initiales variables. La partie spectromètre de masse de la sonde n'est pas conçue pour accommoder

des gammes d'énergies et de trajectoires aussi larges; aussi est-il indispensable de modifier ce faisceau secondaire en réduisant les différences en énergie et en éliminant les ions avec des trajectoires extrêmes avant l'entrée dans le spectromètre de masse.

a. *L'optique de transfert*

Elle est conçue pour transférer le maximum d'ions secondaires émis au travers de la fente d'entrée du spectromètre de masse, tout en homogénéisant l'énergie du faisceau et en éliminant les aberrations. Les ions secondaires sont tout d'abord accélérés de l'échantillon soumis à une haute tension (10 kV) vers une électrode d'extraction maintenue à la masse (lentille à immersion) avant d'être focalisés sur la fente d'entrée du spectromètre de masse au moyen de lentilles de transfert (LT1, LT2 et LT3, Fig. 7).

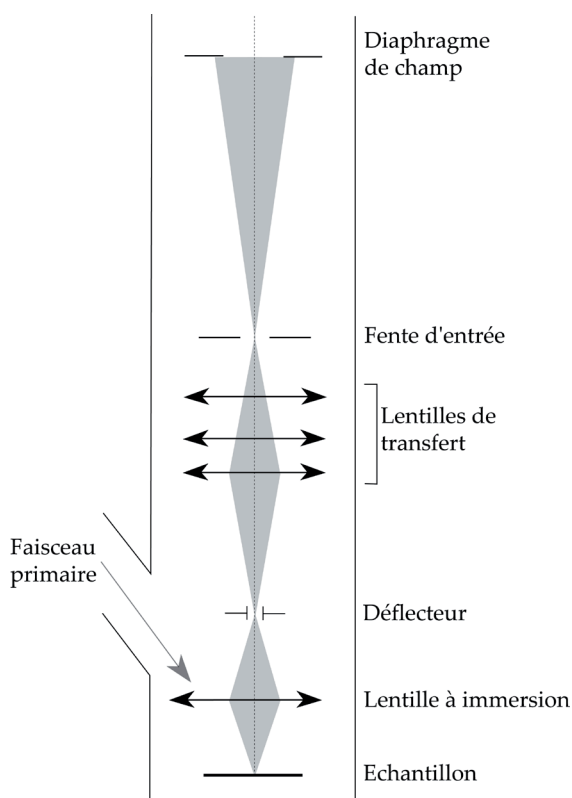


Fig. 7 : Schéma de la partie transfert (d'après un document Caméca et Rollion-Bard, 2001).

L'optique de transfert permet (i) de transformer les images virtuelles formées par la lentille à immersion en images réelles et agrandies de la surface de l'échantillon (plan image) et du cross-over (plan focal), (ii) d'optimiser la sensibilité, qui est fonction de la résolution de masse voulue dans le spectromètre, en changeant les grossissements des images de la surface de l'échantillon et du cross-over.

Les diaphragmes placés dans l'optique de transfert (diaphragme de contraste et diaphragme de champ) éliminent physiquement les ions présentant des trajectoires extrêmes. D'autre part, le diaphragme de contraste permet d'améliorer la résolution spatiale de l'image ionique de la surface en jouant sur la taille du cross-over, réduisant ainsi les aberrations sphériques et le diaphragme de champ permet de transmettre uniquement les ions provenant d'une aire définie de la surface de l'échantillon.

b. Le spectromètre de masse

Le spectromètre de masse est composé d'un secteur électrostatique qui trie les ions en fonction de leur énergie initiale et d'un secteur magnétique qui sépare les ions en fonction du rapport masse/charge (m/q). Ce double système de tri en énergie et en masse permet d'atteindre des résolutions de masse (MRP - «*Mass Resolving Power*» = $M/\Delta M$, avec M la masse et ΔM la largeur du pic à 10% de sa hauteur) de l'ordre de 20 000 avec la sonde ionique Caméca ims 1270.

• Le secteur électrostatique

Le secteur électrostatique (ESA) est constitué de deux plaques de même rayon de courbure entre lesquelles est appliqué un champ électrostatique circulaire et uniforme E . Le rayon moyen R_E de la trajectoire circulaire des ions d'énergie cinétique initiale V , soumis à une force F dans ce champ électrostatique E est donnée par :

$$R_E = (2 \times V) / E$$

Ainsi tous les ions qui possèdent la même énergie initiale seront focalisés au même endroit dans le plan cross-over de la fente en énergie. A l'inverse, des ions dont l'énergie initiale est différente auront des rayons différents (Fig. 8).

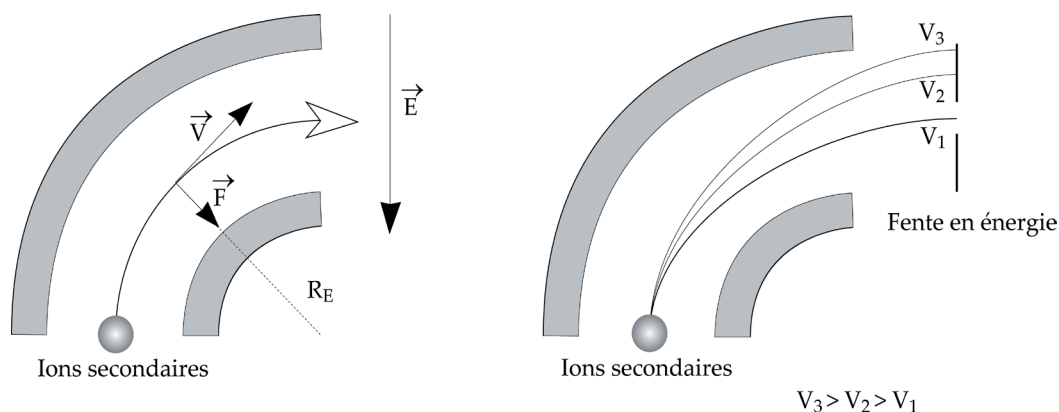


Fig. 8 : Trajectoire des ions secondaires dans le secteur électrostatique (d'après Rollion-Bard, 2001).

L'ESA forme une image du cross-over dispersée en énergie. La fente en énergie est placée dans le plan focal et permet de sélectionner la gamme d'énergie qui nous intéresse (jusqu'à 130 eV de largeur). Cette fente permet de réduire les aberrations chromatiques en cas de mesures à forte résolution de masse ainsi que de supprimer les ions moléculaires (technique connue sous le terme de «filtrage en énergie», Zinner et Crozaz, 1986 – voir § 4.2.).

- Le secteur magnétique

Le secteur magnétique est une bobine dans laquelle circule un champ magnétique B qui applique une force constante et perpendiculaire à la trajectoire des ions (Fig. 9). Le rayon moyen R_B de la trajectoire circulaire des ions de charge q de masse m et d'énergie initiale V dans le champ magnétique B est donnée par :

$$R_B = \frac{1}{B} \times \sqrt{\frac{2 \times m \times V}{q}}$$

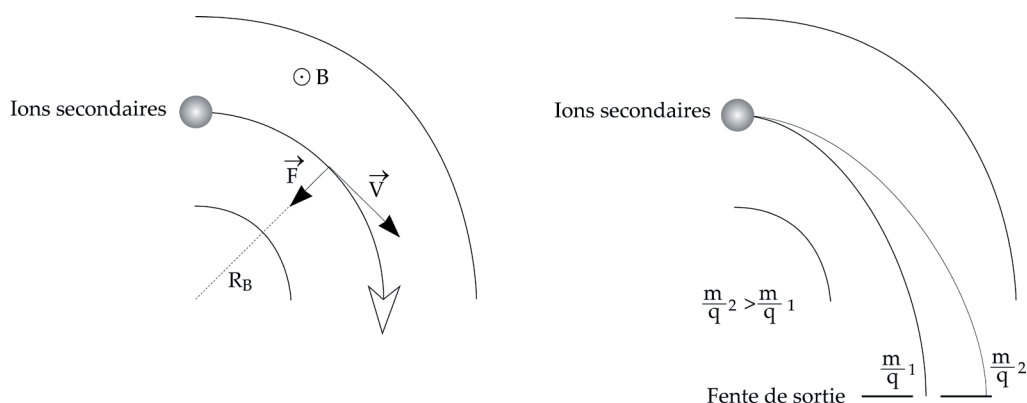


Fig. 9 : Trajectoire des ions secondaires dans le secteur magnétique (d'après Rollion-Bard, 2001).

A énergie initiale constante et champ magnétique fixé, seuls les ions ayant le même rapport m/q seront focalisés au même endroit dans la fente de sortie. Cette fente de sortie permet de sélectionner uniquement les ions ayant le rapport m/q qui nous intéresse.

- Couplage

Dans le cas de la sonde ionique Caméca ims 1270, il existe une série de lentilles circulaires et rectangulaires et de déflecteurs situés après le secteur électrostatique dont le but est d'assurer une bonne focalisation des ions secondaires avant leur entrée dans le secteur magnétique. La présence de ce système de couplage a été rendue obligatoire par la longueur du tube séparant les deux secteurs et de la défocalisation du faisceau d'ions secondaires qui en résultait.

4.1.4. La détection

Un secteur électrostatique situé après la fente de sortie permet d'envoyer les ions soit sur l'écran fluorescent (visualisation au choix d'un plan image ou d'un plan cross-over) soit sur l'un des systèmes de comptage des ions. En fonction de l'intensité des ions secondaires à mesurer, on utilise soit une cage de Faraday soit un multiplicateur d'électrons :

Si l'intensité des ions secondaires est élevée ($> 10^6$ coups par seconde - cps) le courant peut être mesuré directement sur une cage de Faraday (chaque impact d'ion secondaire est converti en un électron). Les cages de Faraday présentent un rendement proche de 1, propre à chaque cage et qui varie très peu au cours du temps. En revanche, les bruits de fonds sont de l'ordre de 10^3 à 10^5 cps suivant les cages et varient en fonction du temps, parfois de façon significative (voir § 4.3.).

Par contre, si l'intensité est plus faible, on utilise un multiplicateur d'électrons qui, comme son nom l'indique, convertit chaque impact d'ion secondaire en une cascade d'électrons, de façon à fournir un courant mesurable par un système d'acquisition capable d'individualiser chaque impact ionique initial. Le rendement de la conversion des ions en électrons varie d'un élément chimique à l'autre, entre isotopes d'un même élément et diminue avec le temps. Pour corriger ces effets, il faut mesurer des standards et des échantillons inconnus selon les mêmes conditions au niveau des détecteurs. D'autre part, les multiplicateurs d'électrons présentent un temps de latence minimum entre deux impulsions, appelé temps mort, au cours duquel aucun signal électrique ne peut être émit même lors d'un impact d'ion secondaire. Il est donc indispensable de faire une correction des pertes de comptage dues au temps mort :

$$I_{\text{vraie}} = I_{\text{mesurée}} \times (1 - \tau)$$

avec I l'intensité du comptage et τ le temps mort.

En monocollection le temps mort du multiplicateur d'électrons est de 44 ns tandis que celui des multiplicateurs en multicollection est de 63 ns. Le bruit de fond sur un multiplicateur est normalement inférieur à 0,1 cps et souvent inférieur à 0,01 cps.

Il est également possible de mesurer des ions de masses différentes mais proches de façon simultanée en multicollection. Le principe consiste à régler l'aimant à la valeur moyenne des masses que l'on souhaite mesurer (25,5 pour ^{24}Mg , ^{25}Mg , ^{26}Mg et ^{27}Al par exemple) et placer des détecteurs fixés sur des chariots mobiles en face de chacune des masses à mesurer. L'intérêt de la multicollection est d'une part, un gain de temps et d'autre part, un gain de précision notamment vis-à-vis des imprécisions dues à l'évolution de l'intensité au cours du temps.

Sur la sonde ionique ims 1270, la multicollection possède 2 chariots fixés sur des chariots mobiles qui sont des cages de Faraday et 5 chariots mobiles qui sont soit des cages de Faraday, soit des multiplicateurs d'électrons (Fig. 10). Lors de chaque session d'analyses les rendements et les bruits de fond des cages de Faraday sont intercalibrés. La valeur du champ magnétique étant constante, il faut placer les chariots de telle sorte que tous les pics d'intensité soient bien centrés sur la valeur de champ.

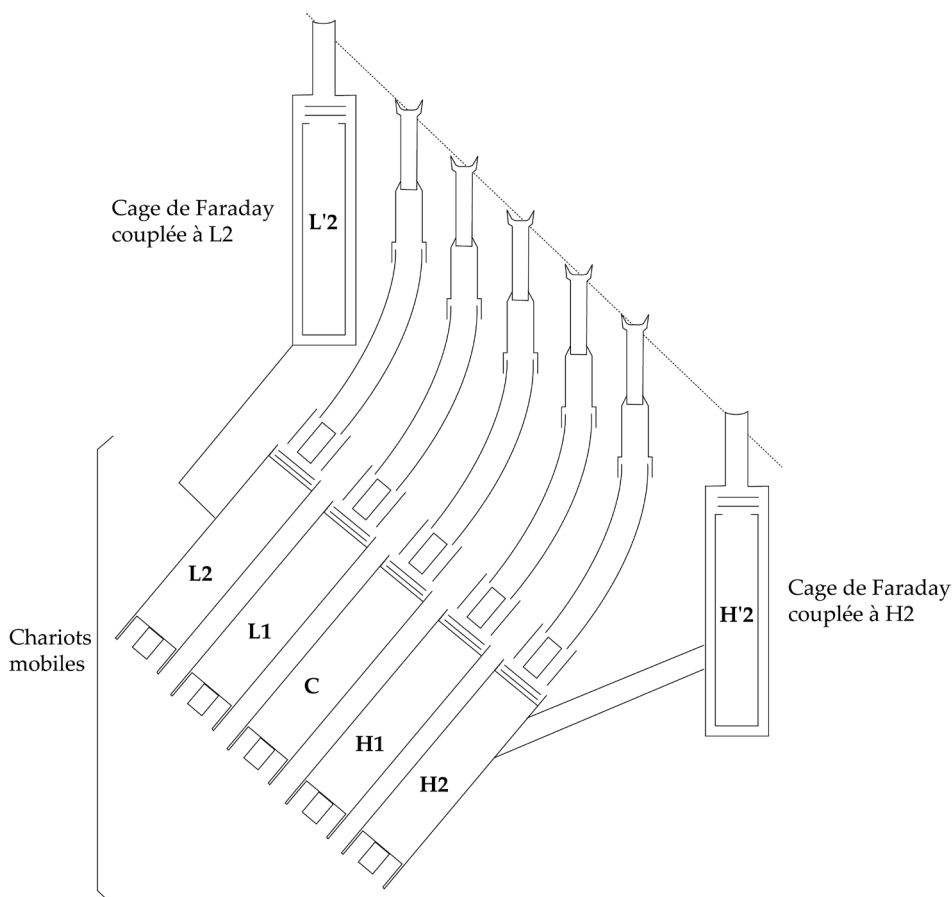


Fig. 10 : Schéma de la configuration de la multicollecion (d'après un document Caméca). L2, L1 et H2 sont des multiplicateurs d'électrons; C et H1 des cages de Faraday.

4.2. Analyse

4.2.1. Filtrage en énergie

Les ions secondaires arrachés par le bombardement primaire peuvent être des atomes ionisés, mais également des molécules ionisées résultant de la recombinaison plus ou moins complexe des composants chimiques de la matrice de l'échantillon ainsi que les ions primaires. Ces ions moléculaires peuvent consister en des assemblages de 2, 3 atomes ou plus ; dans des matrices chimiquement complexes, il y a de fortes chances que l'intensité mesurée à une masse donnée inclut une interférence isobarique d'ions moléculaires.

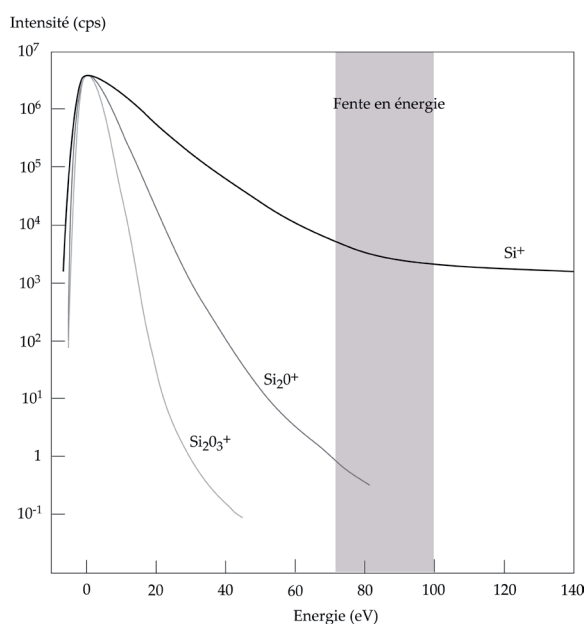


Fig. 11 : Spectre de distribution en énergie d'ions secondaires positifs provenant d'une matrice silicatée et principe du filtrage en énergie (d'après Hinton, 1995).

Le filtrage en énergie est un moyen d'éviter la plupart de ces interférences d'ions moléculaires. En effet, la distribution en énergie des ions atomiques et moléculaires n'est pas la même (Fig. 11) ; ainsi il est possible d'éliminer une grande partie des ions moléculaires en fermant la fente en énergie et en la plaçant de telle façon que les ions de plus forte énergie initiale (ions atomiques) seront sélectionnés préférentiellement. De cette manière, on réduit considérablement l'impact des ions moléculaires sur les mesures.

Cependant, les hydrures ne peuvent pas être supprimés par cette technique car leur distribution en énergie est très proche de celle des ions atomiques (Hinton 1990, voir § 4.3).

4.2.2. Résolution de masse

En plus des différences de distributions en énergie, il existe souvent de petites différences de masse entre les ions atomiques et les ions moléculaires; ainsi, en adaptant la résolution de masse de la sonde, il est possible de les séparer. La résolution de masse (RMP) est donnée par l'expression:

$$RMP = M/\Delta M$$

avec ΔM la largeur du pic de masse M à 10% de sa hauteur. Pour séparer deux pics de masses proches il faut que la résolution de masse soit plus grande que la différence de masse entre les deux pics (Fig. 12).

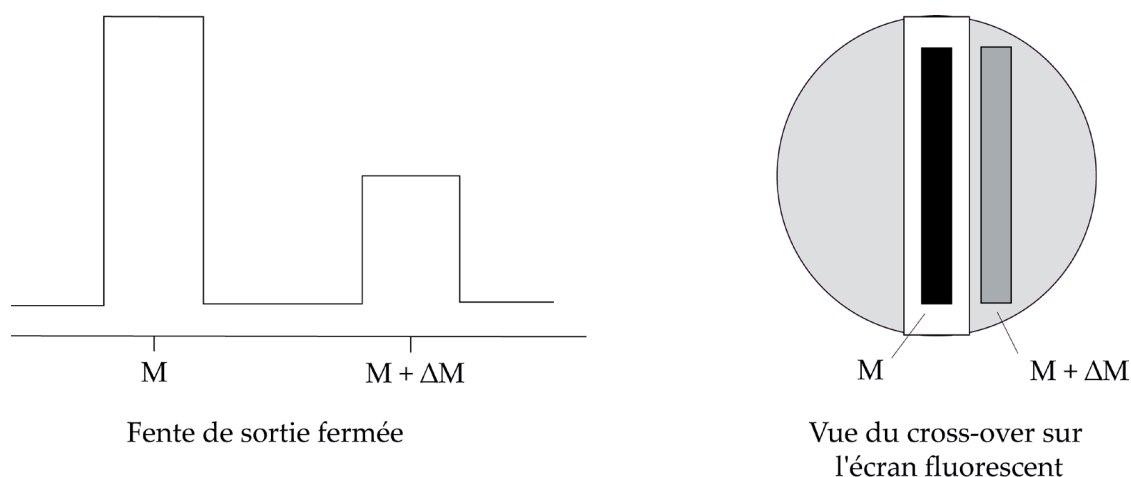


Fig. 12 : Définition de la résolution de masse (d'après Chaussidon, 1988 et Rollion-Bard, 2001).

L'obtention d'une grande RMP est permise par le spectromètre de masse à double focalisation - en énergie dans le filtre électrostatique et en masse dans le secteur magnétique - ainsi que par la diminution de largeur des fentes d'entrée, de sortie et en énergie (Fig. 13). En effet, la RMP d'un

secteur magnétique est proportionnelle à la largeur de la fente d'entrée (s) :

$$M / \Delta M = k \times R/s$$

avec R le rayon de courbure du trajet de l'ion dans l'aimant et k une constante.

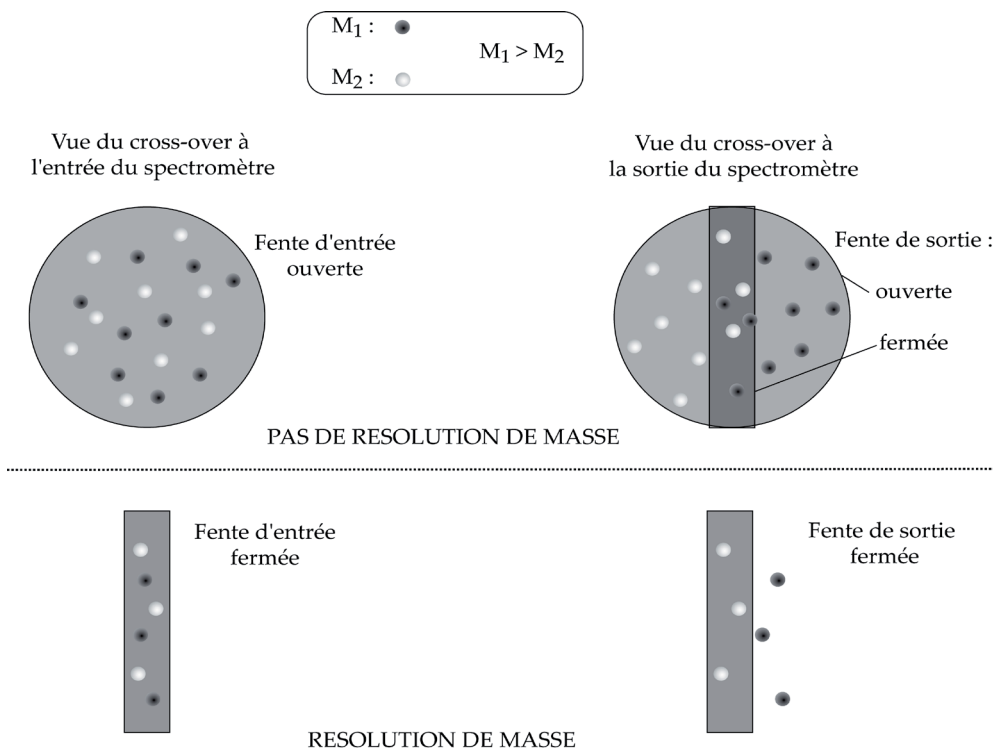


Fig. 13 : Principe de la résolution de masse (d'après Chaussidon, 1988 et Rollion-Bard, 2001).

En pratique, les réglages sont faits de manière à supprimer le maximum d'interférences tout en conservant un signal suffisamment important, i.e. pas trop coupé par les différentes fentes, et un sommet du pic de l'isotope à mesurer le plus plat possible afin d'assurer une meilleure stabilité et précision des analyses (§ 4.3).

4.2.3. Fractionnement instrumental

Les rapports isotopiques mesurés à la sonde ionique ne sont pas directement les rapports véritables de l'échantillon. En effet, physiquement les isotopes légers d'un élément sont émis préférentiellement par rapport aux lourds en raison de leurs plus faibles énergies de liaison (Slodzian et al., 1980; Shimizu et Hart, 1982). Il en résulte un fractionnement dit instrumental (δ_{inst}) correspondant à la différence entre le rapport isotopique mesuré et le rapport réel (en notation δ) :

$$\delta_{\text{inst}} = \delta_{\text{mes}} - \delta_{\text{vrai}}$$

Lors de mesures à la sonde ionique, la valeur du fractionnement instrumental est déterminée à partir de standards dont le fractionnement réel est connu. Une fois la valeur connue il est aisé

de recalculer le vrai rapport isotopique. Cette valeur varie d'une session d'analyse à l'autre et dépend des paramètres suivants :

- Isotopes analysés.

En règle générale, plus l'élément que l'on souhaite analyser est léger et plus son fractionnement instrumental est important (Fig. 14).

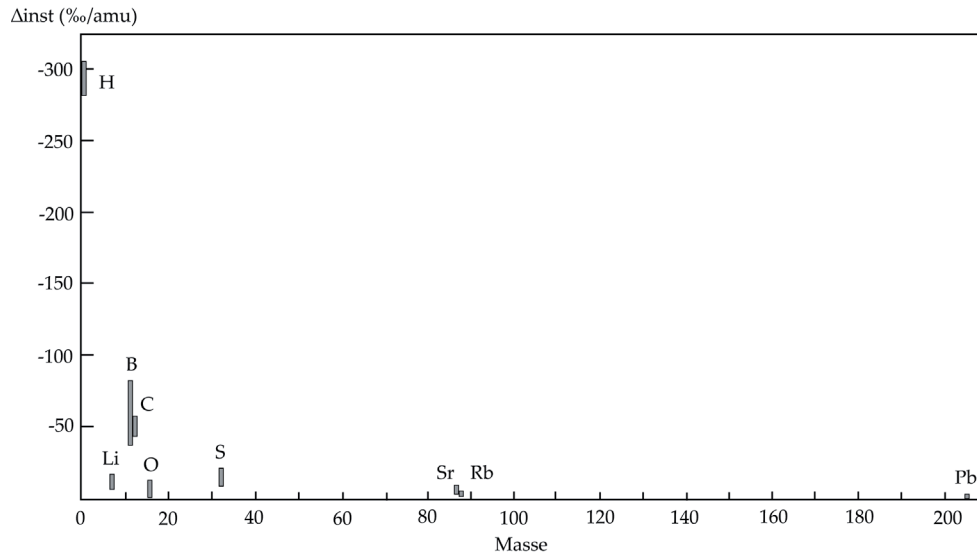


Fig. 14 : Gamme de fractionnement instrumental (Δ_{inst}) en fonction de l'élément étudié (masse de l'isotope léger; d'après Rollion-Bard, 2001).

- Conditions analytiques.

Les paramètres de réglage de la sonde, tels que les valeurs de la lentille à immersion, de la fente en énergie, des diaphragmes de champ et de contraste, et plus généralement tous les réglages du secondaire ont une influence sur la forme du faisceau, sa trajectoire, etc... Ils ont ainsi des effets plus ou moins importants sur la valeur du fractionnement instrumental. De même la pression dans la chambre joue un rôle. Il est donc très important que standards et échantillons soient mesurés selon les mêmes conditions analytiques afin de corriger précisément les résultats du fractionnement instrumental.

- Effet de matrice.

Dans le cas de la plupart des éléments chimiques, le fractionnement instrumental varie également en fonction de la matrice de l'échantillon. Par exemple, pour les isotopes du magnésium, le fractionnement instrumental n'est pas le même pour l'olivine, l'orthopyroxène ou le verre car les énergies de liaison des isotopes du Mg ne sont pas les mêmes d'une matrice à une autre. Il existe également parfois des variations de fractionnement instrumental liées à des changements de compositions chimiques au sein d'une même matrice. Par exemple, pour les isotopes du magnésium entre le pôle magnésien de l'olivine (forstérite) et le pôle ferreux (fayalite).

Afin de corriger les résultats de cet effet de matrice il est nécessaire de mesurer des standards ayant la même matrice que l'échantillon à analyser.

4.3. Mesure isotopique du magnésium et de l'aluminium

Les isotopes du magnésium et de l'aluminium ont été mesurés dans des silicates (olivine, pyroxène, plagioclase, verre) en multicollecion sur 4 cages de Faraday ($^{24}\text{Mg}^+$ sur L'2, $^{25}\text{Mg}^+$ sur C, $^{26}\text{Mg}^+$ sur H1 et $^{27}\text{Al}^+$ sur H'2), avec un faisceau primaire O^- de 20 à 40 nA selon les sessions d'analyse et d'environ 25 μm de diamètre. Chaque mesure était constituée de 40 à 60 cycles de comptage de 10 secondes, soit une durée totale comprise entre 6 min 40 et 10 min.

Les sommets de pics les plus stables ont été obtenus avec la plus faible résolution de masse (RMP d'environ 2500), c'est-à-dire avec la multicollecion réglée en «slit 1» (Fig. 15).

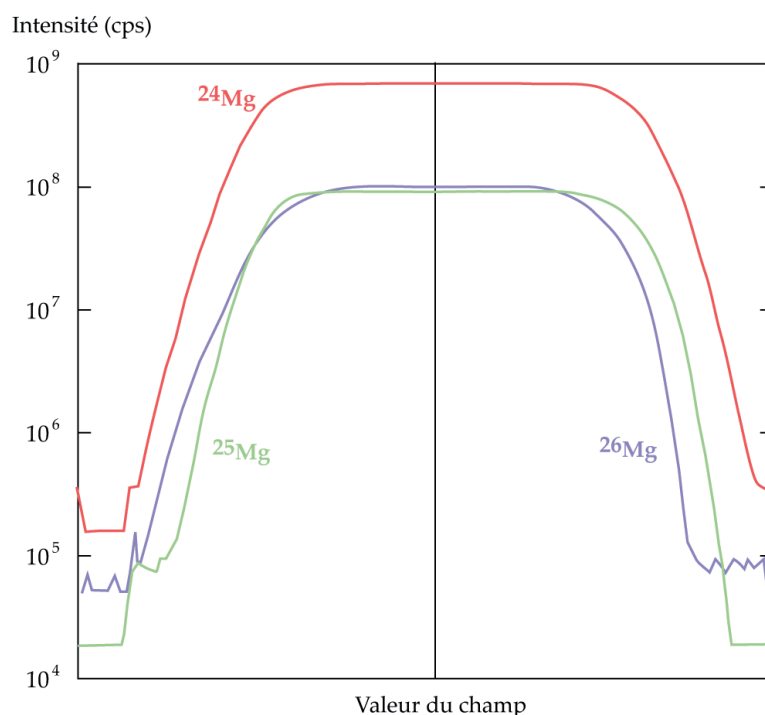


Fig. 15 : Forme des pics des trois isotopes du magnésium à environ 2500 de résolution de masse.

A cette RMP, les pics de l'hydrure de ^{24}Mg ($^{24}\text{MgH}^+$) et du $^{25}\text{Mg}^+$ ne sont pas séparés (Tableau 3). Cependant, des mesures effectuées à haute résolution de masse sur les standards montrent qu'un vide poussé dans la chambre à échantillon ($P < 3 \times 10^{-9}$ torr), suffit à rendre négligeable la contribution ($< 5 \times 10^{-6}$ de l'intensité de ^{25}Mg , soit moins de 0,005 % sur $\delta^{25}\text{Mg}$) de $^{24}\text{MgH}^+$ sur le $^{25}\text{Mg}^+$. La mesure du $^{27}\text{Al}^+$ étant effectuée pour connaître le rapport élémentaire Al/Mg pour chaque analyse, elle ne nécessite pas le même niveau de précision que les isotopes du Mg. Pour cette raison, nous ne nous préoccupons pas de l'interférence de $^{26}\text{MgH}^+$ sur le $^{27}\text{Al}^+$.

Tableau 3 : RMP nécessaire pour séparer les masses à mesurer de leurs interférences.

Isotopes	^{24}Mg	^{25}Mg	^{26}Mg	^{27}Al
	$^{54}\text{Cr}^{43}$ -1964	$^{50}\text{Cr}^2$ -1949	$^{52}\text{Cr}^2$ -2107	$^{54}\text{Cr}^2$ -2230
Interférences	$^{48}\text{Ca}^2$ -2731	^{24}MgH +3559	^{25}MgH +2347	$^{54}\text{Fe}^2$ -2298
	^{24}Mg -----			^{26}MgH +3042
	^{23}NaH +1910			

4.3.1. Variations de bruit de fond des cages de Faraday

Les rendements et bruits de fond des cages de Faraday sont mesurés au début de chaque session et sont pris en compte par le programme de l'ims 1270 lors des calculs de rapports isotopiques. Cependant, ces rendements et bruits de fond des amplificateurs des cages de Faraday, équipés de résistances 10^{10} Ohm pour L'2 et 10^{11} Ohm pour C, H1 et H'2 sont susceptibles de varier avec le temps, aussi sont ils mesurés au cours de chaque session d'analyses. Il s'avère que, si les rendements sont très stables, les bruits de fond présentent des variations au cours du temps. Des variations pouvant aller jusqu'à ± 5000 cps sont observées sur une échelle de temps d'une dizaine d'heures (à raison d'une mesure par heure, Fig. 16). De telles variations peuvent théoriquement introduire des biais significatifs

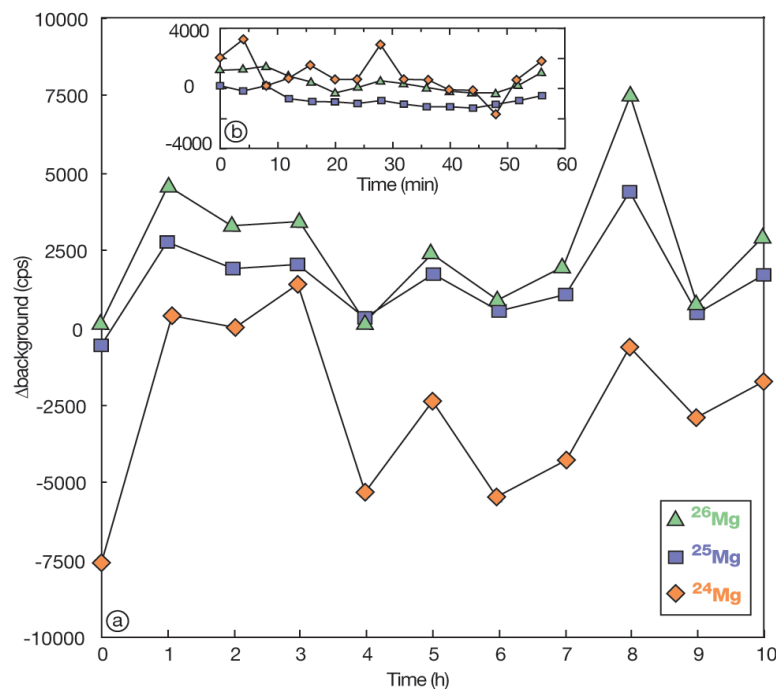


Fig. 16 : Variations des bruits de fond des cages de Faraday au cours du temps, normalisé aux valeurs initialement mesurées. a) variations sur une large échelle de temps et b) variations à court terme. L'amplitude des variations est plus large sur L'2 (^{24}Mg) car elle est équipée d'une résistance 10^{10} Ohm (au lieu de 10^{11} Ohm pour les autres cages).

($\leq \pm 0,04$ %) sur le $\delta^{25}\text{Mg}$ mesuré dans des phases minérales riches en Mg telle que l'olivine (dont l'intensité du ^{25}Mg est $\sim 1 \times 10^8$ cps dans les conditions analytiques décrites ci-dessus) ou de grosses erreurs ($\leq \pm 1,3$ %) dans les phases pauvres en Mg tel que la mésostase des chondres (dont l'intensité du ^{25}Mg est $\sim 3 \times 10^6$ cps).

Cependant, des mesures de bruit de fond effectuées régulièrement pendant une heure (à raison d'une mesure toutes les 4 min) montrent que les variations ne sont pas

erratiques, ce qui implique que l'évolution de ces variations est prévisible pour peu que les bruits de fond soient mesurés régulièrement (Fig. 16). D'autre part, les variations sont corrélées, notamment pour ^{25}Mg et ^{26}Mg , entre les différentes cages; ce qui annule en partie l'effet de ces variations sur les

valeurs de $\delta^{26}\text{Mg}^*$. En pratique, la stratégie analytique adoptée est la suivante : une mesure de bruit de fond des cages de Faraday (6 cycles de 30 secondes avec la fente en énergie fermée afin qu'aucun ion du faisceau secondaire n'arrive sur les cages) toutes les deux analyses, ce qui correspond en moyenne à une mesure de bruit de fond toutes les 30 minutes. Les valeurs de bruit de fond utilisées pour corriger chaque mesure sont ensuite déterminées par interpolation linéaire à partir des deux mesures de bruit de fond les plus proches.

4.3.2. Fractionnement de masse instrumental

Nous avons utilisé six standards de roche et minéraux terrestres pour calibrer le fractionnement de masse instrumental des isotopes du magnésium au cours des sessions analytiques : l'olivine San Carlos Fa₁₂, l'olivine Vitim 313-3, l'orthopyroxène Vitim 313-3, le clinopyroxène Vitim 313-3, le verre de MORB CLDR01 et le verre BCR-2G. Le fractionnement de masse instrumental noté α entre deux phases A et B s'exprime sous la forme d'une loi exponentielle :

$$\alpha_{A/B}^{25/24} = (\alpha_{A/B}^{26/24})^\beta$$

Avec $\alpha_{A/B}^{25/24} = \frac{(^{25}\text{Mg} / ^{24}\text{Mg})_A}{(^{25}\text{Mg} / ^{24}\text{Mg})_B}$ et β le facteur exponentiel.

Ou en notation δ : $\delta^{25}\text{Mg} = \beta \times \delta^{26}\text{Mg} + \delta^{26}\text{Mg}_0$ avec $\delta^{25}\text{Mg} = (\alpha_{A/B}^{25/24} - 1) \times 1000$

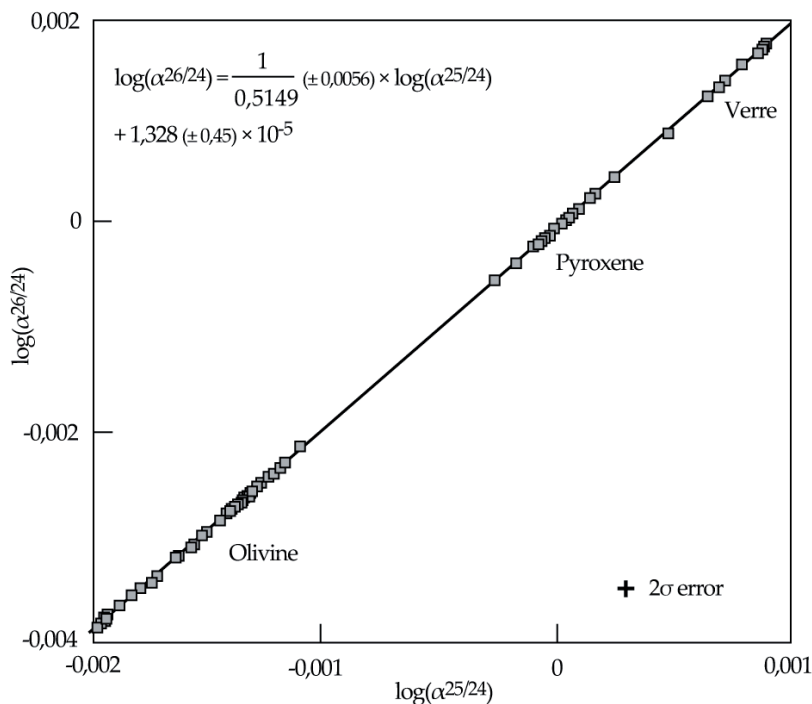


Fig. 17 : Exemple de droite de fractionnement de masse instrumental obtenu à partir des standards pour une session analytique. La régression est calculée avec le logiciel Isoplot 3.0 (Ludwig, 2003).

Les valeurs moyennes des rapports isotopiques du Mg déterminées dans l'orthopyroxène Vitim 313-3, soit $(^{25}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_B$ dans l'équation ci-dessus, lors de chaque session analytique ont été prises comme références lors du calcul des fractionnements de masse instrumentaux pour chaque mesure. La valeur de β , calculée pour chaque session à partir des standards, varie entre $\approx 0,505$ et $0,515$ suivant les sessions (Fig. 17).

L'excès de ^{26}Mg , noté $\Delta^{26}\text{Mg}$, correspond à l'écart par rapport à la droite de fractionnement de masse et s'exprime en ‰ :

$$\Delta^{26}\text{Mg} = \left(\frac{\alpha^{26/24}}{(\alpha^{25/24})^{1/\beta} \times \alpha_0^{26/24}} - 1 \right) \times 1000$$

$$\text{Ou en notation } \delta : \Delta^{26}\text{Mg} = \delta^{26}\text{Mg} - \left(\frac{1}{\beta} \times \delta^{25}\text{Mg} + \delta^{26}\text{Mg}_0 \right)$$

Conformément à leur origine terrestre, les standards ne montrent pas d'excès significatifs de ^{26}Mg . A titre d'exemple, la valeur moyenne de $\Delta^{26}\text{Mg}$ obtenue sur une session est de $0,001 \pm 0,005$ ‰ (erreur à 2σ sur 62 analyses). Cette erreur correspond à la reproductibilité externe typique que l'on obtient pour le calcul de $\Delta^{26}\text{Mg}$ (Fig. 18).

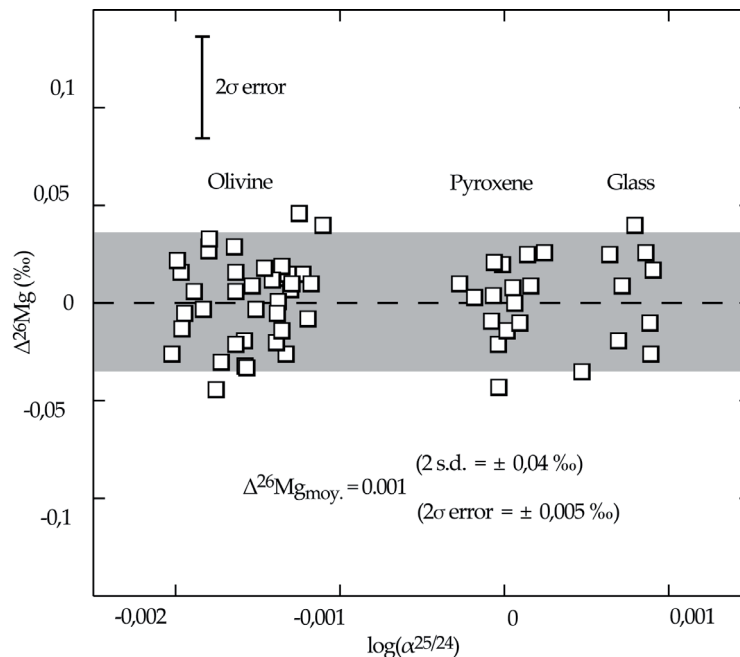


Fig. 18 : Excès de ^{26}Mg ($\Delta^{26}\text{Mg}$) mesuré dans des standards d'olivine, pyroxène et verre au cours d'une session analytique. La reproductibilité externe (2σ) est calculée en divisant l'écart-type (2 s.d.) par la racine carrée du nombre de mesure (62 dans le cas présent).

Dans les cas d'excès de ^{26}Mg dus à la décroissance radioactive de ^{26}Al , la notation usitée est $\delta^{26}\text{Mg}^*$. L'erreur interne (2σ) de $\delta^{26}\text{Mg}^*$ est calculée à partir des statistiques de comptage des

rappports $^{25}\text{Mg}/^{24}\text{Mg}$ et $^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg}$ ($\sigma_{\delta^{25}\text{Mg}}$ et $\sigma_{\delta^{26}\text{Mg}}$ respectivement) selon la formule :

$$\sigma_{\delta^{26}\text{Mg}^*} = 2 \times (\sigma_{\delta^{26}\text{Mg}}^2 + (\frac{1}{\beta} \times \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}})^2) - 2 \times (\frac{1}{\beta} \times \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}} \times \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}} \times \rho)^{0.5}$$

$$\text{Avec } \rho = \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}}^2 + \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}}^2 + \frac{\sigma_{\delta^{26}\text{Mg}/^{25}\text{Mg}}^2}{2 \times \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}} \times \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}}} = 0,6$$

Dans les chondres, les erreurs internes sont comprises entre $\pm 0,015 \%$ et $\pm 1,983 \%$ (voir annexe 1) selon les phases minérales analysées. En théorie, l'erreur finale sur $\delta^{26}\text{Mg}^*$ est calculée par la somme quadratique des erreurs internes dues à la statistique de comptage et de la reproductibilité externe déterminée sur les standards, i. e. $\pm 0,005 \%$. Mais étant donnée que l'erreur externe est négligeable au regard de l'erreur interne, seule cette dernière est conservée.

4.3.3. Rendements de ionisation du magnésium et de l'aluminium

Al et Mg n'ont pas les mêmes rendements de ionisation lorsqu'ils sont bombardés par le faisceau primaire. Cela implique que le rapport élémentaire $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ calculé pour chaque analyse n'est pas le rapport véritable de l'échantillon mesuré. Le rendement d'ionisation relatif de l'aluminium par rapport au magnésium est donné par la formule :

$$\text{Rdt (Al / Mg)} = \frac{(^{27}\text{Al}^+ / ^{24}\text{Mg}^+)_{\text{mesuré}}}{(^{27}\text{Al} / ^{24}\text{Mg})_{\text{vrai}}}$$

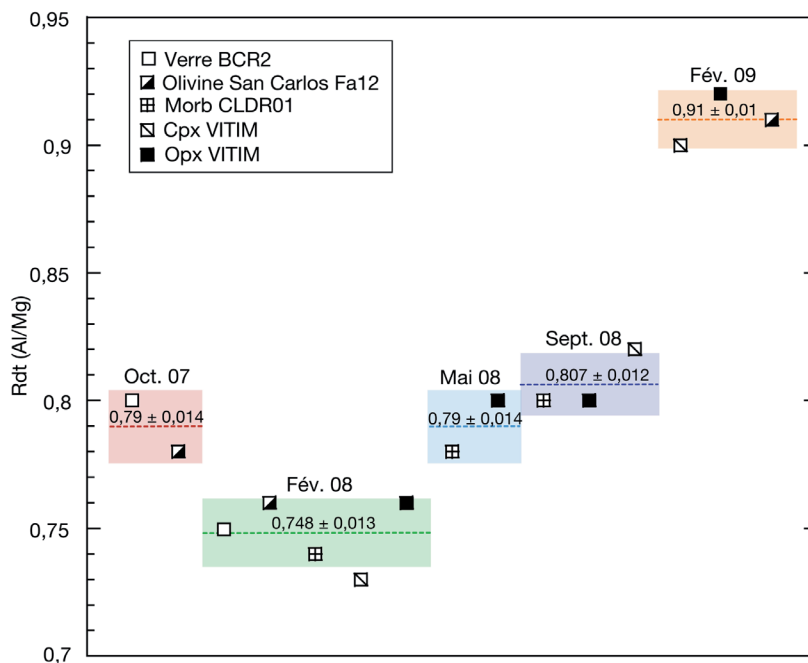


Figure 19 : Variations des rendements Al/Mg d'une session analytique à une autre.

Ce rendement Al/Mg est peu sensible à l'effet de matrice pour les silicates ou des verres de compositions proches avec des variations de l'ordre de $\pm 2\%$ (1 s.d.) entre les différents standards d'olivine, pyroxène et verre lors d'une même session (Fig. 19). En revanche, il doit être déterminé à chaque session analytique car il varie significativement d'une séance à l'autre (entre 0,75 et 0,91 au cours de la thèse) selon les réglages de la sonde ionique.

Les erreurs associées aux rapports $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ dans le Tableau de l'annexe 1 tiennent compte de la variabilité du rendement due à l'effet de matrice et à la reproductibilité des mesures, ainsi que de l'erreur sur le rapport $(^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg})_{\text{vrai}}$ ($\pm 7\%$ en relatif).

Chapitre 5

Chronologie de Formation des Chondres à l'Echelle du Chronomètre Isotopique ^{26}Al - ^{26}Mg

1. Introduction	97
2. Distribution homogène de l' ^{26}Al dans le système solaire et chronologie de formation des chondres	98
2.1. Résumé de l'article	98
2.2. «Homogeneous Distribution of ^{26}Al in the Solar System from the Mg Isotopic Composition of Chondrules» – Article publié dans le magazine Science.	100
3. Apport de l'étude des compositions isotopiques du Mg sur l'origine des olivines réfractaires	106
3.1. Résumé de l'article	106
3.2. «Magnésium Isotopes Constraints on the Origin of Refractory Olivines from the Allende Chondrite: Nebular versus Planetary?» – Article soumis à EPSL.	107
4. Y a t'il un lien entre les compositions chimiques et les âges ^{26}Al - ^{26}Mg de formation des chondres?	132
4.1. Introduction	132
4.2. Approche analytique	135
4.3. Présentation des résultats	136
4.3.1. Pétrographie et minéralogie des chondres	136
4.3.2. Compositions chimiques des chondres	141
4.3.3. Relations entre les âges relatifs et les compositions chimiques	145
4.4. Discussion	147

1. Introduction

Parmi l'ensemble des radioactivités éteintes, l' ^{26}Al est celle qui a été et qui est la plus étudiée (voir chap. 3, partie 6.1.), pour la simple et bonne raison qu'elle représente potentiellement le plus précis des chronomètres pour dater les processus de formation des premiers solides dans le système solaire au cours des quelques premiers millions d'années de son histoire. Cependant, l'in-

interprétation des différences de rapports $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ initiaux en terme de différences d'âges dépend de l'hypothèse d'homogénéité de la distribution de l' ^{26}Al et des isotopes du Mg dans la nébuleuse solaire (voir chap. 3, partie 4). Actuellement, et bien que plusieurs observations aillent dans le bon sens (i.e. existence d'un rapport canonique pour les CAIs, assez bonne concordance (notamment pour les CAIs et les chondres) entre les chronomètres Pb-Pb et ^{26}Al - ^{26}Mg et absence d'anomalie des isotopes du Mg dans les échantillons des planètes telluriques, la Lune et les chondrites), aucun argument ne permet d'affirmer avec certitude la validité de cette hypothèse et encore moins de tester le degré d'homogénéité. En revanche, ces observations, associées au fait que la présence d' ^{26}Al ait été trouvée dans une grande variété d'échantillons (e.g. CAIs, chondres, météorites différenciées ...) indiquent que l' ^{26}Al était largement répandu dans le disque d'accrétion, tout au moins dans sa partie interne.

Les travaux portant sur les mesures des compositions isotopiques du Mg en roche totale et *in situ* dans les chondres ne présentent pour le moment pas la précision nécessaire permettant de déterminer à la fois les valeurs de la pente de l'isochrone, i. e. le rapport $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ initial $[(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0]$, et de l'ordonnée à l'origine, i.e. la composition isotopique initiale du Mg ($\delta^{26}\text{Mg}^*_0$), tel qu'il est possible de le faire pour les mesures en roche totale des CAIs d'Allende (Bizzarro et al., 2004, 2005; Thrane et al., 2006; Jacobsen et al., 2008). Or, pour pouvoir tester la validité de l'hypothèse d'homogénéité, il est primordial de déterminer ces deux paramètres des isochrones des chondres afin de pouvoir comparer leurs compositions isotopiques du Mg avec celles des CAIs d'Allende. Ainsi, il a été développé au cours de cette thèse, une technique analytique de mesure *in situ* des isotopes du Mg de très haute précision par sonde ionique, permettant de déterminer à la fois le $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ et le $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ sur des isochrones internes de chondres (voir Chap. 4, partie 4.3.). Dans un premier temps, cette technique analytique a permis de tester l'hypothèse d'homogénéité et de quantifier le degré d'homogénéité. Dans un second temps, elle a été appliquée à l'étude des âges relatifs de cristallisation des chondres ainsi qu'à l'étude de l'origine et des âges de formation des précurseurs des chondres. Les résultats de ces études ainsi que les implications qui en découlent sur les processus et la chronologie de formation des chondres font l'objet du présent chapitre.

2. Distribution homogène de l' ^{26}Al dans le système solaire et chronologie de formation des chondres

2.1. Résumé de l'article

La composition isotopique du Mg a été mesurée avec précision dans 14 chondres ferromagnésiens et 1 chondre alumineux de la chondrite ordinaire Semarkona. Les chondres ferromagnésiens présentent des isochrones internes très bien définies avec des $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ compris entre $1,619 (\pm 0,167) \times 10^{-5}$ et $3,023 (\pm 1,240) \times 10^{-6}$ et des $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ compris entre $-0,0185 (\pm 0,0140)\%$ et $0,0047$

($\pm 0,0098$)‰. Le chondre alumineux pour sa part présente des excès constants de ^{26}Mg , i.e. $\delta^{26}\text{Mg}^* = 0,098$ ($\pm 0,016$) ‰, qui ne sont pas corrélés avec les rapports élémentaires Al/Mg, indiquant que le dernier épisode de cristallisation de ce chondre est survenu lorsque $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 < 10^{-6}$, i.e. lorsqu'il était trop faible pour être mesuré, soit au moins 4 Ma après la formation des CAIs si l'on interprète cette donnée en terme de chronologie.

La comparaison de ces données pour les chondres ferromagnésiens avec la courbe d'évolution de la composition isotopique du Mg dans la nébuleuse solaire, calculée en faisant l'hypothèse d'homogénéité, montre que les chondres de Semarkona, les CAIs d'Allende (Jacobsen et al., 2008) et la Terre s'alignent sur la courbe d'évolution ce qui implique que l' ^{26}Al et les isotopes du Mg étaient répartis de façon homogène dans la nébuleuse solaire interne (échantillonnée par les CAIs d'Allende, les chondres de Semarkona et la Terre) au moment de la formation des CAIs d'Allende. D'autre part, la distribution des compositions isotopiques des chondres ferromagnésiens de Semarkona indique que le degré d'hétérogénéité est au maximum de $\pm 10\%$.

Du fait de l'homogénéité de la distribution de l' ^{26}Al et des isotopes du Mg, les $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ et les $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ mesurés dans les chondres et les CAIs peuvent être interprétés en terme de chronologie. La composition isotopique en Mg du chondre alumineux implique que ses précurseurs ont été formés au plus tard 0,87 (+0,19/-0,16) Ma après les CAIs. Les chondres ferromagnésiens de Semarkona présentent des âges de cristallisation, i.e. âges du dernier épisode de fusion, qui débutent 1,23 (+0,12/-0,10) Ma après les CAIs et qui se prolongent pendant 1,77 (+0,66/-0,47) Ma.

Le fait que l' ^{26}Al et les isotopes du Mg soient répartis de façon homogène dans la partie interne du disque d'accrétion et que la radioactivité éteinte de l' ^{26}Al ait valeur de chronomètre a des implications très importantes sur les processus de formation et d'évolution des chondres dans le disque d'accrétion, sur l'origine des radioactivités éteintes mais aussi sur la dynamique même du disque d'accrétion :

- Si l'on s'intéresse à la distribution des probabilités de densité des âges des chondres de Semarkona provenant de cette étude ainsi que des études antérieures (Hutcheon et Hutchison, 1989; Russell et al., 1997; Kita et al., 2000; Ruraswami et al., 2008), on observe cinq épisodes majeurs de fusion des chondres à $\sim 1,2, 1,6, 2,1, 2,4$ et $2,9$ Ma après les CAIs. De plus, si on étudie cette même distribution pour l'ensemble des chondres des chondrites ordinaires et carbonées (Russell et al., 1996; Kita et al., 2000; Hutcheon et al., 2000; Mostefaoui et al., 2002; Yurimoto et Wasson, 2002; Hsu et al., 2003; Kunihiro et al., 2004; Sugiura et Krot, 2007; Nagashima et al., 2007, 2008; Rudraswami et Goswami, 2007; Rudraswami et al., 2008; Kurahashi et al., 2008), quatre autres épisodes de forma-

tion des chondres peuvent être identifiés à 1,9, 2,2, 2,6 et 4,3 Ma après les CAIs. Cela indique que sur l'ensemble du créneau de formation des chondres, i.e. ~ 3 Ma, il ne semble exister qu'un nombre limité d'épisodes de fusion. S'il est confirmé dans l'avenir, ce résultat serait une contrainte très forte sur les modèles de formation des chondres puisqu'il imposerait un mécanisme à la fois répétitif, cyclique et persistant sur une période de temps de ~ 3 Ma.

- Les différences d'intensités dans les distributions des âges de formation des chondres peuvent être interprétées de deux façons différentes : (i) soit elles reflètent les différences d'intensités du mécanisme de formation des chondres au cours du temps, (ii) soit elles reflètent la mauvaise préservation des chondres dans le disque avant leur accréation aux corps parents des chondrites. Même s'il n'est pas possible de privilégier une des deux hypothèses par rapport à l'autre, il est important de noter que l'âge modèle de formation des précurseurs du chondre alumineux implique que ceux-ci ont été préservés dans la nébuleuse solaire pendant au moins 3 Ma, avant la formation du chondre. Un âge aussi précoce pour la formation des précurseurs des chondres est tout à fait cohérent avec les âges modèles déduits des analyses en roche totale des chondres, ce qui indique des âges de formation des précurseurs des chondres pouvant être synchrones de la formation des CAIs (Galy et al., 2000; Bizzarro et al., 2004, 2005).

- Une homogénéisation efficace et rapide de ^{26}Al est prédite par les modèles d'évolution de la nébuleuse dans le cas d'une injection de ^{26}Al par une supernova (Boss, 2007). En revanche, rien de tel n'est prévu pour l'instant modélisé pour une origine de ^{26}Al par irradiation. D'autre part, les processus d'irradiation ne semblent pas suffisamment efficaces pour produire un rapport ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$) de 5×10^{-5} dans l'ensemble du système solaire interne au moment de la formation des CAIs (Duprat et Tatischeff, 2007; Fitoussi et al., 2008).

2.2. «Homogeneous Distribution of ^{26}Al in the Solar System from the Mg Isotopic Composition of Chondrules» – Article publié dans le magazine Science.

The following resources related to this article are available online at www.sciencemag.org (this information is current as of August 21, 2009):

Updated information and services, including high-resolution figures, can be found in the online version of this article at:

<http://www.sciencemag.org/cgi/content/full/325/5943/985>

Supporting Online Material can be found at:

<http://www.sciencemag.org/cgi/content/full/325/5943/985/DC1>

This article **cites 28 articles**, 2 of which can be accessed for free:

<http://www.sciencemag.org/cgi/content/full/325/5943/985#otherarticles>

This article has been **cited by 1** articles hosted by HighWire Press; see:

<http://www.sciencemag.org/cgi/content/full/325/5943/985#otherarticles>

This article appears in the following **subject collections**:

Geochemistry, Geophysics

http://www.sciencemag.org/cgi/collection/geochem_phys

Information about obtaining **reprints** of this article or about obtaining **permission to reproduce this article** in whole or in part can be found at:

<http://www.sciencemag.org/about/permissions.dtl>

The observed spatial and spectral variations in the photon imaging of the Ag chain (Figs. 3C and 4B) are dominated by the LDOS of the Ag₁₀ chain, as described by Eq. 4, and coupling to the plasmons serves to strengthen the emitted light intensity. Because of the relative spatial uniformity of the initial state, the emitted light intensity is highlighted by the gradient of the final state, $\frac{dV_f}{dx}$. In (7), the data led to the conclusion that light emission is caused by the coupling of the initial state $|i\rangle$ and final state $|f\rangle$ via the IET process, $\langle i|\mathbf{V}|f\rangle$, where \mathbf{V} is the interaction potential. In our experiment, it is refined by Fermi's golden rule, in which $|i\rangle$ and $|f\rangle$ are connected by the momentum operator \mathbf{p} , as $\langle i|\mathbf{p}|f\rangle$. This refinement and the association of \mathbf{V} with \mathbf{p} are not revealed by spectroscopy at discrete points as in (7). The transition still goes through the same initial and final states, but the momentum operator in the matrix element gives rise to the seemingly surprising spatial images.

Although only results from Ag₁₀ are presented here, the correspondence between nodes and emission maxima was also observed for Ag₂ through Ag₀. The wave functions for the particle-in-a-box-like atomic chains are simple and exhibit distinct features in energy and space, most notably the nodal structures. By varying the bias

voltage to control tunneling electrons and the radiative transition in inelastic tunneling, the STM is used to obtain spatially and spectrally resolved photon images that lead to direct visualization of Fermi's golden rule, one of the fundamental principles in quantum mechanics. In addition, these results reveal the basic mechanisms underlying optical phenomena at the nanoscale, where light fields with wavelengths much greater than the dimension of the radiator are enhanced by coupling to plasmons.

References and Notes

1. M. F. Crommie, C. P. Lutz, D. M. Eigler, *Nature* **363**, 524 (1993).
2. H. C. Manoharan, C. P. Lutz, D. M. Eigler, *Nature* **403**, 512 (2000).
3. N. Nilius, T. M. Wallis, W. Ho, *Science* **297**, 1853 (2002).
4. T. M. Wallis, N. Nilius, W. Ho, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 236802 (2002).
5. X. H. Qiu, G. V. Nazin, W. Ho, *Science* **299**, 542 (2003).
6. S. W. Wu, G. V. Nazin, W. Ho, *Phys. Rev. B* **77**, 205430 (2008).
7. G. V. Nazin, X. H. Qiu, W. Ho, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 216110 (2003).
8. R. Berndt *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 102 (1995).
9. R. Berndt *et al.*, *Science* **262**, 1425 (1993).
10. G. Schull, M. Becker, R. Berndt, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 136801 (2008).
11. The details of this experiment are available as supporting material on *Science Online*.
12. R. Berndt, J. K. Gimzewski, P. Johansson, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3796 (1991).

13. P. Johansson, R. Monreal, P. Apell, *Phys. Rev. B* **42**, 9210 (1990).
14. K. Meguro, K. Sakamoto, R. Arafune, M. Satoh, S. Ushioda, *Phys. Rev. B* **65**, 165405 (2002).
15. B. C. Stipe, M. A. Rezaei, W. Ho, *Science* **280**, 1732 (1998).
16. R. Berndt, J. K. Gimzewski, *Phys. Rev. B* **48**, 4746 (1993).
17. J. Yan, Z. Yuan, S. Gao, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 216602 (2007).
18. S. A. Maier, H. A. Atwater, *J. Appl. Phys.* **98**, 011101 (2005).
19. G. Hoffmann, L. Libiouille, R. Berndt, *Phys. Rev. B* **65**, 212107 (2002).
20. N. Nilius, T. M. Wallis, W. Ho, *J. Phys. Chem.* **109**, 20657 (2005).
21. G. C. Schatz, M. A. Ratner, *Quantum Mechanics in Chemistry* (Dover, New York, 2002), chap. 4 and 5.
22. S. C. Lui, M. H. Kang, E. J. Mele, E. W. Plummer, D. M. Zehner, *Phys. Rev. B* **39**, 13149 (1989).
23. Supported by the Chemical Science, Geo- and Bioscience Division, Office of Science, U. S. Department of Energy, under grant DE-FG02-04ER1595, and by the Alexander von Humboldt Foundation through a Feodor Lynen Fellowship to C.A.B. We thank R. Wu, D. L. Mills, P. Chu, Y. Jiang, and N. Ogawa for inspiring discussions.

Supporting Online Material

www.sciencemag.org/cgi/content/full/325/5943/981/DC1
Materials and Methods
Fig. S1

6 April 2009; accepted 26 June 2009
10.1126/science.1174592

Homogeneous Distribution of ²⁶Al in the Solar System from the Mg Isotopic Composition of Chondrules

Johan Villeneuve,^{1*} Marc Chaussidon,¹ Guy Libourel^{1,2}

The timing of the formation of the first solids in the solar system remains poorly constrained. Micrometer-scale, high-precision magnesium (Mg) isotopic analyses demonstrate that Earth, refractory inclusions, and chondrules from primitive meteorites formed from a reservoir in which short-lived aluminum-26 (²⁶Al) and Mg isotopes were homogeneously distributed at ±10%. This level of homogeneity validates the use of ²⁶Al as a precise chronometer for early solar system events. High-precision chondrule ²⁶Al isochrons show that several distinct chondrule melting events took place from ~1.2 million years (My) to ~4 My after the first solids condensed from the solar nebula, with peaks between ~1.5 and ~3 My, and that chondrule precursors formed as early as 0.87^{+0.19}_{-0.16} My after.

Models of the evolution of the early solar system rely on knowledge of the precise time scales for the physical and chemical processes that occurred in the early accretion disk and led to the formation of calcium-aluminum-rich inclusions (CAIs) and chondrules, which are the building blocks of

primitive meteorites (chondrites). Short-lived ²⁶Al [half-life ($T_{1/2}$) = 0.73 million years (My)] is possibly the most accurate chronometer for the first few million years of solar system history, provided that it was homogeneously distributed in the disk. Previous studies of various meteoritic components showed that ²⁶Al was widespread in the disk, but its level of homogeneity has never been quantified precisely. From numerous mineral ²⁶Al isochrons in CAIs, a canonical value of $\sim 5 \times 10^{-5}$ was inferred for the initial ²⁶Al/²⁷Al ratio [hereafter (²⁶Al/²⁷Al)₀] when CAIs crystallized (1). This value is slightly lower than 5.23 (±0.13) × 10⁻⁵, which was determined from the bulk ²⁶Al isochron of

Allende CAIs (2) [used in our work instead of 5.85 (±0.05) × 10⁻⁵ (3)], which indicates that the crystallization of CAIs followed closely after (50,000 years at most) the condensation of their precursors. The bulk ²⁶Al isochron precisely defines an initial Mg isotopic composition ($\delta^{26}\text{Mg}^*_0$) for CAI precursors of -0.040 ± 0.029 per mil (‰) (2). If ²⁶Al and Mg isotopes were homogeneously distributed in the inner solar system, then CAIs $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ can be taken as the initial Mg isotopic composition of the solar system when ²⁶Al/²⁷Al was 5.23 (±0.13) × 10⁻⁵. Any object that formed later (when ²⁶Al/²⁷Al < 5.23 × 10⁻⁵) must be characterized by a more radiogenic $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ value. The increase of $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ is a function of the Al/Mg ratio of the reservoir in which the object, or its precursors, resided before the last melting event. Al-rich and ferromagnesian chondrules from unequilibrated ordinary chondrites (UOCs) and carbonaceous chondrites (CCs) show mineral ²⁶Al isochrons with (²⁶Al/²⁷Al)₀ < 2 × 10⁻⁵ (4–12); that is, much lower than that of CAIs. Because the $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ of chondrules has never been precisely determined, the data from chondrules cannot be compared to those of CAIs nor to the theoretical Mg isotope growth curve calculated for the solar nebula for a homogeneous distribution of ²⁶Al and Mg isotopes.

We developed high-precision analysis of Al and Mg isotopes using the Centre de Recherches Petrographiques et Geochimiques (CRPG)–CNRS Cameca ion microprobe (ims 1270) to determine precisely (even for low Al/Mg ratios)

¹Centre de Recherches Petrographiques et Geochimiques (CRPG)–Nancy Université–CNRS, UPR 2300, 15 Rue Notre-Dame des Pauvres, Boite Postale 20, 54501 Vandoeuvre-lès-Nancy, France. ²Ecole Nationale Supérieure de Géologie (ENSG)–Nancy Université, Rue du Doyen Marcel Roubault, Boite Postale 40, 54501 Vandoeuvre-lès-Nancy, France.

*To whom correspondence should be addressed. E-mail: johanv@crpg.cnrs-nancy.fr

both the slope [from which comes access to $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$] and the intercept ($\delta^{26}\text{Mg}^*_0$) of mineral ^{26}Al isochrons in chondrules. We performed multicollection analyses of ^{24}Mg , ^{25}Mg , ^{26}Mg , and ^{27}Al using four Faraday cups (figs. S1 and S2) (13) in the major silicate phases (olivine, low-Ca pyroxene, and mesostasis) of 15 chondrules [three type I (FeO-poor), 11 type II (FeO-rich), and one Al-rich] from the LL3.0 UOC Semarkona. A typical external reproducibility of $\pm 0.005\%$ (2σ) can be obtained for $\delta^{26}\text{Mg}^*$ in magnesium silicate standards (fig. S2) (13). In chondrules, internal errors (2σ) for $\delta^{26}\text{Mg}^*$ were $\pm 0.015\%$ to $\pm 1.98\%$, depending on Mg content (table S1).

The 14 ferromagnesian chondrules show well-resolved mineral isochrons (two examples are shown in Fig. 1, with the remainder shown in fig. S4), with $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ ranging from $1.619 (\pm 0.167) \times 10^{-5}$ to $3.023 (\pm 1.240) \times 10^{-6}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ values ranging from $-0.0185 (\pm 0.0140)\%$ to $0.0047 (\pm 0.0098)\%$ for Sem-Ch138, Sem-Ch83, and Sem-Ch121, respectively (table S1). Because most Mg-rich olivines in type I chondrules might not have crystallized from the chondrule melt (14, 15), it is theoretically not correct to calculate an isochron between olivine and glass in Sem-Ch2. The $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ for Sem-Ch2 can, however, be determined precisely (fig. S4). The Al-rich chondrule (Sem-Ch4) shows constant ^{26}Mg excesses [$\delta^{26}\text{Mg}^* = 0.098 (\pm 0.016)\%$,

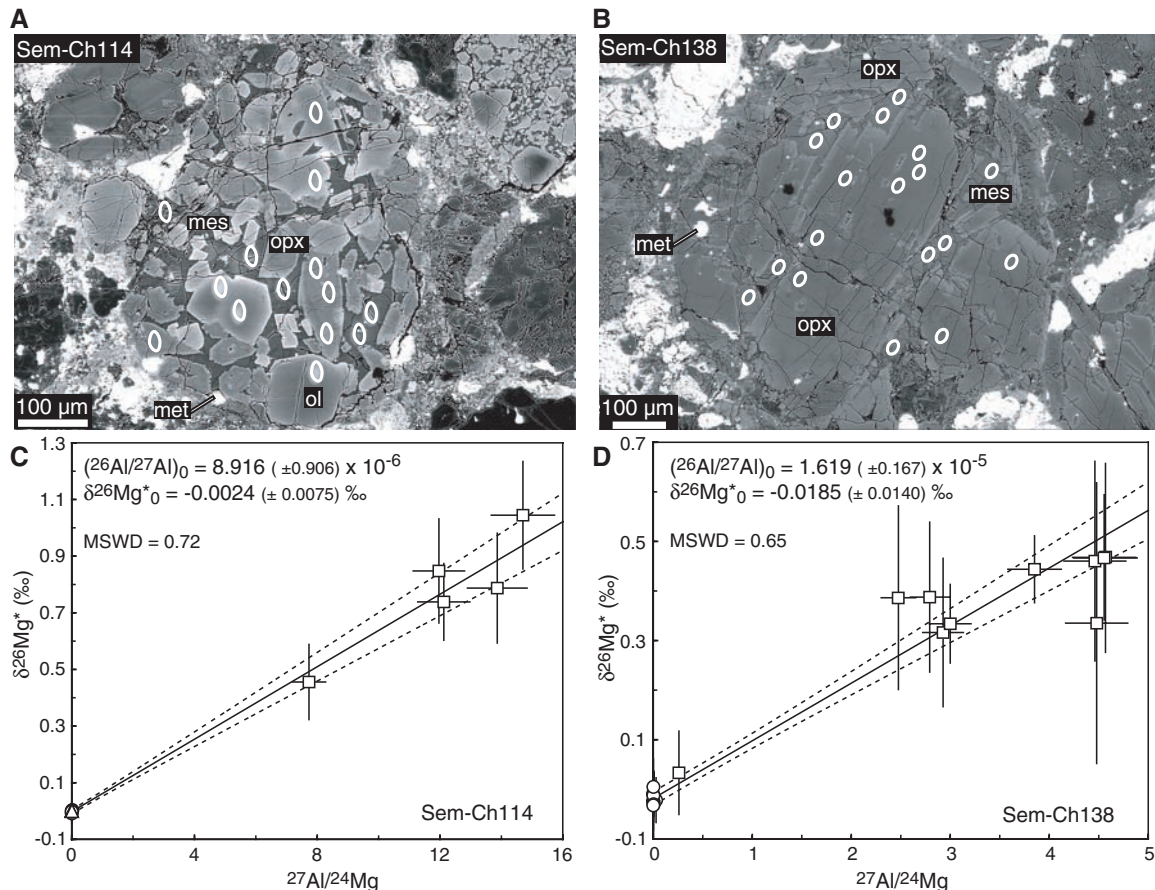
fig. S4] that are not correlated with Al/Mg ratio but would indicate that the last melting event occurred at least 4 My after CAIs; that is, when $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 < 10^{-6}$.

Because of their high precision, the present chondrule Al-Mg data can be compared to the growth curve calculated for Mg isotopes in the solar nebula, assuming a simple closed-system evolution (Fig. 2). If ^{26}Al and Mg isotopes were homogeneously distributed in the nebula, any chondrule formed at a given time t , from precursors extracted from the nebula at that time, must have $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ identical to those of the nebula growth curve at time t . The present ferromagnesian chondrules do plot, within errors, on the solar nebula growth curve, on which Earth also plots (Fig. 2), implying a homogenous distribution of ^{26}Al and Mg isotopes in the inner solar nebula at the time of formation of CAIs. The clustering of chondrule data along the solar nebula growth curve implies a relative heterogeneity of $\sim \pm 10\%$ (that is, $\pm 0.5 \times 10^{-5}$ for $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratios and $\pm 0.004\%$ for $\delta^{26}\text{Mg}^*$, fig. S5). However, this is an upper bound, because part of the chondrule variability may be due to the following: (i) different closed-system evolution paths for up to ~ 1 My with bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ slightly different from chondritic ratio and (ii) the possible presence within chondrule precursors of CAI-type material. One-million-year-old CAIs would have a bulk

$\delta^{26}\text{Mg}^*$ of $\sim -0.42\%$ (for a bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ of 2), implying that their fraction in chondrule precursors could not be higher than $\sim 1\%$ (that is, $0.004/0.42$). Finally, it can be seen from Fig. 2 that the bulk ^{26}Al isochron for CAIs with $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 = 5.85 (\pm 0.05) \times 10^{-5}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_0 = -0.0317 (\pm 0.0038)\%$ (3) is not consistent with a homogeneous distribution of ^{26}Al , because that conclusion would imply a positive terrestrial $\delta^{26}\text{Mg}^*$ value of $\sim -0.015\%$ (16), and is not consistent with most of our chondrule data.

The ^{26}Al and Mg isotopic homogeneity of the solar system inferred from our data are not in conflict with the existence of supracanonical $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratios (up to 7×10^{-5}) (17) or of large $\delta^{26}\text{Mg}^*$ variations in hibonites (up to 4%) (18). A variability of $\pm 0.5 \times 10^{-5}$ for $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratio simply implies that the fraction of components having supra-canonical ratios within CAIs and chondrules precursors was less than $\sim 7\%$. Similarly, a variability of $\pm 0.004\%$ for $\delta^{26}\text{Mg}^*$ implies that the fraction of hibonite-type material was less than $\sim 0.1\%$. In such a homogeneous accretion disk, the composition of the Al-rich chondrule can be simply understood as the result of an earlier extraction of its precursors from the nebula followed by a protracted closed-system evolution until the last melting event. A closed-system evolution model based on the bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratio of the Al-rich chon-

Fig. 1. (A and B) Back-scattered electron image of two Semarkona type II chondrules: porphyritic olivine-pyroxene chondrule Sem-Ch114 and porphyritic pyroxene chondrule Sem-Ch138 (white circles show ion probe spots). The major mineral phases are olivine (ol), low-Ca pyroxene (opx) surrounded by glassy mesostasis (mes), and a few Fe-Ni metal grains (met). **(C and D)** Isochron diagrams obtained from 14 and 18 ion probe analyses, respectively (open circles are for low-Ca pyroxene, open triangles for olivine, and the open square for mesostasis, plotted with 2σ error bars) (fig. S4, table S1) (13).



drule (determined at 0.70 from chemical mapping by secondary electron microscopy) implies that its precursors were extracted from the nebula $\sim 0.87^{+0.19}_{-0.16}$ My after CAIs (Fig. 2). This could have happened earlier if the precursors did not remain as a closed system for Al and Mg and if,

for example, Mg was added to the precursors by condensation, as has been proposed for Al-rich chondrules (19). For the ferromagnesian chondrules, which have $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratios close to the chondritic ratio (0.10 to 0.23 for our 13 chondrules), it is not possible to identify an early ex-

traction of their precursors (for example, 1 My earlier) from the present data (with an error of ± 0.01 to $\pm 0.02\%$ on $\delta^{26}\text{Mg}^*$), because their evolution in a closed system before melting would overlap, within errors, with the solar nebula growth curve.

Because ^{26}Al and Mg isotopes are homogeneously distributed in the inner solar system (within approximately $\pm 10\%$), different values of $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ among chondrules imply the existence of individual melting events at different times; for example, $\sim 1.77^{+0.66}_{-0.47}$ My between chondrule Sem-Ch138 and chondrule Sem-Ch83 (table S1). Our data can be used, in conjunction with data from previously published chondrules ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ (table S2), to investigate whether several major melting episodes can be identified or whether chondrule formation was a continuous process. Because data precision is variable, to make a meaningful comparison between all the data, we calculated a probability density distribution that sums the Gaussian distributions $f(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_{0,\sigma}$ calculated for each chondrule. The distribution of the 14 ferromagnesian Semarkona chondrules clearly shows five distinct episodes (Fig. 3) at 1.2, 1.6, 2.1, 2.4, and 2.9 My after CAIs [taking $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ for CAIs of 5.23×10^{-5}] (2). These five episodes are consistent with the $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ measured previously in 11 other Semarkona chondrules (Fig. 3 and table S2) (8, 10, 12); the two most prominent peaks in the distribution are at 2.1 and 2.4 My. Four other episodes of chondrule formation at 1.9, 2.2, 2.6, and 4.3 My can be tentatively identified considering all the available data for UOCs and CCs (Fig. 3 and table S2) (4–7, 9, 11). A Kolmogorov-Smirnov statistical test applied to these distributions confirms that the differences shown in Fig. 3 are statistically significant: The probability for the age distributions to be different between UOC and CC chondrules is 99%. In addition, even with only 25 chondrules, the age distribution of Semarkona chondrules is statistically the same as that of UOC chondrules (82%). Available Pb-Pb ages [from 0.6 (± 1.6) My to 5.8 (± 1.0) My after CAIs] (20–23) are consistent with ^{26}Al ages but not sufficiently precise to identify specific episodes of chondrule formation. The possible existence of a limited number of melting events over a few million years is a fundamental constraint to consider in models of chondrule formation.

The large scatter in the age distribution of chondrules (Fig. 3)—with $\sim 10\%$ of all chondrules formed between 0 and 1.5 My after CAIs, $\sim 40\%$ formed between 1.5 and 2.1 My, $\sim 40\%$ formed between 2.1 and 2.8 My, and $\sim 10\%$ formed beyond 2.8 My after CAIs—can be interpreted in two opposite ways: (i) the peak intensities reflect different magnitudes of chondrule formation at specific times and thus the major episodes of chondrule formation (for UOCs and CCs) would have taken place ~ 1.5 to ~ 3 My after CAIs; or (ii) the variable peak intensities reflect the poor efficiency of chondrule preserva-

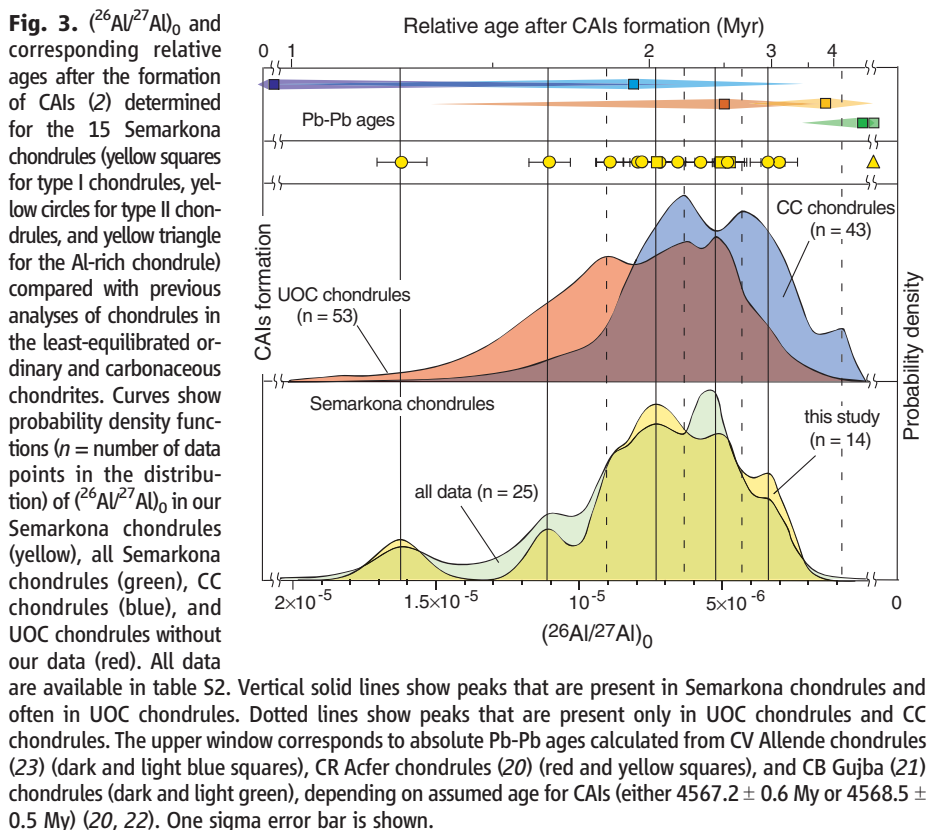
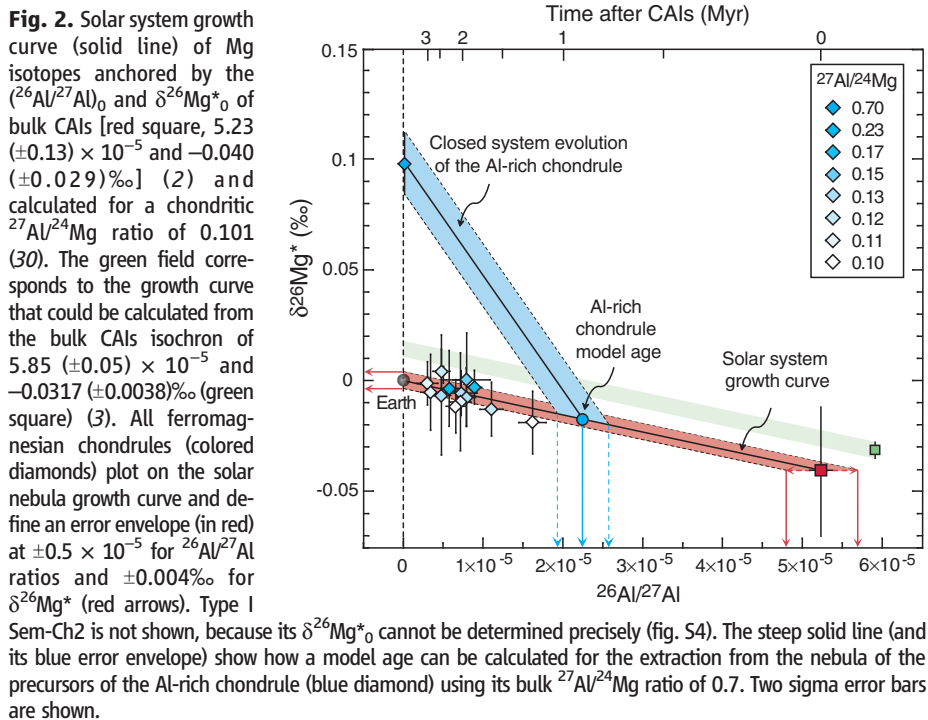


Fig. 2. Solar system growth curve (solid line) of Mg isotopes anchored by the $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*$ of bulk CAIs [red square, $5.23 (\pm 0.13) \times 10^{-5}$ and $-0.040 (\pm 0.029)\%$] (2) and calculated for a chondritic $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratio of 0.101 (30). The green field corresponds to the growth curve that could be calculated from the bulk CAIs isochron of $5.85 (\pm 0.05) \times 10^{-5}$ and $-0.0317 (\pm 0.0038)\%$ (green square) (3). All ferromagnesian chondrules (colored diamonds) plot on the solar nebula growth curve and define an error envelope (in red) at $\pm 0.5 \times 10^{-5}$ for $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratios and $\pm 0.004\%$ for $\delta^{26}\text{Mg}^*$ (red arrows). Type I Sem-Ch2 is not shown, because its $\delta^{26}\text{Mg}^*$ cannot be determined precisely (fig. S4). The steep solid line (and its blue error envelope) show how a model age can be calculated for the extraction from the nebula of the precursors of the Al-rich chondrule (blue diamond) using its bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratio of 0.7. Two sigma error bars are shown.

Fig. 3. $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ and corresponding relative ages after the formation of CAIs (2) determined for the 15 Semarkona chondrules (yellow squares for type I chondrules, yellow circles for type II chondrules, and yellow triangle for the Al-rich chondrule) compared with previous analyses of chondrules in the least-equilibrated ordinary and carbonaceous chondrites. Curves show probability density functions (n = number of data points in the distribution) of $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ in our Semarkona chondrules (yellow), all Semarkona chondrules (green), CC chondrules (blue), and UOC chondrules without our data (red). All data are available in table S2. Vertical solid lines show peaks that are present in Semarkona chondrules and often in UOC chondrules. Dotted lines show peaks that are present only in UOC chondrules and CC chondrules. The upper window corresponds to absolute Pb-Pb ages calculated from CV Allende chondrules (23) (dark and light blue squares), CR Acfer chondrules (20) (red and yellow squares), and CB Gujba (21) chondrules (dark and light green), depending on assumed age for CAIs (either 4567.2 ± 0.6 My or 4568.5 ± 0.5 My) (20, 22). One sigma error bar is shown.

tion in the accretion disk before the accretion of UOC and CC parent bodies. In the later scenario, chondrites would be enriched in chondrules formed shortly before accretion (which was constrained for H4 UOC at $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} \approx 2 \times 10^{-7}$ from the metamorphic cooling of the parent body) (24). Although there is no evidence to favor one of these two extreme hypotheses over the other, it is obvious from the Al-rich chondrule that its precursors were extracted from the nebula $\sim 0.87_{-0.16}^{+0.19}$ My after CAIs and that they remained isolated in the nebula for up to ~ 3 My before chondrule formation. The presence of chondrules of different origins and different ages in the same few cubic centimeters of Semarkona is consistent with astrophysical models of the disk. Radial mixing by turbulence can efficiently distribute solids within 10 astronomical units in several tens of thousands of years, as long as these solids are small (millimeter or centimeter size) and are coupled to the gas (25), but the rate of destruction of these solids by accretion either by the Sun or by forming planetesimals is unknown. The observed age distribution (Fig. 3) does not exclude an early intense period (~ 1 My after CAIs or even before) of chondrule formation (or extraction of chondrule precursors), as was suggested by high $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ inferred from bulk analyses of chondrules (26–28).

Our results imply the following: (i) that ^{26}Al was efficiently homogenized (within $\sim \pm 10\%$) in the inner solar system, (ii) that no substantial ^{26}Al (in excess of $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} = 5 \times 10^{-5}$) was produced in the disk after time “zero” as defined by the bulk isochron of CAIs, and (iii) that the ^{26}Al - ^{26}Mg systematic has a chronological significance. Nebular models do predict an efficient

homogenization of ^{26}Al at $\sim \pm 10\%$ in the case of an external seeding of the accretion disk with ^{26}Al injected by a nearby supernova (29). In the case of the production of ^{26}Al by irradiation, it is not clear that such a level of homogeneity can be reached, unless most of the irradiated material is evaporated before time zero.

References and Notes

- G. J. Macpherson, A. M. Davis, E. K. Zinner, *Meteoritics* **30**, 365 (1995).
- B. Jacobsen *et al.*, *Earth Planet. Sci. Lett.* **272**, 353 (2008).
- K. Thrane, M. Bizzarro, J. A. Baker, *Astrophys. J.* **646**, L159 (2006).
- T. Kunihiro, A. E. Rubin, K. D. McKeegan, J. T. Wasson, *Geochim. Cosmochim. Acta* **68**, 2947 (2004).
- K. Nagashima, A. N. Krot, M. Chaussidon, *Meteorit. Planet. Sci.* **42**, A115 (2007).
- N. Sugiura, A. N. Krot, *Meteorit. Planet. Sci.* **42**, 1183 (2007).
- E. Kurahashi, N. T. Kita, H. Nagahara, Y. Morishita, *Geochim. Cosmochim. Acta* **72**, 3865 (2008).
- I. D. Hutcheon, R. Hutchison, *Nature* **337**, 238 (1989).
- S. S. Russell, G. Srinivasan, G. R. Huss, G. J. Wasserburg, G. J. MacPherson, *Science* **273**, 757 (1996).
- N. T. Kita, H. Nagahara, S. Togashi, Y. Morishita, *Geochim. Cosmochim. Acta* **64**, 3913 (2000).
- S. Mostefaoui *et al.*, *Meteorit. Planet. Sci.* **37**, 421 (2002).
- N. G. Rudraswami, J. N. Goswami, B. Chattopadhyay, S. K. Sengupta, A. P. Thapliyal, *Earth Planet. Sci. Lett.* **274**, 93 (2008).
- Materials and methods are available as supporting material on Science Online.
- G. Libourel, A. N. Krot, *Earth Planet. Sci. Lett.* **254**, 1 (2007).
- M. Chaussidon, G. Libourel, A. N. Krot, *Geochim. Cosmochim. Acta* **72**, 1924 (2008).
- M. Chaussidon, M. Gounelle, *C. R. Geosci.* **339**, 872 (2007).
- E. D. Young *et al.*, *Science* **308**, 223 (2005).

- M.-C. Liu, K. D. McKeegan, A. M. Davis, *Lunar Planet. Sci. XXXVII*, 2428 (2006).
- H. Nagahara, N. T. Kita, K. Ozawa, Y. Morishita, *Geochim. Cosmochim. Acta* **72**, 1442 (2008).
- Y. Amelin, A. N. Krot, I. D. Hutcheon, A. A. Ulyanov, *Science* **297**, 1678 (2002).
- A. N. Krot, Y. Amelin, P. Cassen, A. Meibom, *Nature* **436**, 989 (2005).
- A. Bouvier *et al.*, *Geochim. Cosmochim. Acta* **71**, 1583 (2007).
- Y. Amelin, A. Krot, *Meteorit. Planet. Sci.* **42**, 1321 (2007).
- E. Zinner, C. Gopel, *Meteoritics* **27**, 311 (1995).
- D. Bockelee-Morvan, D. Gautier, F. Hersant, J. M. Hure, F. Robert, *Astron. Astrophys.* **384**, 1107 (2002).
- A. Galy, E. D. Young, R. D. Ash, R. K. O’Nions, *Science* **290**, 1751 (2000).
- M. Bizzarro, J. A. Baker, H. Haack, *Nature* **431**, 275 (2004).
- M. Bizzarro, J. A. Baker, H. Haack, *Nature* **435**, 1280 (2005).
- A. P. Boss, *Astrophys. J.* **660**, 1707 (2007).
- K. Lodders, *Astrophys. J.* **591**, 1220 (2003).
- We gratefully thank C. Rollion-Bard, D. Mangin, and M. Champenois for their implication and expertise in ion probe techniques; J. Ravaux and A. Kohler for their help with SEM analysis; and J. Marin and P. Burnard for their attentive rereading. Constructive comments by three anonymous reviewers and fruitful discussions with F. Robert and M. Gounelle were highly appreciated and greatly improved this manuscript. This work was funded by L’Agence Nationale de la Recherche grant ANR-08-BLAN-0260-02 T-Tauri, Chem, and European Research Council grant ERC 226846 Cosmochemical Exploration of the first two Million Years of the Solar System (CEMYSS). This is CRPG publication number 2001.

Supporting Online Material

www.sciencemag.org/cgi/content/full/325/5943/985/DC1
Materials and Methods
Figs. S1 to S5
Tables S1 to S2
References

23 March 2009; accepted 19 June 2009
10.1126/science.1173907

Adjoint Tomography of the Southern California Crust

Carl Tape,^{1*} Qinya Liu,² Alessia Maggi,³ Jeroen Tromp⁴

Using an inversion strategy based on adjoint methods, we developed a three-dimensional seismological model of the southern California crust. The resulting model involved 16 tomographic iterations, which required 6800 wavefield simulations and a total of 0.8 million central processing unit hours. The new crustal model reveals strong heterogeneity, including local changes of $\pm 30\%$ with respect to the initial three-dimensional model provided by the Southern California Earthquake Center. The model illuminates shallow features such as sedimentary basins and compositional contrasts across faults. It also reveals crustal features at depth that aid in the tectonic reconstruction of southern California, such as subduction-captured oceanic crustal fragments. The new model enables more realistic and accurate assessments of seismic hazard.

The objective of seismic tomography is to produce detailed three-dimensional (3D) images of Earth’s interior by minimizing the differences between simulated (or “synthetic”) seismograms and recorded (or “observed”) seismograms. Seismic tomography has been successful in producing images of Earth’s interior, such

as large-scale variations in the mantle (1, 2), subducting slabs (3), and mantle plumes (4). These tomographic studies adopt a simple 1D (layered) reference model (5), which allows for computationally inexpensive procedures within the minimization problem. Highly accurate numerical methods, such as the spectral-element method

(SEM), may now be used to compute synthetic seismograms at regional and global scales, allowing tomographers to start the minimization procedure with more realistic 3D initial models and simulations (6–9). We demonstrated in this study that these numerical methods may be exploited within the minimization problem by using adjoint methods (10–12). We refer to this procedure as “adjoint tomography” (13).

Southern California provides an excellent setting for the two-fold objective of fitting seismograms and characterizing the crust. The station coverage (fig. S2A), especially in the Los Angeles region, is one of the densest in the world. A detailed 3D seismological model of the southern California crust has been constructed from a

¹Seismological Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, CA 91125, USA. ²Department of Physics, University of Toronto, Ontario M5S 1A7, Canada. ³Institut de Physique du Globe, Université de Strasbourg, 67084 Strasbourg, France. ⁴Department of Geosciences and Program in Applied and Computational Mathematics, Princeton University, Princeton, NJ 08544, USA.

*To whom correspondence should be addressed. E-mail: carltape@gps.caltech.edu

3. Apport de l'étude des compositions isotopiques du Mg sur l'origine des olivines réfractaires

3.1. Résumé de l'article

Les mesures *in situ* par sonde ionique des compositions isotopiques du Mg des olivines réfractaires de 6 chondres de type I PO et de 2 olivines isolées provenant de la chondrite Allende, ainsi que des olivines de la pallasite Eagle Station montre des variations significatives des abondances en ^{26}Mg , i.e. $\delta^{26}\text{Mg}^*$, par rapport à la Terre. Bien que la plupart des valeurs moyennes de $\delta^{26}\text{Mg}^*$ (noté $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$) de chaque objet soient négatives, la gamme totale de variation pour les olivines réfractaires des chondres d'Allende s'étend entre $-0,033 (\pm 0,011) \text{‰}$ et $+0,013 (\pm 0,008) \text{‰}$, avec même une olivine à $+0,043 (\pm 0,002) \text{‰}$. Les olivines d'Eagle Station présentent pour leur part un $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ de $-0,032 (\pm 0,009) \text{‰}$. Les olivines réfractaires de certains chondres d'Allende ainsi que les olivines d'Eagle Station ont des $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ aussi négatifs que la valeur $\delta^{26}\text{Mg}^*$ initiale du système solaire, i.e. $-0,038 (\pm 0,004) \text{‰}$ au moment de la formation des CAIs d'Allende lorsque $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}) = 5,23 \times 10^{-5}$ (Jacobsen et al., 2008).

Dans la mesure où ^{26}Al et les isotopes du Mg étaient répartis de façon homogène dans la nébuleuse solaire, ces variations de $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ dans les olivines réfractaires des chondres d'Allende et les olivines d'Eagle Station peuvent refléter l'enrichissement plus ou moins important en ^{26}Mg , par décroissance radioactive du ^{26}Al , des réservoirs à partir desquels les olivines sont formées. D'autre part, puisque les olivines réfractaires ne contiennent pas d'Al et que leurs compositions isotopiques en Mg n'ont pas été perturbées, il est possible de calculer des âges modèles de cristallisation à partir de leurs $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ en fonction de différents modèles d'évolution de la composition isotopique du Mg suivant l'origine des olivines réfractaires.

Dans le cas d'une origine nébulaire des olivines réfractaires, les $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ impliquent une formation à partir d'un réservoir (gaz et/ou poussières) avec un rapport Al/Mg chondritique entre $\sim 0,15 \text{ Ma}$ et $\sim 3,5 \text{ Ma}$ après les CAIs. Puisque ces olivines réfractaires sont sous forme de reliques dans les chondres, cela signifie que la formation de ces derniers est au mieux contemporaine de celle des reliques d'olivines qu'ils renferment. Cependant, cette origine ne semble pas être en mesure d'expliquer les $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ supérieurs à la valeur terrestre.

Dans le cas d'une origine planétaire des olivines réfractaires, les $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ impliquent que certains planétésimaux étaient différenciés (ou en cours de différenciation) $\sim 0,15 \text{ Ma}$ après la formation des CAIs. Ce modèle permet d'expliquer l'ensemble des $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ mesurés, y compris les

valeurs supérieures à la valeur terrestre. La valeur de $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ très basse mesurée dans les olivines d'Eagle Station est un argument supplémentaire en faveur de ce modèle puisqu'elle implique nécessairement la différenciation très précoce du planétésimal parent d'Eagle Station, i.e. $\sim 0,18$ Ma après les CAIs. Il est important de noter que ces âges de différenciation de planétésimaux sont des âges maxima puisqu'ils sont calculés en considérant que les olivines mesurées sont issues des premiers stades de différenciation.

Cette étude implique que l'accrétion et la différenciation de certains planétésimaux est très précoce dans l'histoire du système solaire, avant même la formation de la plupart des chondres. Ces résultats sont en bon accord avec la chronologie Hf - W qui prédit que la formation des noyaux des planétésimaux parents des météorites de fer magmatiques s'est produite avant $\sim 1,5$ Ma après la formation des CAIs (Kleine et al., 2005; Markowski et al., 2006; Schésten et al., 2006). Finalement, ces données suggèrent que l'accrétion, voire la différenciation, de certains planétésimaux est contemporaine ou peut être plus ancienne que la formation des CAIs de type B d'Allende.

3.2. «Magnésium Isotopes Constraints on the Origin of Refractory Olivines from the Allende Chondrite: Nebular versus Planetary?» – Article soumis à EPSL.

Magnesium isotopes constraints on the origin of refractory olivines from the Allende chondrite: nebular versus planetary?

Johan Villeneuve^{a,*}, Marc Chaussidon^a, Guy Libourel^{a,b}

^aCentre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques - Nancy Université - CNRS, UPR 2300, 15 Rue Notre-Dame des Pauvres, BP20, 54501 Vandoeuvre-lès-Nancy, France

^bEcole Nationale Supérieure de Géologie-Nancy Université, Rue du Doyen Marcel Roubault, BP40, 54501 Vandoeuvre-lès-Nancy, France

Corresponding author: *johanv@crpg.cnrs-nancy.fr
chocho@crpg.cnrs-nancy.fr
libou@crpg.cnrs-nancy.fr

tel: (+33) 3 83 59 42 11

fax: (+33) 3 83 51 17 98

Abstract

High precision Mg isotope measurements by multi-collector ion microprobe show that refractory olivines from the Allende chondrite, either olivines isolated in the matrix (2 samples studied) or olivines in type I chondrules (6 samples studied), have variable $\delta^{26}\text{Mg}^*$ enrichments and deficits (calculated in permil as the ^{26}Mg deviation from the instrumental mass fractionation line) relative to the Earth. Most average $\delta^{26}\text{Mg}^*$ (noted $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$) values (between 10 and 20 analyses per chondrule) are negative but the total range is from $-0.029 (\pm 0.010) \text{‰}$ (2 sigma errors) to $+0.011 (\pm 0.011) \text{‰}$ with an exception of one olivine at $+0.043 (\pm 0.023) \text{‰}$. These variations in $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ reflect the formation of the olivines from reservoirs enriched in various amounts of ^{26}Mg by the decay of short-lived ^{26}Al ($T_{1/2} = 0.73 \text{ Ma}$). Similarly, 30 analyses of olivines from the Eagle Station pallasite show a $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ value of $-0.033 \pm 0.008 \text{‰}$, as negative as some olivines from Allende chondrules and the Solar system initial $\delta^{26}\text{Mg}^*$ value of $-0.038 \pm 0.004 \text{‰}$ (defined at the time of formation of type B Ca-Al-rich inclusions - CAIs - when $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} = 5.23 \times 10^{-5}$, Jacobsen et al., 2008).

Because olivines are Al-poor and because their Mg isotopic compositions are not reset during the chondrule forming events, their $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ can be used to calculate model crystallization ages relative to various theoretical Mg isotope growth curves. The two end-member scenarios considered are (i) a «nebular» growth in which the Al/Mg ratio remains chondritic and (ii) a «planetary» growth in which a significant increase of the Al/Mg ratio can be due to, for instance, olivine magmatic fractionation. The low $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ value of olivines from the Eagle Station pallasite demonstrate that metal-silicate differentiation occurred as early as $\sim 0.15^{+0.29}_{-0.23} \text{ Ma}$ after CAIs in either of the growth scenarios. Similarly the variable $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values of refractory olivines can be understood if they were formed in planetesimals which started to differentiate as early as the Eagle Station parent body. Accretion of these planetesimals must have been coeval to the formation of CAIs and their disruption could explain why their fragments (Mg-rich olivines) were distributed in the chondrule forming regions of the disk.

Keywords: refractory olivines, Mg isotopic composition, Allende chondrite, Eagle station pallasite, early solar system chronology, chondrules.

1. Introduction

Although extensively studied, the origin of chondrules, the major high-temperature component of primitive meteorites (i.e. chondrites), remains highly debated (see review by Zanda, 2004). Textures and chemical compositions indicate that chondrules were formed by varying degrees of melting of solid precursors during brief, possibly repetitive, high temperature events (Jones et al., 2005). Melting has been proposed to occur either in a nebular setting or during collisions between planetesimals (see reviews by Boss, 1996; Desch et al., 2005; Sanders and Taylor, 2005; Hutchison et al., 2005). The shock-wave model (Ciesla and Hood, 2002; Desch and Connolly, 2002) is currently the most popular to explain repetitive melting events in the accretion disk, although the nature of shock waves is still under debate (Boss and Durisen, 2005). Also debated is the nature of chondrule precursors and the conditions of melting, i.e. open- or closed-system relative to the nebula gas (Jones et al., 2005; Hewins et al., 2005).

The process that formed chondrules is exemplary of the complexity of the processes which took place in the accretion disk. The question of the origin of olivines in chondrules is an example of the kinds of questions that cosmochemists ask about the early solar system. While it is clear that Fe-rich olivines in porphyritic type II chondrules (for which iron is oxidized) crystallized from the chondrule melt, there is good chemical, isotopic and petrographic arguments to indicate that type II chondrules can also contain relict Mg-rich olivines (Pack et al., 2004; Ruzicka et al., 2007). Mg-rich olivines are widespread in porphyritic type I chondrules (for which iron is reduced) and it has been shown from textural, chemical and isotopic observations that they did not crystallize from the melt corresponding to the chondrule mesostasis (Libourel et al., 2006; Chaussidon et al., 2008). It has been recently suggested that porphyritic type I chondrules result from the partial melting of precursor Mg-rich olivines and Fe-Ni metal accompanied by extensive interaction with the nebular gas (Tisandier et al., 2002; Krot et al., 2004; Libourel et al., 2006; Libourel and Krot, 2007). These olivines and metal aggregates were interpreted as potential fragments from pre-existing thermally processed planetesimals which were differentiated and broken by collision very early in the Solar System history (Libourel et al., 2006; Libourel and Krot, 2007). In such a model, the origin of chondrule precursors can be linked to collisions between planetesimals but the formation of chondrules took place in a nebula setting. To summarize, three very different origins can be anticipated for Mg-rich olivines in type I chondrules: (i) directly condensed from the nebular gas, (ii) inherited from earlier generations of chondrules and (iii) inherited from fragments of disrupted planetesimals.

Isotopic dating might provide some constraints on the origin of Mg-rich olivines in type

I chondrules. Mineral ^{26}Al isochrons in chondrules show that chondrules have recorded melting events that may have started as early as 1 Ma after the formation of CAIs (Jacobsen et al., 2008) and lasted for a few Ma (Kita et al., 2005; Villeneuve et al., 2009 and references therein). It has also been shown from ^{26}Al bulk analyses that chondrules may have started to form at the same time as CAIs (Galy et al., 2000; Bizzarro et al., 2004; 2005a). Recently, we have been able, for the first time, to measure with high enough precision by ion microprobe (at the micrometer scale) the Mg isotopic compositions in order to determine both the slope [$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ ratio] and the initial [$(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_0$ ratio] of ^{26}Al mineral isochrons in chondrules (Villeneuve et al., 2009). These results allowed to test the hypothesis of homogeneity for the distribution of ^{26}Al and Mg isotopes in the accretion disk by comparing the data to a theoretical growth curve of Mg isotopes (i) calculated by assuming isotopic homogeneity and the chondritic $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratio of 0.101 (Lodders, 2003) for the solar nebula and (ii) anchored by the initial Mg isotopic composition of type B CAIs from Allende chondrite (Jacobsen et al., 2008). The remarkable agreement between chondrule data and the theoretical growth curve seems to indicate that ^{26}Al and Mg isotopes were homogeneously distributed at a level of $\pm 10\%$ in the inner solar system, sampled by Allende type B CAIs, Semarkona chondrules and the Earth, at the time of formation of type B CAIs (Villeneuve et al., 2009). This result confirms that ^{26}Al is probably one of the most effective tools for dating early solar system events.

An issue, however, is that ^{26}Al dating is not directly applicable to olivines because they do not contain Al and therefore no radiogenic ^{26}Mg excess (as a convention noted hereafter $\delta^{26}\text{Mg}^*$) accumulated since their formation. A way to bypass this difficulty would be to try to calculate ^{26}Al model ages for olivines from their Mg isotopic composition by using appropriate Mg isotopes growth curves. The lack of Al in olivines might, in fact, be an advantage since olivines must “fossilize” the Mg isotopic composition established at the time of their crystallization. It has been shown that relict olivines in type I chondrules have preserved their pristine ^{16}O -rich signature (Chaussidon et al., 2008), meaning that O isotopes did not re-equilibrate significantly by diffusion between olivine and chondrule melt during the brief chondrule forming events. Since, similarly, Mg self-diffusion in olivine would not exceed a few μm during a flash melting-like event, e. g. $\sim 5 \mu\text{m}$ for a temperature of 1700 K during 24 hours and a self-diffusion coefficient of $1 \times 10^{-11.5} \text{ cm}^2/\text{s}$ (Jurewicz and Watson, 1988; Desch and Connolly, 2002), one would expect that Mg-rich olivines in type I chondrules have preserved a relict Mg isotopic composition. The difficulty, then, to determine model ages from the Mg isotopic compositions is obviously the very small range of variation of $\delta^{26}\text{Mg}^*$ expected in objects sampling the inner solar system, i. e. $\sim 0.04\%$ (e.g. Villeneuve et al., 2009). Thus, we tried to take advantage of our high precision ion probe procedure for the measurement of the ^{26}Al - ^{26}Mg systematic (Villeneuve et al., 2009) to study the Mg isotopic composition of a set of Mg-rich olivines from the Allende carbonaceous chondrite, for which relict olivines with strong ^{16}O enrichments are

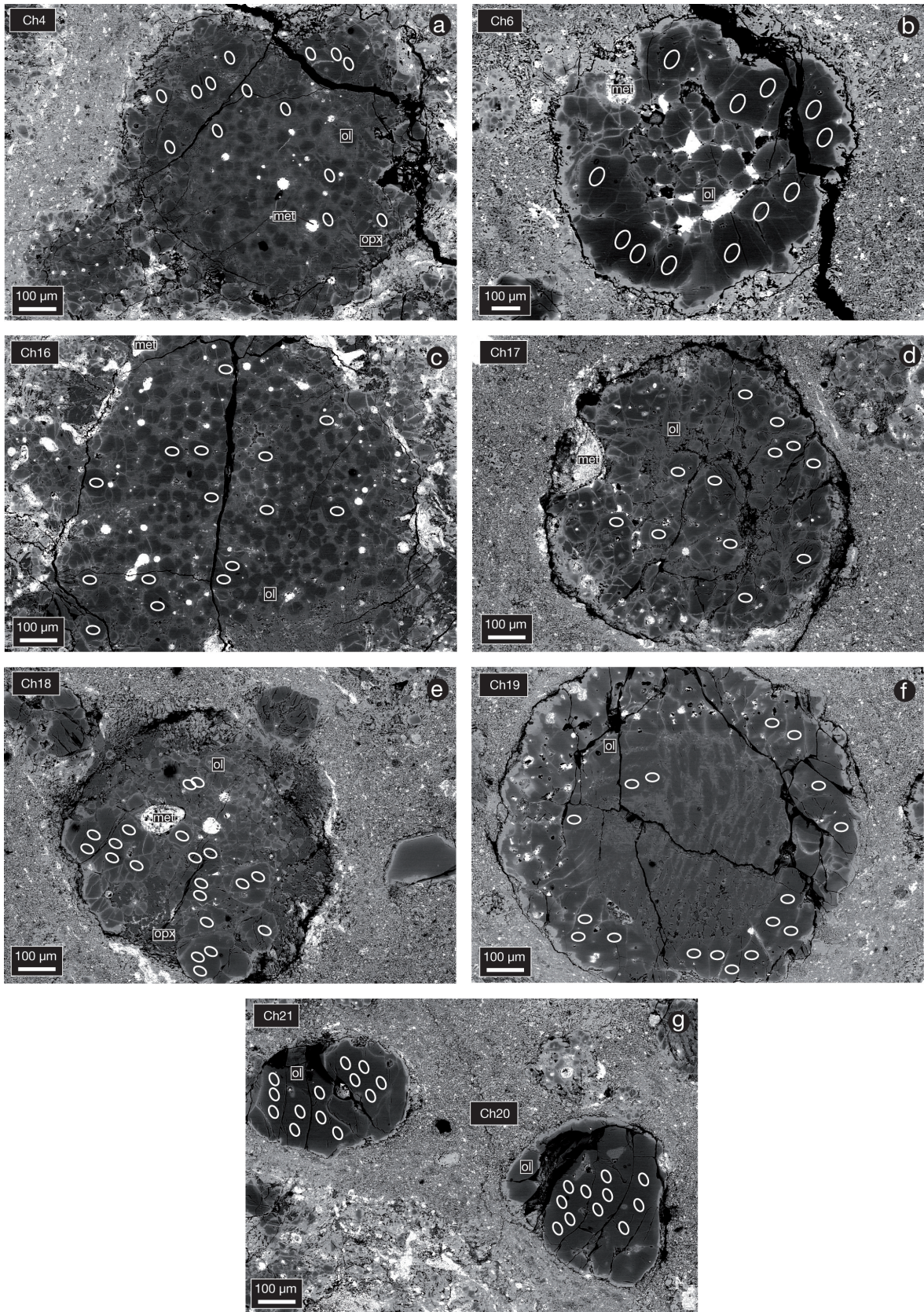
quite common (Chaussidon et al., 2008). The objective was to evaluate whether precise enough time constraints could be obtained in such a way and hopefully to better constrain the origin of Mg-rich olivines. We also measured the Mg isotopic composition of olivines from the Eagle Station pallasite (ESP) which shows similar ^{16}O enrichments to Allende relict olivines (Clayton and Mayeda, 1996). Note that negative $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values were already found in pallasite (Tomiyaama et al., 2006, see discussion).

2. Material

Eight isolated Mg-rich olivine grains and olivine-rich porphyritic (PO) type I chondrules were selected in a section of Allende for in situ Mg isotopes measurements by ion microprobe. The major criterion was a large enough size for multiple analyses for a typical ion probe spot ($\sim 25 \mu\text{m}$ in diameter). The olivines were studied for their mineralogy, petrography and chemistry in backscattered electrons (BSE) by using the Hitachi S-4800 scanning electron microscope and the Cameca SX-100 electron microprobe at Université Henri Poincaré of Nancy. Fig. 1 shows the main petrographic features of the studied objects. After ion probe analysis, special attention was paid to the chemical composition of the olivines, especially to their FeO content, in order to make sure that the data set was restricted to the most Mg-rich olivines ($> \text{Fo}_{95}$), by inference the ones which are the most different from the olivine composition in equilibrium with the chondrule melt (bulk chemical compositions of studied olivines in each object are given in Table 1).

Pallasites are stony-irons meteorites composed of roughly equal amounts of silicate (mainly olivine), metal and troilite (Mittlefehldt et al., 1998; Krot et al., 2003). They are regarded as possible fragments of differentiated planetesimals (maybe from the core-mantle boundary, Mittlefehldt et al., 1998). Among the pallasites, Eagle Station grouplet is characterised by a metal composition having very high Ge/Ga ratios closed to IIF irons meteorites, Bocaiuva anomalous iron meteorite and metal in CO/CV chondrites (Scott, 1977; Kracher et al., 1980; Malvin et al., 1985) and oxygen isotopic

Fig. 1: Backscattered electron images of the studied magnesian type I porphyritic chondrules (a-f) and isolated Mg-rich olivines (g) from the CV carbonaceous chondrite Allende showing their different textures. Major mineral phases are olivine (ol), low-Ca pyroxene (opx) and Fe-Ni metal grains (met). White circles show ion probe spots. (a and c) PO Ch4 and Ch16 chondrules show numerous small corroded grains of forsteritic olivine (Mg-rich) and small grains of Fe-Ni metal surrounded by patches of devitrified mesostasis. (b, d) PO Ch6 and Ch17 are containing coarse-grained aggregates composed of corroded forsteritic olivine and large Fe-Ni metal grains surrounded by a devitrified mesostasis. In Ch6, granoblastic textures described by Libourel and Krot, 2007) are observable. (e) POP (porphyritic olivine pyroxene) Ch18 chondrule looks like an assembling of various sized olivines grains, surrounded low-Ca pyroxene, mostly on the edge. (f) Ch19 chondrule shows characteristics of a barred olivine chondrule with elongated forsteritic olivine grains in the core mixed with a PO chondrule with coarse grains of forsteritic olivine and small Fe-Ni grains on the edge. (g) Ch 20 and 21 are large isolated grains of forsteritic olivine.



compositions quite similar to those of CO/CV chondrites and Bocaiuva ($\Delta^{17}\text{O} = -4.51\text{‰}$ for ESP and -4.39‰ for Bocaiuva respectively, Clayton and Mayeda, 1996).

3. Analytical procedures

Mg isotopic compositions of Mg-rich olivines were measured with multi-collectors Cameca ims 1270 and Cameca ims 1280HR2 ion microprobes at CRPG-CNRS by using procedures previously developed (Villeneuve et al., 2009). The $^{24}\text{Mg}^+$, $^{25}\text{Mg}^+$, $^{26}\text{Mg}^+$ and $^{27}\text{Al}^+$ were measured in multicollection mode by using four Faraday cups respectively on L'2, C, H1 and H'2 trolleys. A primary O⁻ beam of ~ 30 nA intensity and $\sim 25\mu\text{m}$ size was used in order to obtain a typical count rate of 1×10^9 to 2×10^9 counts/s for $^{24}\text{Mg}^+$ in olivine. A measurement consists of 50 cycles of 10 sec each preceded by a pre-sputtering of 240 sec. To insure large flat top peaks with the 1270 ion microprobe, the mass resolution ($M/\Delta M$) was kept at ~ 2500 by using the multicollection slit number one. Although this mass resolution does not allow to remove totally the $^{24}\text{MgH}^+$ interference on the $^{25}\text{Mg}^+$ peak since the mass resolution between these two species is 3559, steady vacuum conditions in the sample chamber ($P < 3 \times 10^{-9}$ torr) kept the hydride contribution as negligible. Measurements made with the

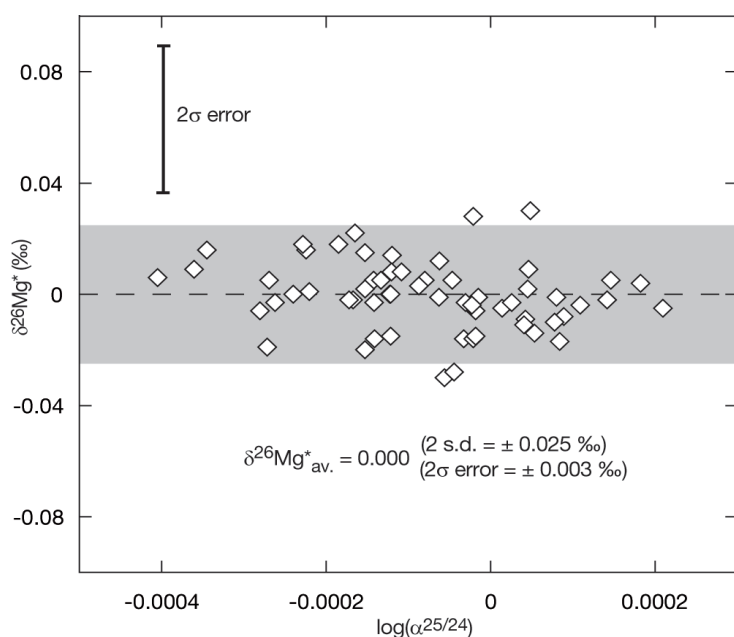


Fig. 2: ^{26}Mg excesses measured in San Carlos olivine during one analytical session of 6 days, expressed in ‰ as $\delta^{26}\text{Mg}^* = (10^{\log \alpha(26/24)} - (1/0.515 \times \log \alpha(25/24) + 0.00000134) - 1) \times 1000$. Each point corresponds to one analysis at a different spot (the individual 2 sigma errors being given by the bar). All the analyses were made between the analyses of the present samples. $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ is the average of all the analyses. The 2σ error on $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ is calculated by dividing the standard deviation (s.d.) by the square root of the number of analyses of San Carlos during this session ($n=60$). Note that this procedure allows to determine the $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values of San Carlos as terrestrial (by definition 0‰) to $\pm 0.003\text{‰}$, provided that we are ready to performed at least 50 analyses.

ims 1270 on San Carlos and ESP olivines, at high mass resolution (~ 6000) with the axial electron multiplier and with the same vacuum conditions, showed that the count rate of $^{24}\text{MgH}^+$ did not exceed a few counts/s, i.e. less than 0.0001‰ on $\delta^{25}\text{Mg}$. In addition, this was also checked with the new 1280HR2 ion microprobe at high mass resolution (~ 5000) in multicollection mode. At this mass resolution, the $^{24}\text{MgH}^+$ interference is physically removed. The fact that, within the errors, the results for ESP olivines are the same for the two mass resolution (see Results) clearly demonstrate that the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ variations are not artefacts due to the contribution of

the $^{24}\text{MgH}^+$ on the $^{25}\text{Mg}^+$ peak.

Variations of the backgrounds of the Faraday cups were corrected by using the procedure previously described (Villeneuve et al., 2009). This procedure allows to correct long-term (at the scale of an hour) relative deviations of the backgrounds between the faraday cups. If not corrected for, these variations could induce errors up to $\pm 0.04\%$ on $\delta^{25}\text{Mg}$ which would introduce significant errors on the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ at the level of precision that is targeted.

We used San Carlos olivine and VITIM olivine to calibrate instrumental mass fractionation of Mg isotopes during ion probe analysis. The instrumental mass fractionation between the standards and a reference can be written as an exponential law according to:

$$\alpha^{25/24}_{\text{std/ref}} = (\alpha^{26/24}_{\text{std/ref}})^{\beta}$$

with $\alpha^{X/24}_{\text{std/ref}} = ({}^X\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg})_{\text{std}} / ({}^X\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg})_{\text{ref}}$

It is assumed that $(^{25}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg})_{\text{ref}} = 0.12663$ and $(^{26}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg})_{\text{ref}} = 0.13932$ (Catanzaro et al., 1966). The value of β was precisely determined for each analytical session from repetitive analysis of the standards and each time was close to ~ 0.515 (± 0.002). In order to insure that the value of β remained constant during one analytical session, standards were frequently analyzed. Then, Mg isotopic compositions, i.e. raw $\delta^{25}\text{Mg}$ (electronic annex) and raw $\delta^{26}\text{Mg}$ (raw means not corrected for instrumental mass fractionation), of the samples were compared to the exponential law. The deviation from the instrumental mass fractionation law, noted $\delta^{26}\text{Mg}^*$ and which is assumed to be due to a ^{26}Mg deficit or excess, is expressed in ‰ as:

$$\delta^{26}\text{Mg}^* = (\alpha^{26/24} / (\alpha^{25/24})^{1/\beta} - 1) \times 1000$$

or in δ notation as:

$$\delta^{26}\text{Mg}^* \approx \delta^{26}\text{Mg} - (1/\beta \times \delta^{25}\text{Mg} + \delta^{26}\text{Mg}_0)$$

with:

$$\delta^X\text{Mg} = (\alpha^{X/24} - 1) \times 1000$$

The two sigma internal errors on $\delta^{26}\text{Mg}^*$ were calculated from the counting statistic on $^{25}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg}$ and $^{26}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg}$ ratios according to:

$$2\sigma_{\delta^{26}\text{Mg}^*} = 2 \times (2\sigma_{\delta^{26}\text{Mg}}^2 + (1/\beta \cdot 2\sigma_{\delta^{25}\text{Mg}})^2 - 2 \times (1/\beta \cdot \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}} \times \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}} \times \rho)^{0.5}$$

with $\rho = (\sigma_{\delta^{25}\text{Mg}}^2 + \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}}^2 + \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}/{}^{25}\text{Mg}}^2) / (2 \times \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}} \times \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}})$.

The San Carlos and VITIM olivines standard yielded an average $\delta^{26}\text{Mg}^*$ value of 0‰ with a 2 sigma external standard deviation on 60 analyses of $\pm 0.025\%$ and a 2 sigma external error of $\pm 0.003\%$ (Fig. 2). For each $\delta^{26}\text{Mg}^*$ analysis, the 2 sigma error shown in the data table in the electronic annex was the result of the quadratic sum of the counting statistic (2 sigma internal error) of the given

Table 1: Bulk chemical composition for major elements, $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ compositions of relict olivines and Eagle Station Pallasite (ESP).

Chond.	FeO [†] ox%	MgO [†] ox%	SiO ₂ [†] ox%	CaO [†] ox%	$\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ ‡ ‰	$\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ ‡ ‰	n
Ch4	3.27 0.61	53.66 1.21	42.48 0.64	0.23 0.06	0.609 ± 0.466	-0.008 ± 0.014	15
Ch6	2.72 0.59	54.19 0.65	42.59 0.51	0.23 0.03	0.985 ± 0.506	-0.003 ± 0.016	12
Ch16	2.67 0.24	54.46 1.31	42.48 0.56	0.20 0.04	1.015 ± 0.510	-0.007 ± 0.011	15
Ch17	1.92 0.41	54.33 0.94	42.67 0.61	0.48 0.11	0.334 ± 0.488	-0.029 ± 0.015	13
Ch18	3.32 0.85	53.70 0.92	42.55 0.25	0.30 0.09	0.696 ± 0.500	-0.004 ± 0.014	20
#1					1.141 ± 0.519	0.011 ± 0.011	9
#2					0.753 ± 0.611	0.043 ± 0.023	2
#3					0.237 ± 0.464	-0.031 ± 0.011	9
Ch19	1.69 0.42	55.27 0.73	42.78 0.26	0.08 0.08	0.003 ± 0.477	-0.029 ± 0.010	17
Ch20	1.13 0.19	55.29 1.16	42.77 0.39	0.40 0.09	0.219 ± 0.481	-0.007 ± 0.010	13
Ch21	1.70 0.54	54.84 1.28	42.63 0.35	0.38 0.10	0.013 ± 0.455	-0.002 ± 0.012	11
ESP ₂₅₀₀	-	-	-	-	1.246 ± 0.442	-0.033 ± 0.008	30
ESP ₅₀₀₀	-	-	-	-	1.427 ± 0.465	-0.036 ± 0.016	14

n = number of Mg isotopes analyses. For Sem-Ch18 $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ are given for each group. †Error for chemical compositions are 1 s.d. ‡Errors for $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ are 2 σ . ESP₂₅₀₀ and ESP₅₀₀₀ are corresponding to measurements performed at RMPs of 2500 (slit 1) and 5000 (slit 2) respectively. Detailed values for $\delta^{25}\text{Mg}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*$ are given in the electronic Table.

analysis plus the external reproducibility determined on the standard (i.e. $\pm 0.003\%$, Fig. 1). These 2 sigma errors range from $\sim \pm 0.025\%$ to $\sim \pm 0.110\%$ (see Table 1 in the electronic annex). Because in most cases (see Fig. 4, 5) the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ measured in different spots in the same olivine or in olivines

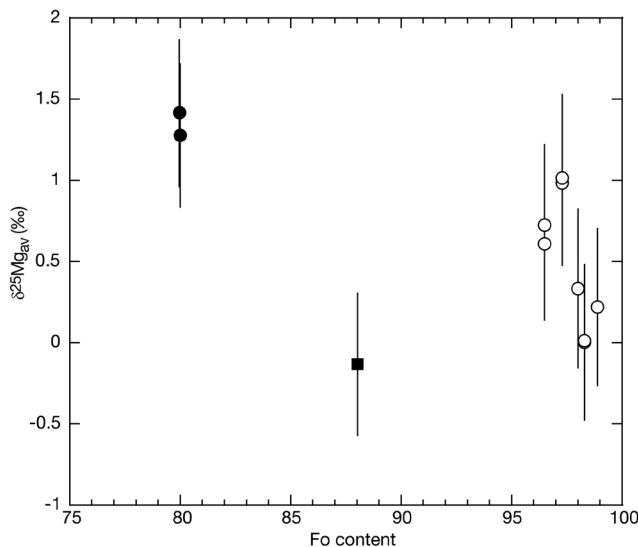


Fig. 3: $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ values (i. e. average for each object of the $\delta^{25}\text{Mg}$ values measured at different spots) versus the Fo content (Mg/ (Mg+Fe) in atomic %) for relict olivines from Allende (open circles), San Carlos olivine (black square) and ESP olivine at a RMP of 2500 and 5000 (black circles).

from the same chondrule were identical within their 2 sigma errors, an error-weighted average $\delta^{26}\text{Mg}^*$ (hereafter $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$) could be calculated for each object (isolated olivine or chondrule). This allowed to determine with the best possible precision the $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ for each object by taking advantage of numerous analyses of the same object (the validity of this approach is exemplified by the 60 analyses of the terrestrial San Carlos olivine which allow to reach a $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ of $0 \pm 0.003\%$, Fig. 2). The two sigma errors on the $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ obtained in such way range from $\pm 0.008\%$ to $\pm 0.016\%$ (Table 1).

Because of variations of instrumental mass fractionation (at the level of $\sim \pm 0.2$ to $\pm 0.5\%$ during a given analytical session, see Villeneuve et al., 2009), the true $\delta^{25}\text{Mg}$ values cannot be determined with the same precision as the $\delta^{26}\text{Mg}^*$. In addition, small matrix effects on instrumental mass fractionation due to variations in the MgO content of olivine are possible ($\sim 1\%$ at maximum over the restricted range of MgO contents shown by our olivine samples). These effects were not studied in details because reaching ultimate precision on $\delta^{25}\text{Mg}$ value was not the goal of the present work. However, it is important to constrain the potential uncertainty added on the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values by the combined effect of differences in mass fractionation from samples to standard and of the uncertainty on β . In order to do this, all the analyses were corrected by using the same value of instrumental mass fractionation determined from the repeated analyses of the San Carlos olivine standard, assuming a terrestrial $\delta^{25}\text{Mg}$ value of $-0.13 (\pm 0.04)\%$ for San Carlos olivine (Teng et al., 2010). Average $\delta^{25}\text{Mg}$ values (noted hereafter $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$, Table 1) were calculated for each object. As shown in Fig. 3, variations in $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ do not exceed 1% (except for Eagle Station for which it reaches 1.3%). In fact the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values are calculated by using the value of β determined on the terrestrial standards [around $0.515 (\pm 0.002)$ depending on the analytical sessions]. This value of β cumulates potential mass fractionation carried by the standards themselves and ion probe instrumental mass fractionation. Taking the extreme case of Eagle Station and assuming that all of the mass fractionation of $\sim 1.3\%$ on $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ at the mass resolution (RMP) of 2500 is due to a kinetic isotope fractionation effect [i. e. evaporation for which could correspond values of β ranging from 0.511 (Young et al., 2002) to 0.514 (Davis et al., 2005)], values of $\sim -0.055\%$ (for $\beta = 0.511$) and of $\sim -0.040\%$ (for $\beta = 0.514$) are calculated for $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$. These values are slightly lower than the value of $-0.033 (\pm 0.008)\%$ calculated with $\beta = 0.515$ (Table 1). Thus, the range of $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ calculated using the value of β determined from the analysis of the terrestrial standards can be considered conservative. From the uncertainty of $\pm 0.002\%$ on the value of β and, for example, a mass fractionation of 0.5% on $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$, an uncertainty of $\pm 0.0035\%$ would appear on $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$. A large part of the variations on $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ are however probably due to uncorrected matrix effects. This implies that the studied olivines did not experience significant mass fractionation and thus that this probably does not impact on the precision to which the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ can be determined.

^{27}Al abundances were measured in order to make sure that each ion spot did not sample some mesostasis or glass inclusions. Thus, Al/Mg ratios were always smaller than 0.007 (Table 1 in the electronic annex).

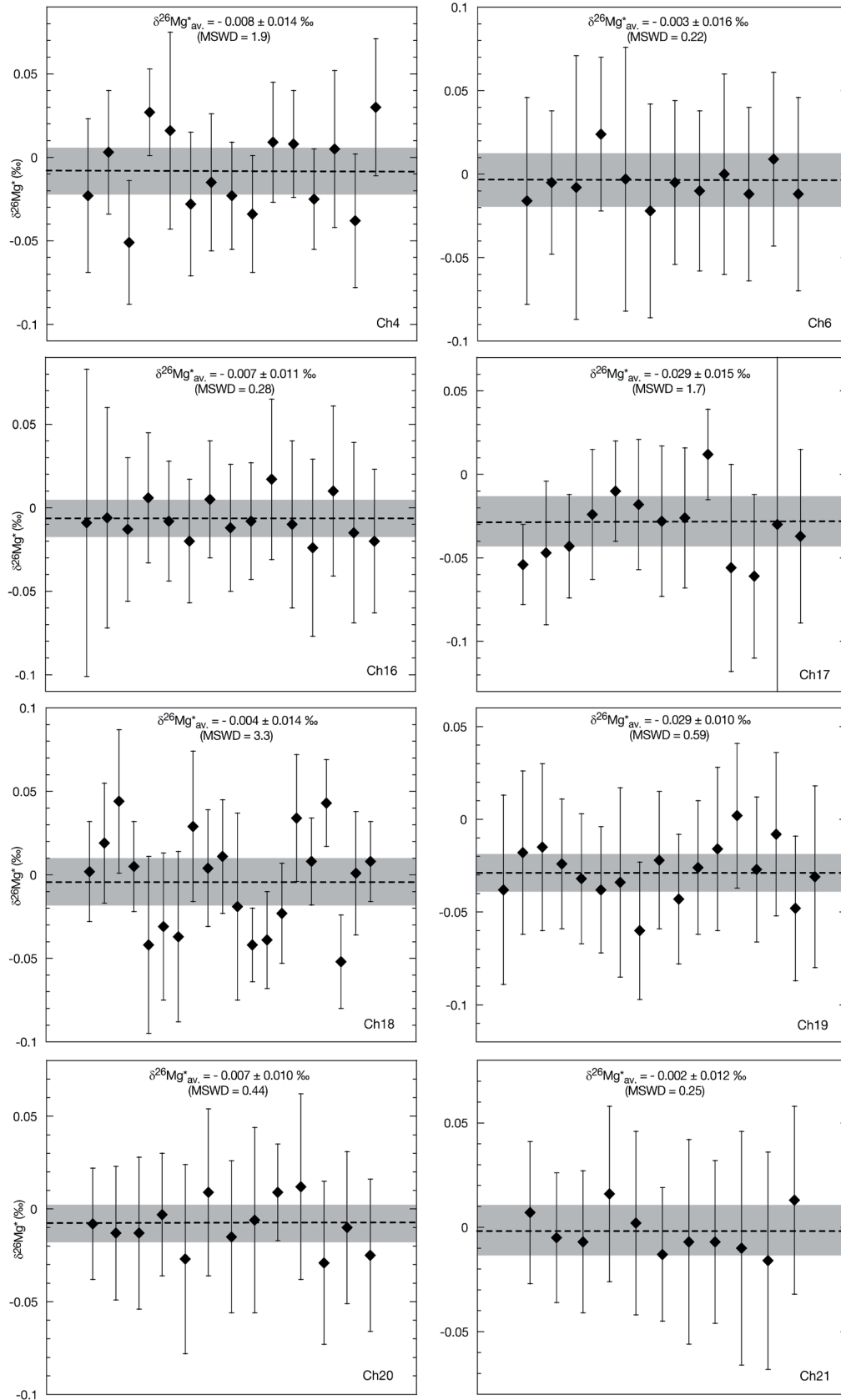


Fig. 4: $\delta^{26}\text{Mg}^*$ and $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ measured for the forsteritic olivines from 6 chondrules and 2 isolated olivines from the Allende chondrite (all data are given in Table 1 and in electronic annex). The measurements are shown along the X axis according to the sequence of analysis at the different spots. The bars show the 2σ error for each spot. The bars show the 2σ error for each spot (see text for details). Grey fields are 2σ errors on $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ data.

4. Results

Between 11 to 30 measurements per object were made on 6 PO type I chondrules, 2 isolated Mg-rich olivines and ESP olivines, representing a total of 162 individual analyses (average for each object in Table 1 and all individual analyses in electronic annex). Figs. 4 and 5 show individual $\delta^{26}\text{Mg}^*$ results for each object analyzed and the corresponding $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$. All the samples from the Allende chondrite have negative $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values relative to the Earth ranging from $-0.002 (\pm 0.012) \text{‰}$ to $-0.029 (\pm 0.010) \text{‰}$ (Fig. 4). A clear ^{26}Mg deficit relative to the Earth is observed for ESP olivines with $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}} = -0.033 (\pm 0.008) \text{‰}$ at RMP = 2500 and $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}} = -0.036 (\pm 0.016) \text{‰}$ at RMP = 5000 (Fig. 5). Since the re-

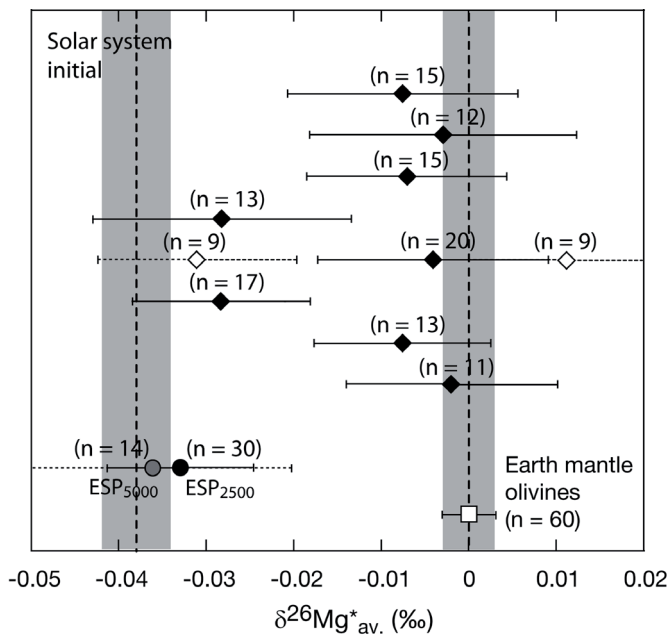


Fig. 6: Compilation of $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ data for the present olivines. The value for the Earth mantle (given by the San Carlos olivines) is shown as an open square and a grey field. The value for the initial of the Solar system (grey field) is derived from the nebular growth curve (see text and Fig. 8) and is in agreement with data on CAIs (Jacobsen et al., 2008). An error of $\pm 10\%$ is assumed for the initial of the Solar system according to data from chondrules (Villeneuve et al. 2009). Black diamonds are relict olivines from Allende and black and grey circles are olivines from ESP, respectively at RMP = 2500 and 5000 (Table 1). Dotted diamonds are values for the two well defined groups of olivines in Ch18 (Table 1, Fig. 7).

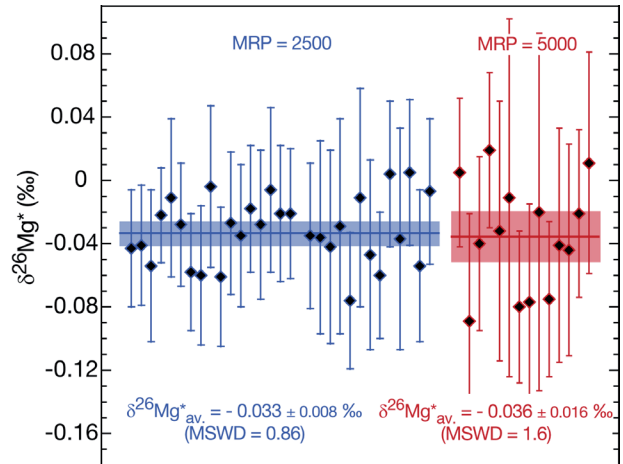


Fig. 5: $\delta^{26}\text{Mg}^*$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ measured for olivines from ESP at RMP = 2500 (blue symbols) and RMP = 5000 (red symbols). See Fig. 4 caption and text for details.

sults for ESP are the same within the errors between RMP = 2500 and 5000, only the result at RMP = 2500 is considered in the following. All of these Mg isotopic compositions are consistent with the range of $\delta^{26}\text{Mg}^*$ previously inferred for the Solar nebula at the time of formation of Allende type B CAIs [$\delta^{26}\text{Mg}^*_0 = -0.038 (\pm 0.004) \text{‰}$, Jacobsen et al., 2008; Villeneuve et al., 2009], Semarkona type II chondrules [with $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ from $-0.0185 (\pm 0.0140) \text{‰}$ to $+0.0047 (\pm 0.0098) \text{‰}$, Villeneuve et al., 2009] and the Earth, Moon and Mars ($\sim 0 \text{‰}$, this study, Thrane et al., 2006). In summary, $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ seem to define broadly two groups: the first one has not significant ^{26}Mg deficits, within the errors, relative to the Earth, i.e. from $-0.002 (\pm 0.012) \text{‰}$ to $-0.008 (\pm 0.014) \text{‰}$, and the second one has stron-

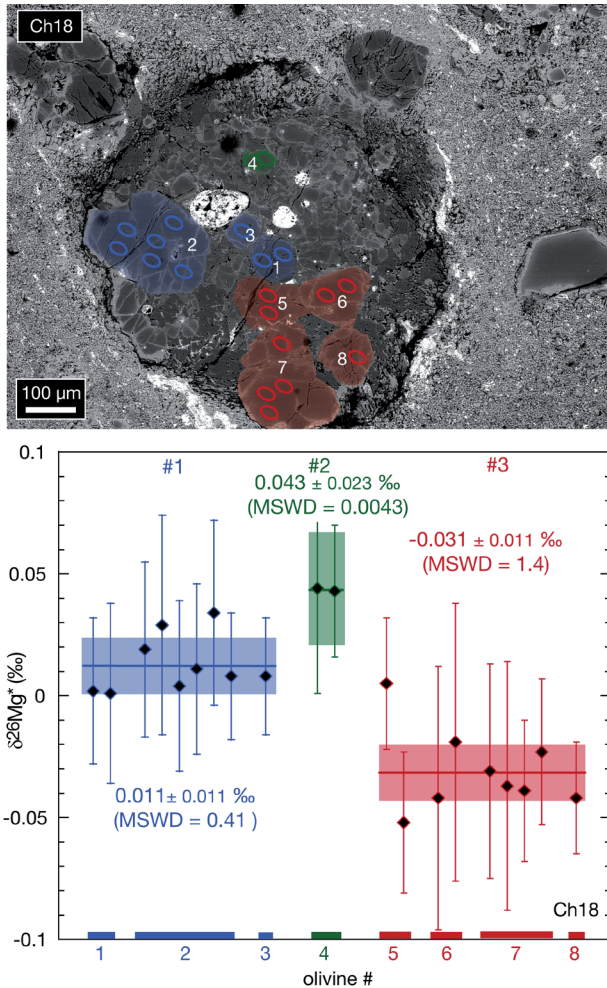


Fig. 7: $\delta^{26}\text{Mg}^*$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values for olivines in Ch18 ordered in function of their geographic position: three different groups of olivines (#1 in blue, #2 in green and #3 in red) with different $\delta^{26}\text{Mg}^*$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ are present in Ch18 (see text for details). Diamonds are individual $\delta^{26}\text{Mg}^*$ measurements and solid lines are error-weighted $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values for each group that can be identified. The bars show the 2σ error for each spot. Coloured fields are 2σ errors on $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ data.

0.027) ‰ and a $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ of $-0.031 (\pm 0.011)$ ‰ and maybe a third one exists (#2 : olivine 4) which has a $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ of $0.043 (\pm 0.023)$ ‰ (Fig. 7). There is no petrographic criterion allowing to say that these three different groups of olivines belong to the same entity: for instance they are not part of an aggregate having granoblastic textures as previously observed in, for instance, Vigarano type I chondrites (Libourel and Krot, 2007). The texture of Ch18 could be compatible with a formation by an assembling of different clasts of olivines from various sources (Fig. 1, 7). In the following, positive $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values will be referred to as «supra-chondritic» $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values.

ger ^{26}Mg deficits, i.e. from $-0.029 (\pm 0.015)$ ‰ to $-0.033 (\pm 0.008)$ ‰, overlapping within errors the $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ of the solar system (Fig. 6). Finally, it is worth stressing that there is no correlation either between $\delta^{25}\text{Mg}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*$ or between $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values (Table 1 and electronic annex). Because these chondrules are exclusively type I PO (i.e. without low-Ca pyroxene) and because they do not contain enough mesostasis it was not possible to measure minerals isochrons in order to compare them to olivine model ages.

Ch18 is the only object which shows significant variations in $\delta^{26}\text{Mg}^*$ between several of its components. These variations are not random and are spatially distributed in the chondrule between three groups of olivines (Fig. 7). One group of olivines (#1 : olivines 1-3) has $\delta^{26}\text{Mg}^*$ ranging from $0.001 (\pm 0.037)$ ‰ to $0.034 (\pm 0.038)$ ‰ and a $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ of $0.011 (\pm 0.011)$ ‰, the second one (#3 : olivines 5-8) has $\delta^{26}\text{Mg}^*$ ranging from $-0.052 (\pm 0.028)$ ‰ to $0.005 (\pm$

5. Discussion

5.1. Age implications of the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values in the context of a nebular origin for Mg-rich olivines in chondrules

The simplest way to calculate model ages for the present olivines is to compare directly their $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values to the solar nebula growth curve (Fig. 8). In doing so, the assumption which is made is to consider that the olivines crystallized from a melt which was sitting on the nebular growth curve. Such a melt could be produced by different processes such as (i) direct condensation from the nebula gas and (ii) melting of solid precursors which in bulk have the chondritic Al/Mg ratio ($^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg} = 0.101$, Lodders, 2003). The $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values give no clue on the origin of these precursors: inherited for instance from earlier condensation events or from earlier chondrule forming events. Under these assumptions projection on the nebula growth curve gives model ages for the olivines ranging from $0.28^{+0.44}_{-0.31}$ Ma to $3.10^{+nv}_{-2.05}$ Ma after CAIs with no data between ~ 0.30 Ma and ~ 1.5 Ma after CAIs (Fig. 8). Because these ages are a maximum age for chondrules since the olivine

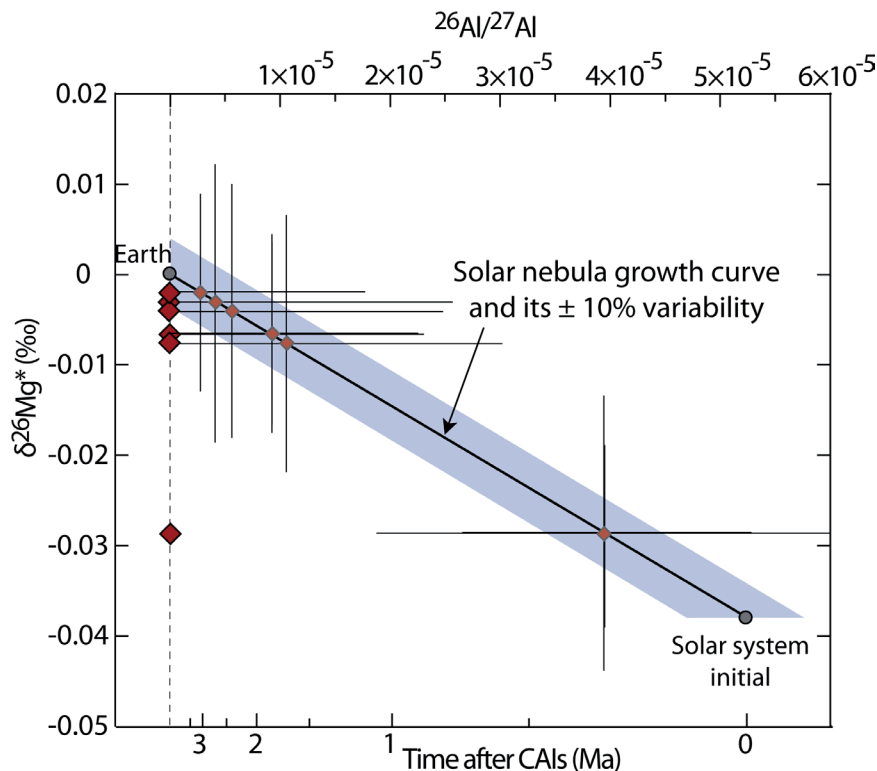


Fig. 8: Model ages determined for relict olivines from Allende by projection on the solar nebula growth curve (see text for details). The solid line is the Mg isotopic solar nebula growth curve anchored by the Earth (grey circle) and calculated for a chondritic $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratio (0.101, Lodders, 2003). For a $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ of 5.23×10^{-5} for CAIs (grey circle, Jacobsen et al., 2008) we obtain a $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ of -0.038‰ . The blue field is the $\pm 10\%$ heterogeneity for ^{26}Al and Mg isotopes within the solar nebula, determined by Villeneuve et al. (2009). Large red diamonds are measured $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ from which $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratios and model ages of olivines (pale diamonds) are inferred by projection onto the growth curve. The 2σ error bars on model ages are calculated from the 2σ errors on the $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$.

are (or can be) relict, this would imply that some chondrules formed as early as ~ 0.30 Ma after CAIs. Within the errors this age overlaps the age of formation of CAIs and is in agreement with previous studies which suggested that chondrules and CAIs could form at the same time (Galy et al., 2000; Bizzarro et al., 2004; 2005a; Villeneuve et al., 2009).

Two important constraints are brought by the finding of at least two (and perhaps three) groups of olivines with distinct $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values in chondrule Ch 18 (Fig. 7), one with a $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ of $-0.031 (\pm 0.011) \text{‰}$ and another with a supra-chondritic $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ of $0.011 (\pm 0.011) \text{‰}$ [one grain having a higher value of $0.043 (\pm 0.023) \text{‰}$]. First, it implies that in this chondrule the olivines are definitely relict and thus that the $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values can only be used to define a maximum age for chondrule: chondrule melting occurred after formation of the olivines. Second, applying the current reasoning for the calculation of model age to Ch 18 would make no sense if the $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ were to be converted into age by using the solar nebula growth curve because a supra-chondritic $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ value cannot exist in such a model. In fact, supra-chondritic $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values in olivine can only be produced by ^{26}Al decay in parent liquids with supra-chondritic Al/Mg ratios. Minimum $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratios between 0.1 and 0.28 at the time of formation of CAIs are required to produce the observed $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ of $0.011 (\pm 0.011) \text{‰}$ and of $0.043 (\pm 0.023) \text{‰}$ after complete decay of ^{26}Al , i.e. ~ 4 Ma, in Ch 18. Such liquids can be the liquids characterized by the bulk ferromagnesian chondrule compositions (with $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ranging from ~ 0.06 to ~ 0.25 , Jones and Scott, 1989; Jones, 1990; 1994; 1996) but (i) in order to explain the composition of the olivines in Ch18 the Al-rich liquid must be preserved in the accretion disk all along the decay of ^{26}Al i.e. for more than 4 Ma, before crystallization of the olivines, and (ii) it is obvious that Ch18 yields a small $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratio since it contains very small amounts of mesostasis (Fig. 1). Thus, this scenario seems to be implausible. Otherwise, one could imagine that these liquids were refractory liquids fractionated by condensation/evaporation or differentiated by magmatic processes in a partially molten planetesimal.

5.2. Age implications of the $\delta^{26}\text{Mg}^$ values in the context of a planetary origin for Mg-rich olivines in chondrules*

Relict Mg-rich olivines in type I chondrules from CV chondrites have been suggested to originate from the disruption of planetesimals, the fragments of which were distributed in the chondrule forming regions of the disk. Evidence for such an origin comes from petrographic observations. Libourel and Krot (2007) have shown that olivine clasts could be identified in many type I chondrules from the CV chondrite Vigarano. These clasts are made of olivine (\pm spinel) and metal, the grain boundaries between the olivine grains are dry (no traces of melt) and they have typical equilibrium textures with 120° interfacial angles requiring sintering at high temperature. Such textures are

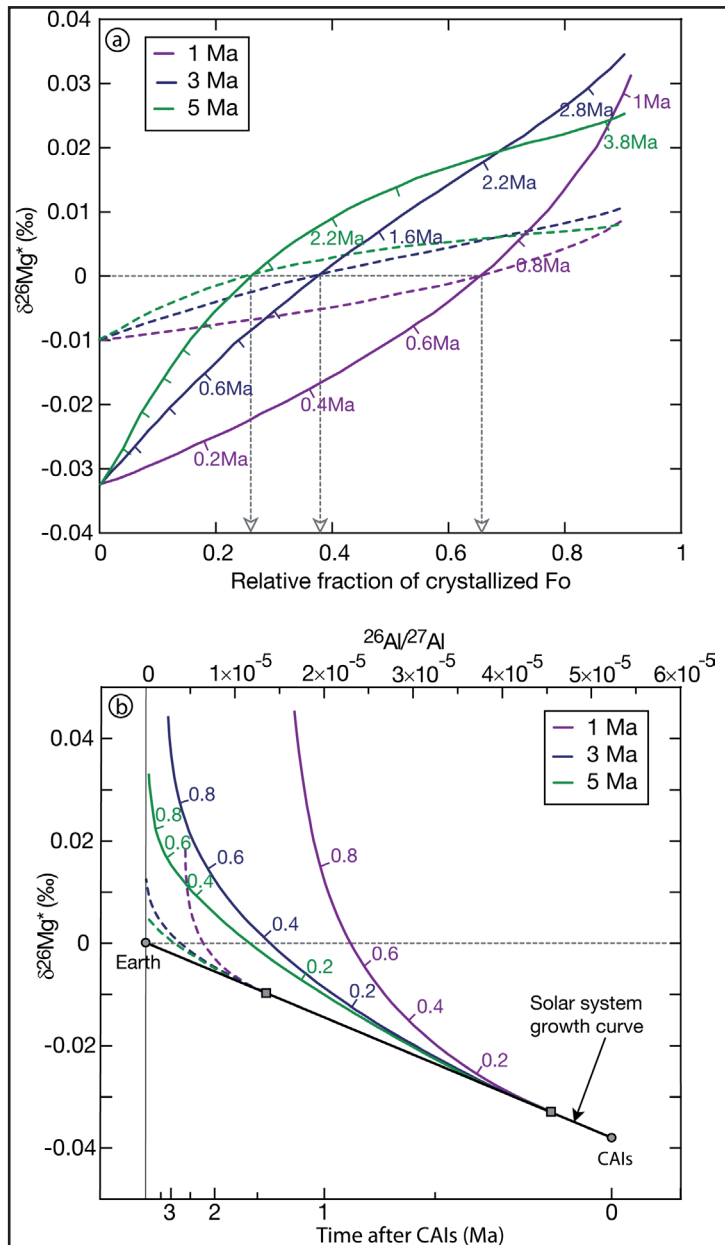


Fig. 9: Theoretical evolution of the Mg isotopic composition of a magmatic ocean modeled as a function of a) the relative fraction of olivine crystallized, i.e. the amount of olivine crystallized from the magmatic ocean divided by the total amount of olivine which could crystallized from the magmatic ocean, and b) time after the formation of CAIs (Jacobsen et al., 2008). Ticks on evolution curves are for a) the timing of crystallization and for b) the relative fraction of olivine crystallized. Three extreme durations for differentiation (1, 3 or 5 Ma, i. e. purple, blue and green curves, respectively) have been considered to fractionate the Al/Mg ratio from 0.08 to 1.6, i.e. from the chondritic value to a typical value for a eucritic differentiated melt. Solid and dotted curves are calculated for differentiation starting 0.15 My and 1.5 My after CAIs, respectively. Evaporation has also been considered to explain the maximum shift of $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ value observed. Assuming that evaporation follows a Rayleigh fractionation law ($R/R_0 = f^{1/\alpha-1}$, with $\alpha = 1.0160$, Wang et al., 2001), a fractionation of $\sim 1\text{‰}$ for $\delta^{25}\text{Mg}_{\text{av}}$ (Fig. 3) corresponds to the evaporation of 5% of the total amount of Mg from the magmatic ocean. At first order, it was supposed that Si was evaporated at the same rate than Mg.

common in terrestrial mantle rocks and seem unlikely to be produced in a nebular setting during the short time

interval classically allocated to chondrule formation by flash heating (Whattam et al., 2008).

In such a context for the origin of olivines, the calculation of model ages from their $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ values is hampered by the unknown geologic history of their parent liquids which could have developed variable Al/Mg ratio. In the first millions years of the Solar System, the decay of short-lived radionuclides, especially ^{26}Al and ^{60}Fe , is considered as the most plausible heat source for melting planetesimals (Lee et al., 1976; Birck and Lugmair, 1988; Hutcheon and Hutchison, 1989; Srinivasan et al., 1999; Zinner and Gopel, 2002; Mostefaoui et al., 2004). A timescale of \sim a few 100 ka to \sim 1 Ma is commonly accepted as a minimum duration required for melting of a planetesimal with a radius of a few tens of kilometres (Bizzarro et al., 2005b; McCoy et al., 2006). Such an object would undergo global partial melting and be covered by a magma ocean in which olivines would crystallize

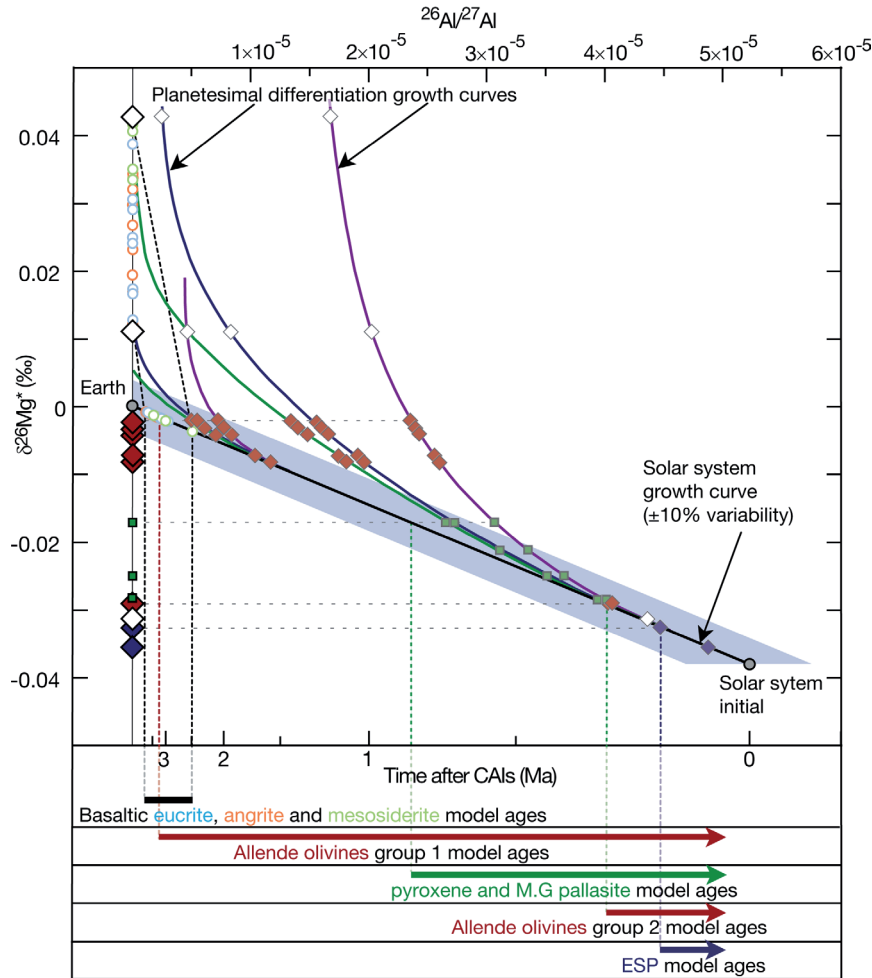


Fig. 10: $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratios and model ages (pale diamonds and pale squares), inferred from measured $\delta^{26}\text{Mg}^*_{av}$ by projections onto the Mg isotopic growth curves, for relict olivines from Allende (large red diamonds, this study), ESP olivine (large blue diamonds, this study), the three groups of olivines in Ch18 (large white diamonds, this study) and MGP olivine and pyroxene pallasite (green squares, Tomiyama et al., 2006), assuming an origin from differentiated planetesimals. Purple, blue and green solid curves are Mg isotopic growth curves of a magma ocean assuming a differentiation in respectively 1, 3 and 5 Ma (see text and caption of Fig. 9 for details). For clarity the error bars are not shown for $\delta^{26}\text{Mg}^*_{av}$ values. Measured $\delta^{26}\text{Mg}^*$ for eucrite, angrite and mesosiderite (blue, orange and green circles, Baker et al., 2005; Bizzarro et al., 2005b) are also shown together with the range possible for the model ages of their parent liquids (calculated from their $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratios from ~ 0.9 to ~ 3.1 , pale blue, orange and green circles). Note that there is a marginal intercept for model ages between refractory olivines and achondritic parent melts. Bold arrows summarize the different ranges of model ages for achondrites (in black), the two groups (group 1 with weak or no ^{26}Mg deficits and group 2 with clear ^{26}Mg deficits) of Allende olivines (in red), MGP and pyroxene pallasite from the literature (in green), and ESP (in blue).

and cumulate to form a mantle. At first order, two sources of Al/Mg fractionation can be considered to be present: (i) Mg-rich olivine crystal fractionation and (ii) partial evaporation which both increase the Al/Mg ratio of the magma ocean because Al is more refractory than Mg (see experiments by Floss et al., 1996). The maximum amount of olivine which could crystallize from the magma ocean depends primarily on the initial composition of the melt: for an initial chondritic composition (with an initial Al/Mg ratio of ~ 0.08) it is on the order of $\sim 60\text{-}65\%$ of the total initial melt mass. For such amounts of olivine fractionation, typical Al/Mg ratios of 2-3 are reached in the melt. Fig. 9 shows

the evolution of the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values of the magma ocean (and of the coeval olivine) in function of the relative mass fraction of olivine crystallized (Fig. 9a) and of time (Fig. 9b), for two simple scenarios of Al/Mg fractionation by olivine crystallization and evaporation (most of the fractionation is due to olivine fractionation). These calculations show for instance that, if differentiation starts at ~ 0.15 Ma after CAIs and lasts 1 Ma, then the first $\sim 65\%$ of all the olivine which could crystallize, i.e. the amount of olivine crystallized from the magmatic ocean divided by the total amount of olivine, will have a $\delta^{26}\text{Mg}^*$ value between $\sim -0.033\text{‰}$ and $\sim 0\text{‰}$, and only the last $\sim 35\%$ of the olivines of this planetesimal would have supra-chondritic $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values. Note that if differentiation starts later with the same duration of differentiation, because the $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratio decays rapidly with time, the radiogenic ^{26}Mg ingrowth in the magma ocean will occur at a lower rate, resulting at the end in a grossly similar proportion ($\sim 35\%$) of possible olivines with supra-chondritic $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values. However, if the differentiation lasts 5 Ma, only the first $\sim 25\%$ of all the olivine would have negative $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values (Fig. 9). In this scenario, the fact that most of $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ data are not supra-chondritic suggests that the planetesimals from which relicts olivines originate were most probably differentiated rapidly.

Thus, the present data are compatible with an origin for the Mg-rich olivines from planetesimals which could have differentiated as early as $0.28^{+0.44}_{-0.31}$ Ma after CAIs (Fig. 10). Since these olivines could have crystallized during advanced stages of differentiation, the data could also suggest that differentiation of planetesimals could have started before Ma after CAIs, and even before Allende type B CAIs formation. This planetary origin could explain, contrary to the nebula origin (see section 5.1.) all the range of $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values found for the olivine, from $-0.029 (\pm 0.010)\text{‰}$ to supra-chondritic. However, for olivines having $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values close to 0‰ , it is not possible to ascertain whether they originate from planetesimals which differentiated early (for instance ~ 0.8 Ma after CAIs, Fig. 10) or late (for instance ~ 2 Ma after CAIs, Fig. 10).

5.3. Early planetesimal accretion: before the formation of type B CAIs?

That magmatic differentiation on planetesimals occurred very early in the Solar system is demonstrated by the low $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values of $-0.033 (\pm 0.008)\text{‰}$ in olivines from ESP, which imply that they crystallized less than $0.15^{+0.29}_{-0.23}$ Ma after CAIs (Fig. 10). This result is in agreement with previous $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values measured in pyroxene from the Zinder pallasite [$-0.017 (\pm 0.008)\text{‰}$], olivine from Omolon Main Group Pallasite [MGP, $-0.025 (\pm 0.009)\text{‰}$], Huckitta MGP with anomalous metal [$-0.021 (\pm 0.006)\text{‰}$] and Springwater MGP with anomalous silicate [$-0.028 (\pm 0.012)\text{‰}$] (Tomiya et al., 2006). Thus, this implies a continuous range of early ages of crystallization within the errors for these pallasites, ranging from less than $0.85^{+0.8}_{-0.45}$ Ma after CAIs for Zinder pyroxene

pallasite to less than $0.32^{+0.59}_{-0.37}$ Ma after CAIs for Springwater MGP (Fig. 10). These ages of crystallization partially overlap the age of $0.15^{+0.29}_{-0.23}$ Ma calculated for ESP. All of these Mg isotopic data argue in favour of early accretion and differentiation of planetesimals within the first million years of the early solar system evolution.

This result for ESP is not in agreement with the one of a previous study, based on the ^{53}Mn - ^{53}Cr systematic, which indicate that ESP was formed ~ 16 Ma after Allende CAIs (Birck and Allègre, 1988). It is however important to stress that this relative age relies on two important parameters which are not well constraint: the value of the initial $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ ratio in CAIs and the homogeneity of the distribution of ^{53}Mn within the accretion disk (e.g. Lugmair and Shukolyukov, 1998; Shukolyukov and Lugmair, 2000).

These planetesimals were not especially small objects. It has been shown that Eagle Station grouplet, IIF irons and Bocaiuva iron have similar Ge/Ga ratios (Scott, 1977; Kracher et al., 1980; Malvin et al., 1985) and that ESP ($\delta^{17}\text{O} = -5.96\text{‰}$, $\delta^{18}\text{O} = -2.78\text{‰}$ and $\Delta^{17}\text{O} = -4.51\text{‰}$) and Bocaiuva ($\delta^{17}\text{O} = -5.54\text{‰}$, $\delta^{18}\text{O} = -2.21\text{‰}$ and $\Delta^{17}\text{O} = -4.39\text{‰}$) have similar oxygen isotopic compositions (Clayton and Mayeda, 1996). Although oxygen isotopic composition of IIF irons has never been measured, these similarities support the idea of a genetic linkage between the three groups of meteorites (Kracher et al., 1980; Malvin et al., 1985; Clayton and Mayeda, 1996; Krot et al., 2003). Cooling rates calculations based on Ni profiles through taenite and kamacite spindles imply that IIF irons cooled in the core of a 50-200 km diameter planetesimal (Rasmussen et al., 2001). Moreover, chemical composition, except for Ga and Ge (Kracher et al., 1980) suggest that IIF irons belong to the magmatic group. Similar cooling rate conditions are likely for ESP which most likely comes from a parent planetesimal larger than 50 km diameter.

Recent high precision ^{182}Hf - ^{182}W data indicate that core formation in the parent planetesimals of magmatic irons occurred less than ~ 1.5 Ma after formation of CAIs (Kleine et al., 2005; Markowski et al., 2006; Schersten et al., 2006). Though global melting of silicates is not a prerequisite for core formation in a proto-planet made from accretion of already differentiated planetesimals (Ricard et al., 2009), it is unavoidable to account for metal-silicate differentiation in a non-differentiated planetesimal. Metal-silicate early differentiation in planetesimals resulted in a mantle in which olivine could form and was followed by silicate-silicate differentiation resulting from melting of the early mantle (and crust) formed. This is shown from the Mg isotopic composition of basaltic and cumulative eucrites and mesosiderites and of basaltic angrites. They all have supra-chondritic $\delta^{26}\text{Mg}^*$

values that give model ages of ~ 3 Ma after CAIs for their parents melts (Fig. 10, Baker et al., 2005; Bizzarro et al., 2005b). From a simple model of thermal evolution of an asteroid heated by the decay of ^{26}Al and ^{60}Fe , Bizzarro et al. (2005b) showed that the accretion of eucrite, angrite and mesosiderite parent body must have been largely completed ~ 0.8 Ma after formation of CAIs in order to be differentiated ~ 3 Ma after CAIs. Considering a longer half-life for ^{60}Fe ($T_{1/2} = 2.62$ Ma, Rugel et al., 2009), or only ^{26}Al , would reduce this accretion time to ~ 0.6 Ma.

All of these previous results, and the present Mg isotopic compositions of relict olivines in type I chondrules, imply that accretion and differentiation of planetesimals have occurred, for some of them, before the formation of most chondrules, which took place from ~ 1.2 Ma to ~ 4 Ma after CAIs (Villeneuve et al., 2009). Moreover, since the present $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values for ESP olivines show that metal-silicate differentiation in the ESP parent body started as early as $0.15^{+0.29}_{-0.23}$ Ma after CAIs (Fig. 10), its accretion might have been at least coeval (if not anterior) to the formation of type B CAIs (Jacobsen et al., 2008). This puts into question the «classical» scenario for the early evolution of the accretion disk in which CAIs have been considered to be the first condensates made from the nebula gas : either all of these processes (condensation and accretion) were extremely brief (on the order of ~ 100 Ka) or they occurred at different times in different regions of the disk.

6. Conclusion

Mg isotopic compositions of relict olivines in type I chondrules give new clues on their origin, either nebular or planetary, and on their timing of formation. With an exception of one chondrule (Ch18) which contain olivines with very different $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$, and thus of potential different origins and histories, all the other samples studied contain olivines with $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ which can be explained by one or the other origin.

In a nebular origin scenario, the $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ require that the olivines were formed from a material (gas or grains) with the chondritic Al/Mg ratio from $0.28^{+0.44}_{-0.31}$ Ma to $3.10^{+nv}_{-2.05}$ Ma after CAIs. No constraint is brought on the time of formation of chondrule themselves, except that they cannot predate the formation of the olivines. Formation of chondrules can be near simultaneous with the formation of olivines, even at ~ 0.3 Ma after CAIs. This would be consistent with the systematic of bulk ^{26}Al - ^{26}Mg in chondrules (Galy et al., 2000; Bizzarro et al., 2004; 2005a). They can also be formed several millions years after the olivines, in which case some mechanisms must exist to preserve the olivines in the accretion disk for such long durations. However, this model fails to explain supra-chondritic $\delta^{26}\text{Mg}^*_{\text{av}}$ values such as those found in Ch18.

In a planetary origin scenario, the $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ values of relict olivines imply that their parent planetesimals were differentiated as early as $0.28_{-0.31}^{+0.44}$ Ma after CAIs. This model allows to explain the whole range of $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ values, including supra-chondritic values. The fact that planetary differentiation occurred very early in the history of the solar system is also demonstrated by the low $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ values of olivines from ESP, which is necessarily due to the differentiation of the ESP parent body as early as $0.15_{-0.23}^{+0.29}$ Ma after CAIs. It is important to stress that the $\delta^{26}\text{Mg}_{\text{av}}^*$ values of relict olivines would, in theory, also be consistent with an even earlier differentiation, for instance older than type B CAIs, if they were formed during late stage differentiation.

The results from this study imply that accretion and differentiation of some planetesimals occurred before the formation of most chondrules (which is from ~ 1.2 to ~ 4 My after CAIs, Villeneuve et al., 2009). This is in agreement with Hf-W data which imply that core formation in planetesimals parent of magmatic irons occurred less than 1.5 Ma after CAIs (Kleine et al., 2005; Markowski et al., 2006; Schersten et al., 2006). Finally, the present data suggest that at least accretion but also differentiation of planetesimals may have occurred at the same time, and perhaps even before, the formation of type B CAIs from Allende.

Acknowledgements: We gratefully thank C. Rollion-Bard, D. Mangin and M. Champenois for their precious assistance with the ion probe. Constructive comments by one anonymous reviewer, M. Gounelle and G.R. Huss were highly appreciated and greatly improved this manuscript. This work was funded by l'Agence Nationale de la Recherche grant ANR-08-BLAN-0260-02 T-Tauri, Chem, and European Research Council grant ERC 226846 Cosmochemical exploration of the first two Million Years of the Solar System (CEMYSS).

References:

- Baker, J., Bizzarro, M., Wittig, N., Connelly, J., Haack, H., 2005. Early planetesimal melting from an age of 4.5662 Gyr for differentiated meteorites, *Nature* 436, 1127-1131.
- Birck, J-L., Allègre, C.J., 1988. Manganese-chromium isotope systematics and the development of the early Solar System, *Nature* 331, 579-584.
- Birck, J-L., Lugmair, G.W., 1988. Nickel and chromium isotopes in Allende inclusions, *Earth Planet Sci Lett* 90, 131-143.
- Bizzarro, M., Baker, J.A., Haack, H., 2004. Mg isotope evidence for contemporaneous formation of chondrules and refractory inclusions, *Nature* 431, 275-278.
- Bizzarro, M., Baker, J.A., Haack, H., 2005a. Mg isotope evidence for contemporaneous formation of chondrules and refractory inclusions (vol 431, pg 275, 2004), *Nature* 435, 1280-1280.
- Bizzarro, M., Baker, J.A., Haack, H., Lundgaard, K.L., 2005b. Rapid timescales for accretion and melting of differentiated planetesimals inferred from ^{26}Al - ^{26}Mg chronometry, *Astrophys. J.* 632, L41-L44.
- Boss, A.P., 1996. A concise guide to chondrule formation models, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), *International conference: Chondrules and the protoplanetary disk*, Cambridge University Press, pp. 257-263.
- Boss, A.P., Durisen, R.H., 2005. Sources of Shock Waves in the Protoplanetary Disk, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series pp. 821-838.
- Catanzaro, E.J., Murphy, T.J., Garner, E.L., Shields, W.R., 1966. Absolute isotopic abundance ratios and atomic weight of magnesium. *J. Res. Nat. Bur. Stand.*, 70a, 453-458.
- Chaussidon, M., Libourel, G., Krot, A.N., 2008. Oxygen isotopic constraints on the origin of magnesian chondrules and on the gaseous reservoirs in the early Solar System, *Geochim. Cosmochim. Acta* 72, 1924-1938.
- Ciesla, F.J., Hood, L.L., 2002. The nebular shock wave model for chondrule formation: Shock processing in a particle-gas suspension, *Icarus* 158, 281-293.
- Clayton, R.N., Mayeda, T.K., 1996. Oxygen isotope studies of achondrites, *Geochim. Cosmochim. Acta* 60, 1999-2017.
- Davis, A.M., Richter, F.M., Mendybaev, R.A., Janney, P.E., Wadhwa, M., McKeegan, K.D., 2005. Isotopic mass fractionation laws and the initial solar system $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratio, *Lunar Planet Sci Conf XXXVI*.
- Desch, S.J., Ciesla, F.J., Hood, L.L., Nakamoto, T., 2005. Heating of Chondritic Materials in Solar Nebula Shocks, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 849-872.
- Desch, S.J., Connolly, H.C., 2002. A model of the thermal processing of particles in solar nebula shocks: Application to the cooling rates of chondrules, *Meteorit Planet Sci* 37, 183-207.
- Floss, C., El Goresy, A., Zinner, E., Kransel, G., Rammensee, W., Palme, H., 1996. Elemental and isotopic fractionations produced through evaporation of the Allende CV chondrite: Implications for the origin of HAL-type hibonite inclusions, *Geochim. Cosmochim. Acta* 60, 1975-1997.
- Galy, A., Young, E.D., Ash, R.D., O'Nions, R.K., 2000. The formation of chondrules at high gas pressures in the solar nebula, *Science* 290, 1751-1753.
- Hewins, R.H., Connolly, H.C., Lofgren, G.E., Libourel, G., 2005. Experimental Constraints on Chondrules Formation, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 286-316.
- Jacobsen, B., Yin, Q.Z., Moynier, F., Amelin, Y., Krot, A.N., Nagashima, K., Hutcheon, I.D., Palme, H., 2008. ^{26}Al - ^{26}Mg and ^{207}Pb - ^{206}Pb systematics of Allende CAIs: Canonical solar initial $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratio

- reinstated, *Earth Planet Sci Lett* 272, 353-364.
- Jones, R.H., 1990. Petrology and mineralogy of type-II, Feo-rich chondrules in Semarkona (LL3.0) - Origin by closed-system fractional crystallization, with evidence for supercooling, *Geochim. Cosmochim. Acta* 54, 1785-1802.
- Jones, R.H., 1994. Petrology of Feo-poor, porphyritic pyroxene chondrules in the Semarkona chondrite, *Geochim. Cosmochim. Acta* 58, 5325-5340.
- Jones, R.H., 1996. FeO-rich, porphyritic pyroxene chondrules in unequilibrated ordinary chondrites, *Geochim. Cosmochim. Acta* 60, 3115-3138.
- Jones, R.H., Grossman, J.N., Rubin, A.E., 2005. Chemical, Mineralogical and Isotopic Properties of Chondrules: Clues to their Origin, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 251-285.
- Jones, R.H., Scott, E.R.D., 1989. Petrology and thermal history of type IA chondrules in Semarkona (LL3.0) chondrite, *Proc 19th Lunar Planet Sci Conf* 523-536.
- Jurewicz, A.J.G., Watson, E.B., 1988. Cations in olivine, Part 2: Diffusion in olivine xenocrysts, with applications to petrology and mineral physics, *Contrib Mineral Petrol* 99, 186-201.
- Kita, N.T., Nagahara, H., Togashi, S., Morshita, Y., 2000. A short duration of chondrule formation in the solar nebula: Evidence from ^{26}Al in Semarkona ferromagnesian chondrules, *Geochim. Cosmochim. Acta* 64, 3913-3922.
- Kleine, T., Mezger, K., Palme, H., Scherer, E., Munker, C., 2005. Early core formation in asteroids and late accretion of chondrite parent bodies: Evidence from ^{182}Hf - ^{182}W in CAIs, metal-rich chondrites, and iron meteorites, *Geochim. Cosmochim. Acta* 69, 5805-5818.
- Kracher, A., Willis, J., Wasson, J.T., 1980. Chemical classification of iron-meteorites. 9. A new group (IIF), revision of IAB and III CD, and data on 57 additional irons, *Geochim. Cosmochim. Acta* 44, 773-787.
- Krot, A.N., Keil, K., Goodrich, C.A., Scott, E.R.D., Weisberg, M.K., 2003. Classification of Meteorites, in: H.D. Holland, K.K. Turekian (Eds.), *Treatise on Geochemistry*, Vol. 1, Meteorites, Comets, and Planets, A.M. Davis (Ed.), pp. 83-128.
- Krot, A.N., Libourel, G., Goodrich, C.A., Petaev, M.I., 2004. Silica-rich igneous rims around magnesian chondrules in CR carbonaceous chondrites: Evidence for condensation origin from fractionated nebular gas, *Meteorit Planet Sci* 39, 1931-1955.
- Lee, T., Papanastassiou, D.A., Wasserburg, G.J., 1976. Demonstration of ^{26}Mg excess in Allende and evidence for al-^{26} , *Geophys Res Lett* 3, 109-112.
- Libourel, G., Krot, A.N., 2007. Evidence for the presence of planetesimal material among the precursors of magnesian chondrules of nebular origin, *Earth Planet Sci Lett* 254, 1-8.
- Libourel, G., Krot, A.N., Tissandier, L., 2006. Role of gas-melt interaction during chondrule formation, *Earth Planet Sci Lett* 251, 232-240.
- Lodders, K., 2003. Solar system abundances and condensation temperatures of the elements, *Astrophys. J.* 591, 1220-1247.
- Lugmair, G.W., Shukolyukov, A., 1998. Early solar system timescales according to ^{53}Mn - ^{54}Cr systematics, *Geochim. Cosmochim. Acta* 62, 2863-2886.
- Malvin, D.J., Wasson, J.T., Clayton, R.N., Mayeda, T.K., Curvello, W.D., 1985. Bocaiuva - a silicate-inclusion bearing iron meteorite related to the Eagle Station pallasites, *Meteoritics* 20, 259-273.
- Markowski, A., Quitte, G., Halliday, A.N., Kleine, T., 2006. Tungsten isotopic compositions of iron meteorites: Chronological constraints vs. cosmogenic effects, *Earth Planet Sci Lett* 242, 1-15.
- McCoy, T.J., Mittlefehldt, D.W., Wilson, L., 2006. Asteroid differentiation, in: D.S. Lauretta, H.Y. McSween (Eds.), *Meteorites and the early solar system II*, The University of Arizona Press, pp. 733-745.
- Mittlefehldt, D.W., McCoy, T.J., Goodrich, C.A., Kracher, A., 1998. Non-chondritic meteorites from asteroidal bodies, in: J.J. Papike (Eds.), *Reviews in Mineralogy*, Vol. 36 Planetary Materials., pp.

- Mostefaoui, S., Lugmair, G.W., Hoppe, P., El Goresy, A., 2004. Evidence for live ^{60}Fe in meteorites, *New Astronomy Reviews* 48, 155-159.
- Pack, A., Yurimoto, H., Palme, H., 2004. Petrographic and oxygen-isotopic study of refractory forsterites from R-chondrite Dar al Gani 013 (R3.5-6), unequilibrated ordinary and carbonaceous chondrites, *Geochim. Cosmochim. Acta* 68, 1135-1157.
- Rasmussen, K.L., Haack, H., Ulf-Moller, F., 2001. Metallographic cooling rates of group IIF iron meteorites, *Meteorit Planet Sci* 36, 883-896.
- Ricard, Y., Sramek, O., Dubuffet, F., 2009. A multi-phase model of runaway core-mantle segregation in planetary embryos, *Earth Planet Sci Lett* 284, 144-150.
- Rugel, G., Faestermann, T., Korschnek, G., Poutivtsev, M., Schumann, D., Kivel, N., Günther-Leopold, R., Weinreich, R., Wohlmuther, M., 2009. New measurements of the ^{60}Fe half-life, *Phys Rev Lett* 2003, 1-4.
- Russell, S.S., Srinivasan, G., Huss, G.R., Wasserburg, G.J., MacPherson, G.J., 1996. Evidence for widespread ^{26}Al in the solar nebula and constraints for nebula time scales, *Science* 273, 757-762.
- Ruzicka, A., Hiyagon, H., Hutson, M., Floss, C., 2007. Relict olivine, chondrule recycling, and evolution of nebular oxygen reservoirs, *Earth Planet Sci Lett* 257, 274-289.
- Sanders, I.S., Taylor, G.J., 2005. Implications of ^{26}Al in Nebular Dust: Formation of Chondrules by Disruption of Molten Planetesimals, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 915-932.
- Schersten, A., Elliott, T., Hawkesworth, C., Russell, S., Masarik, J., 2006. Hf-W evidence for rapid differentiation of iron meteorite parent bodies, *Earth Planet Sci Lett* 241, 530-542.
- Scott, E.R.D., 1977. Pallasites - metal composition, classification and relationships with iron-meteorites, *Geochim. Cosmochim. Acta* 41, 349-360.
- Shukolyukov, A., Lugmair, G.W., 2000. On the ^{53}Mn heterogeneity in the early solar system, *Space Sci. Rev.* 92, 225-236.
- Srinivasan, G., Goswami, J.N., Bhandari, N., 1999. Al-26 in eucrite Piplia Kalan: Plausible heat source and formation chronology, *Science* 284, 1348-1350.
- Teng, F.-Z., Ke, S., Marty, B., Dauphas, N., Huang, S., Pourmand, A., 2010. The Magnesium Isotopic Composition of the Earth and Chondrites, *Lunar Planet Sci Conf XXXXI abstract #2019*.
- Thrane, K., Bizzarro, M., Baker, J.A., 2006. Extremely brief formation interval for refractory inclusions and uniform distribution of ^{26}Al in the early solar system, *Astrophys. J.* 646, L159-L162.
- Tissandier, L., Libourel, G., Robert, F., 2002. Gas-melt interactions and their bearing on chondrule formation, *Meteorit Planet Sci* 37, 1377-1389.
- Tomiyama, T., Bizzarro, M., Krot, A.N., Huss, G.R., Bunch, T.E., 2006. Timing of differentiation of pallasite parent bodies: evidence from Al-Mg system, *Meteorit Planet Sci* 41, 5086.
- Villeneuve, J., Chaussidon, M., Libourel, G., 2009. Homogeneous Distribution of ^{26}Al in the Solar System from the Mg Isotopic Composition of Chondrules, *Science* 325, 985-988.
- Wang, J., Davis, A.M., Clayton, R.N., Mayeda, T.K., Hashimoto, A., 2001. Chemical and isotopic fractionation during the evaporation of the FeO-MgO-SiO₂-CaO-Al₂O₃-TiO₂ rare earth element melt system, *Geochim. Cosmochim. Acta* 65, 479-494.
- Whattam, S.A., Hewins, R.H., Cohen, B.A., Seaton, N.C., Prior, D.J., 2008. Granoblastic olivine aggregates in magnesian chondrules: planetesimal fragments or thermally annealed solar nebula condensates?, *Earth Planet Sci Lett* 269, 200-211.
- Young, E.D., Galy, A., Nagahara, H., 2002. Kinetic and equilibrium mass-dependant isotope fractionation laws in nature and their geochemical and cosmochemical significance, *Geochim. Cosmochim. Acta* 66, 1095-1104.
- Zanda, B., 2004. Chondrules, *Earth Planet Sci Lett* 224, 1-17.

4. Y a t'il un lien entre les compositions chimiques et les âges ^{26}Al - ^{26}Mg de formation des chondres?

4.1. Introduction

Dans un article publié en 2002, Mostéfaoui et collaborateurs soulignaient la probable existence d'une corrélation entre les âges relatifs ^{26}Al - ^{26}Mg et les proportions de pyroxène dans des chondres provenant des chondrites ordinaires Bishunpur et Semarkona (Hutcheon et Hutchison, 1989; Kita et al., 2000; Mostéfaoui et al., 2002). Cette corrélation semblait indiquer que les chondres riches en pyroxène avaient été formés plus tard que les chondres riches en olivine (Fig. 1). Les auteurs en déduisaient que l'évolution des précurseurs des chondres au cours du temps (notamment par évaporation puis recondensation préférentielle de Si par rapport à Mg) était responsable de cette corrélation.

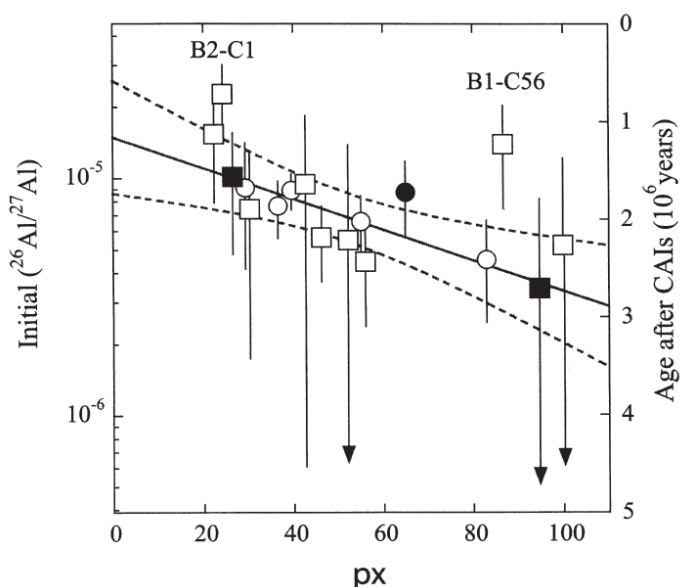


Fig. 1 : Corrélation entre les $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ et les proportions de pyroxène dans des chondres ferromagnésiens de Semarkona (cercles) et de Bishunpur (carrés). Les symboles pleins correspondent aux chondres de type I et les symboles vides aux chondres de type II (Mostéfaoui et al., 2002). La droite en trait plein correspond à la régression et les courbes en pointillés à l'intervalle de confiance à 95%. Les erreurs sur les $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ sont à 2 sigmas.

Il ressort de cette étude que les rapports Si/Mg semblent corrélés avec les âges relatifs de formation des chondres (Fig. 2). D'autre part, les éléments modérément volatils et volatils (Mn, Cr, Na et K) montrent une corrélation positive avec les rapports Si/Mg et également, bien que cela soit moins net que pour Si, une corrélation avec les âges relatifs des chondres (Fig. 2). De façon générale les chondres les plus jeunes semblent contenir plus de Si et d'éléments volatils que les chondres les plus anciens.

Cependant, la proportion de pyroxène n'est pas forcément le meilleur marqueur de l'évolution chimique des chondres car elle est le résultat d'un processus de cristallisation lors du refroidissement des chondres, et dépend donc de ce fait à la fois de la composition chimique globale des chondres mais également du régime thermique lors du refroidissement.

Ainsi, à la suite de cet article, Tachibana et al. (2003) ont déterminé les compositions chimiques globales des chondres datés par Kita et al. (2000) et Mostéfaoui et al. (2002) afin de caractériser d'éventuelles relations avec les âges relatifs ^{26}Al - ^{26}Mg . Il

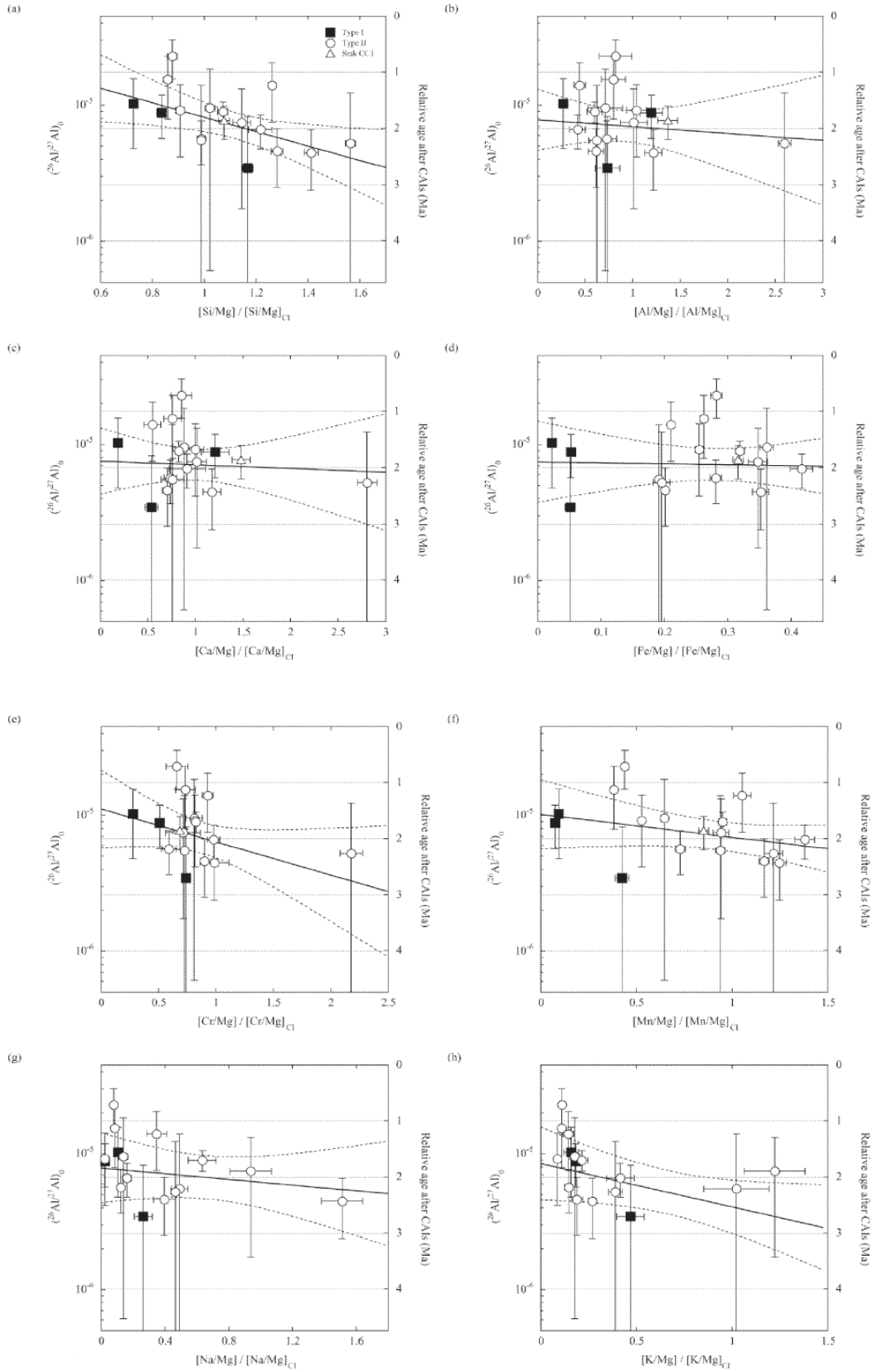


Figure 2 : Ages relatifs en fonction des rapports éléments/Mg en roche totale normalisés au CI. Les $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ ont été mesurés par Hutcheon et Hutchison (1989), Kita et al. (2000) et Mostéfaoui et al. (2002). Les chondres de type I et de type II sont respectivement en symboles pleins et vides (Tachibana et al., 2003). Les droites en traits pleins correspondent aux régressions et les courbes en pointillés aux intervalles de confiance à 95%. Les erreurs sur les $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ sont à 2 sigmas.

En revanche, il n'y a aucune corrélation entre les âges relatifs et les concentrations de Ca, Al et Fe. Si l'absence de corrélation avec Ca et Al est logique du fait de leur caractère réfractaire qui les rend peu sensibles aux processus d'évaporation/condensation, celle avec Fe est à priori plus inattendue car celui-ci est plus volatil que Si. Pour expliquer cette absence de corrélation, les auteurs s'appuient sur le fait que suivant la fugacité en oxygène, le partage du fer entre la phase silicatée (FeO) et la phase métallique (Fe métal) n'est pas le même et que des processus de séparation mécanique métal-silicate ont pu affecter les teneurs en Fe des chondres.

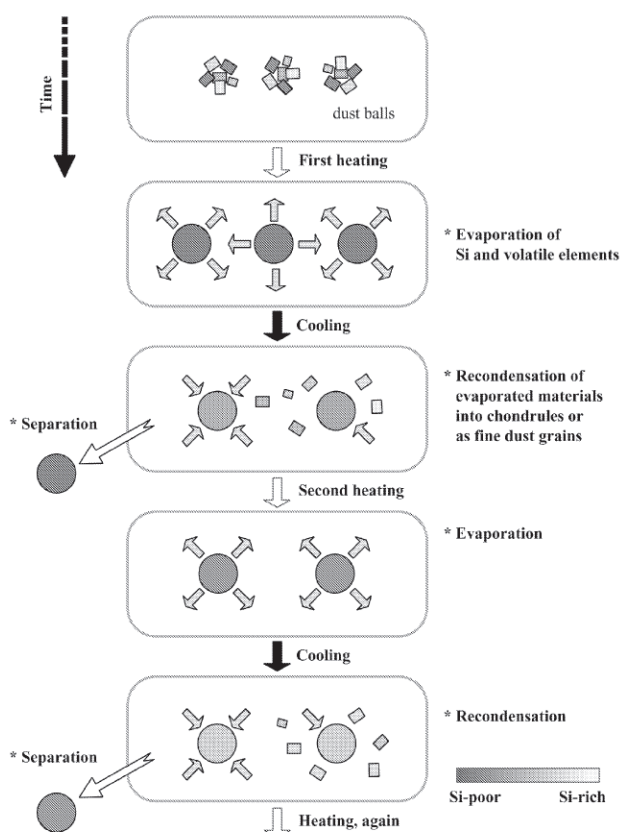


Fig. 3 : Schéma explicatif du scénario de formation des chondres en système ouvert permettant d'expliquer la corrélation entre les âges relatifs et les abondances en volatils des chondres (Tachibana et al., 2003).

tôt. Des mécanismes d'ondes de choc dont l'origine reste débattue (Boss et Durisen, 2005) dans le disque d'accrétion peuvent être la source des multiples événements de fusion des chondres nécessaires à ce modèle.

Cependant, du fait des erreurs analytiques importantes sur les mesures des $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ et de l'importante dispersion des données autour des droites de régression, les corrélations observées avec les concentrations de Si et de volatils ne semblent pas entièrement convaincantes. Malgré

Finalelement, Tachibana et al. (2003) proposent un mécanisme de formation par des épisodes répétés de chauffe et refroidissement des chondres s'accompagnant d'un fractionnement gaz-liquide de Mg, Si et des volatils et qui permet d'expliquer l'enrichissement progressif en éléments modérément volatils et volatils (Fig. 3). Lors de la chauffe, les volatils ainsi que Si (qui est plus volatil que Mg, Wang et al., 2001) s'évaporent préférentiellement des précurseurs des chondres. Certains de ces précurseurs riches en Mg sont extraits de la région de formation des chondres tandis que d'autres interagissent avec le gaz riche en Si et en volatils lors du refroidissement et forment une génération de chondres plus riches en Si et en volatils que la précédente. En répétant plusieurs fois ce processus, les chondres formés le plus tardivement vont progressivement s'enrichir en Si et en volatils par rapport à ceux formés plus

les limitations analytiques, cette étude très importante apporte un premier éclairage sur l'existence possible d'une corrélation entre l'âge de formation d'un chondre et sa composition chimique. Ces résultats s'ils étaient confirmés, seraient une contrainte très forte sur les modèles astrophysiques de formation des chondres et d'évolution de la nébuleuse solaire. Ainsi, afin de confirmer ou d'infirmer ces corrélations, nous avons mesuré les compositions chimiques des 14 chondres ferromagnésiens dont nous avons préalablement déterminé très précisément les âges ^{26}Al (voir § 5.1).

4.2. Approche analytique

- 3** Visualisation simultanée de trois des propriétés chimiques.
(rouge = Mg, bleu = Al, vert = Ca)
- 4** Détourage des chondres et des phases minérales.
Détermination des proportions de chaque phase.
Calcul et exportation des compositions chimiques.

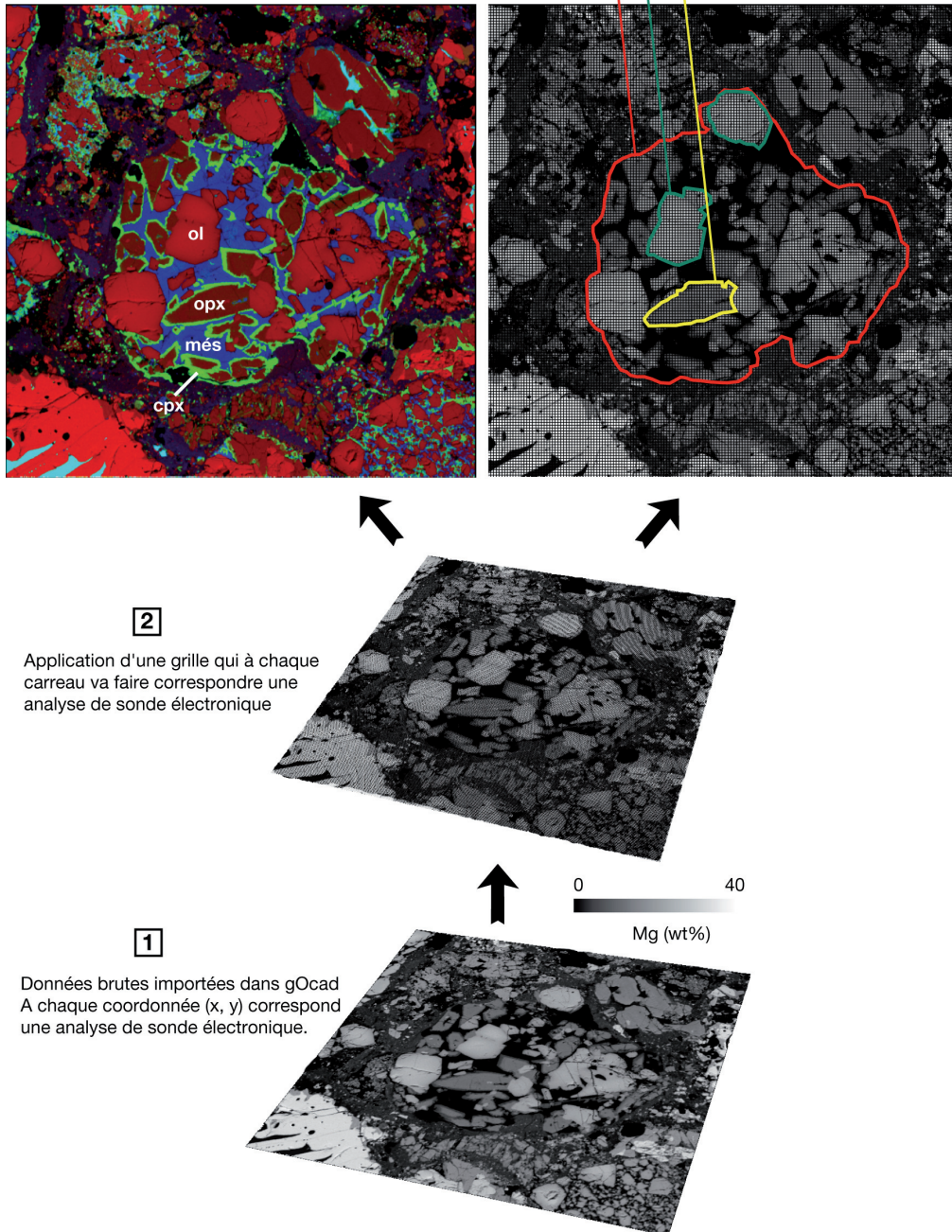


Fig. 4 : Principe d'utilisation du logiciel de modélisation gOcad pour trier les données de compositions chimiques brutes et visualiser les cartes de compositions chimiques. Ol = olivine, opx = orthopyroxène, cpx = clinopyroxène et més = mésostase.

Les compositions chimiques en roche totale des chondres ont été obtenues par cartographies chimiques avec un pas de 5 à 10 μm suivant les échantillons, à l'aide de la microsonde électronique SX-100 de l'Université Henri Poincaré à Nancy (voir chapitre 4.3 pour les paramètres analytiques). Cela correspond en moyenne à un nombre d'analyses de 10 000 à 25 000 par chondre. Les éléments suivants ont été mesurés : Na, K, Ca Mg, Al, Si, Fe, Mn, Cr, Ti et Ni.

Le tri des données brutes (suppression des analyses aberrantes et délimitation des chondres) a été grandement facilité par l'utilisation du logiciel de modélisation géologique GOCAD, et notamment du module de visualisation développé par Thomas Viard au cours de sa thèse, permettant la visualisation simultanée de plusieurs propriétés chimiques sur une carte. L'avantage de cette méthode de traitement des données est qu'elle permet à chaque coordonnée de la grille ajustée sur la carte chimique de retourner une composition chimique (Fig. 4). Ainsi, il est aisé de calculer les proportions et les compositions chimiques des différentes phases minérales des chondres.

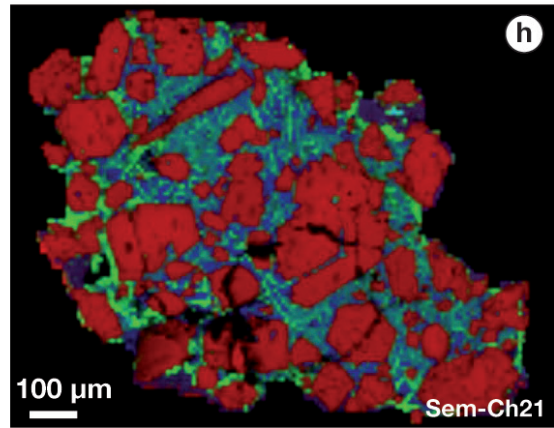
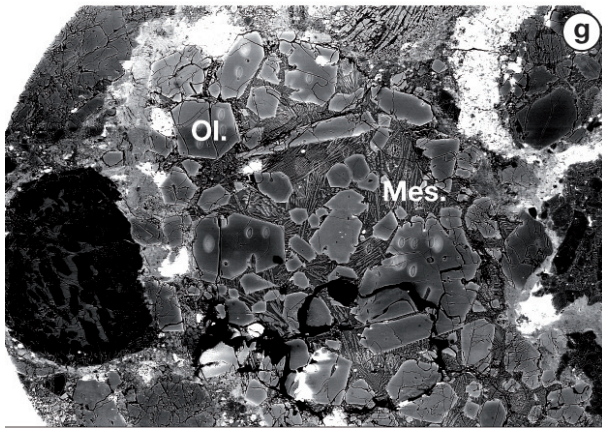
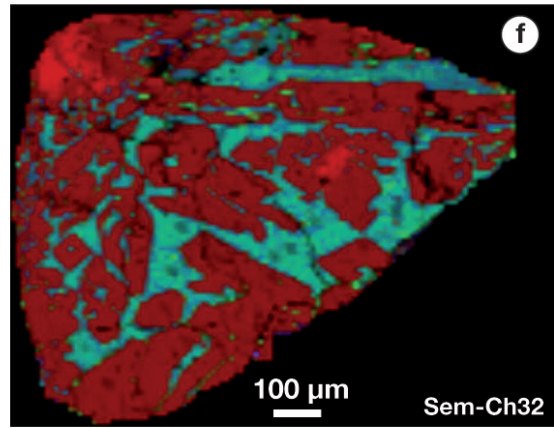
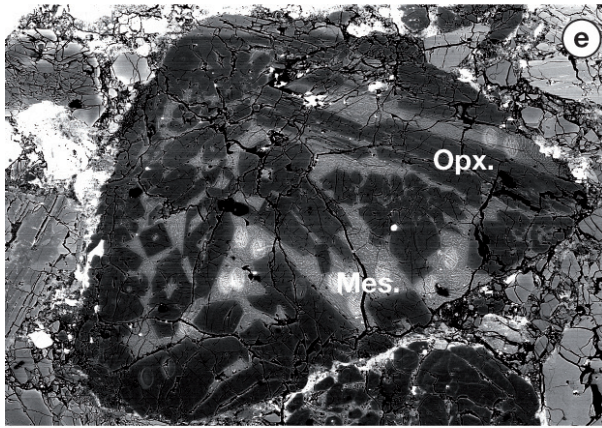
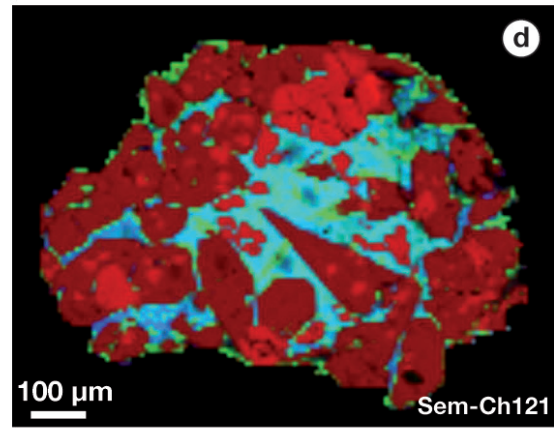
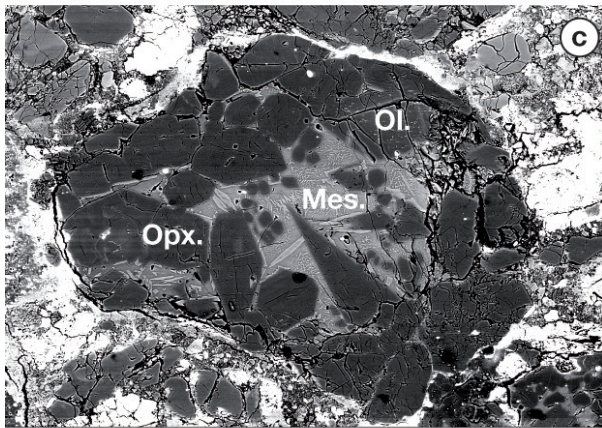
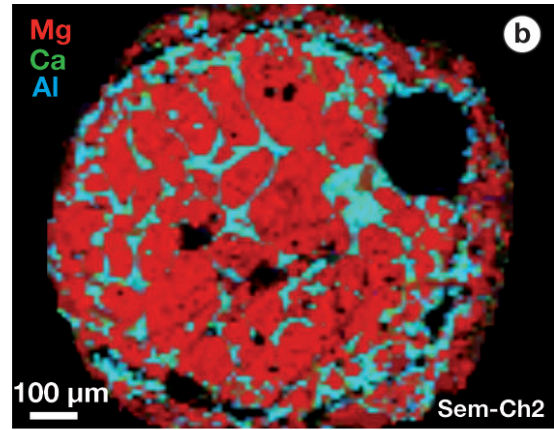
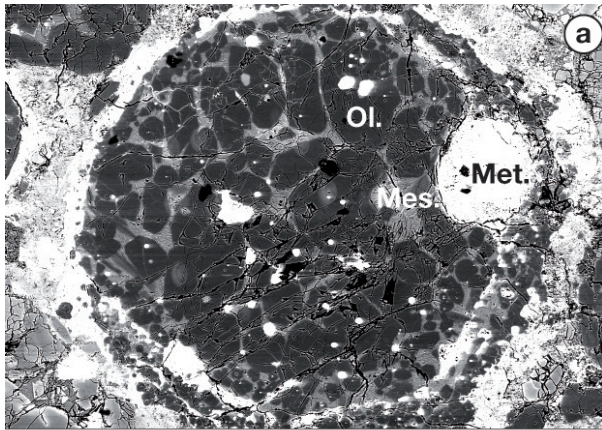
4.3. Présentation des résultats

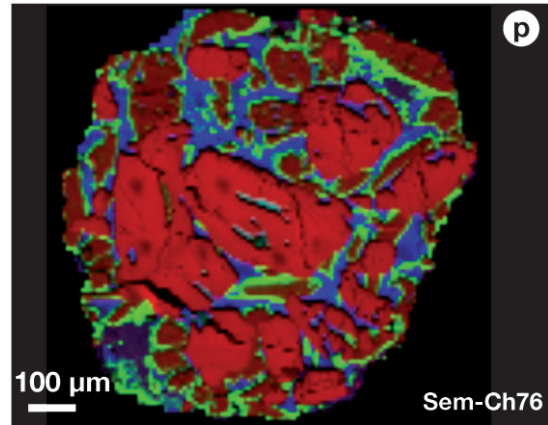
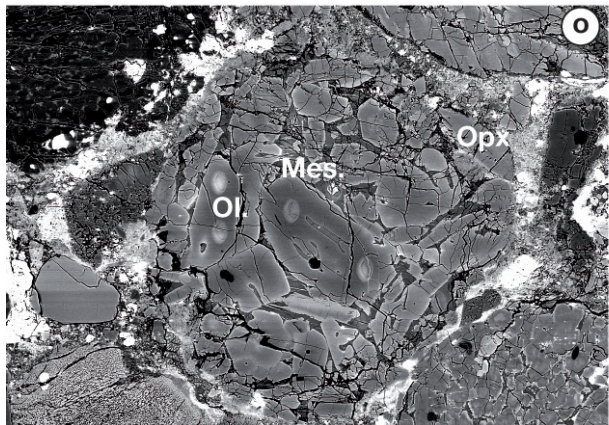
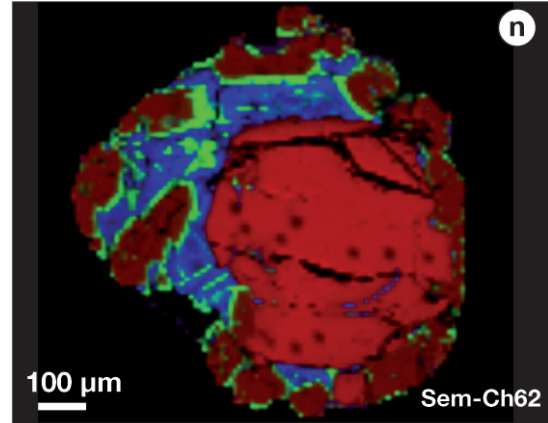
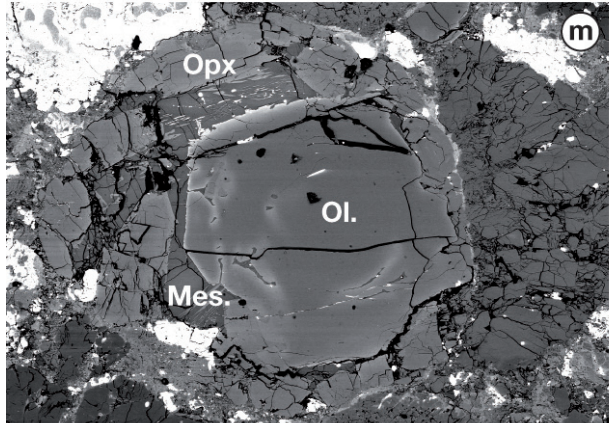
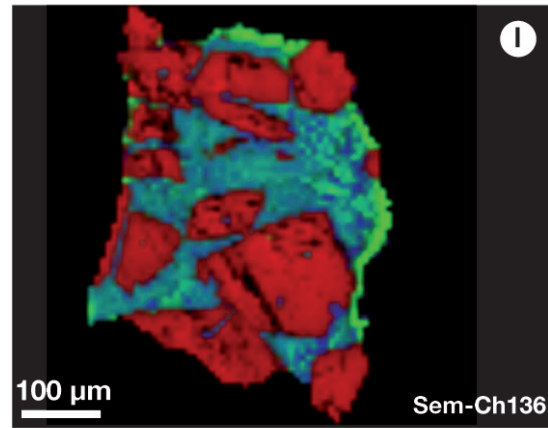
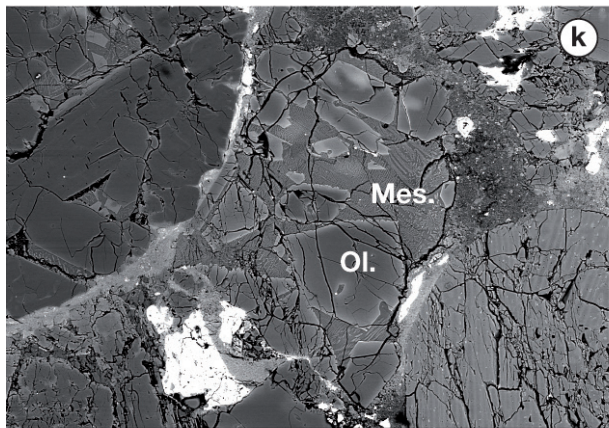
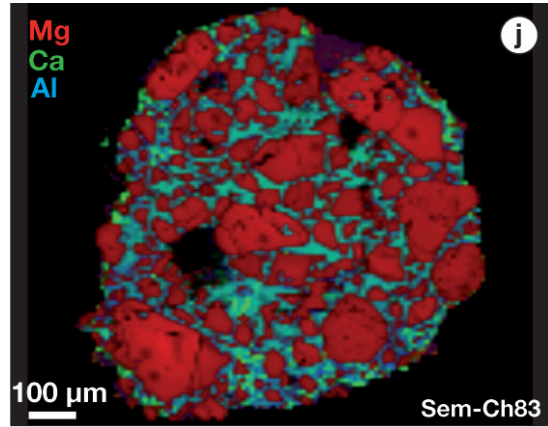
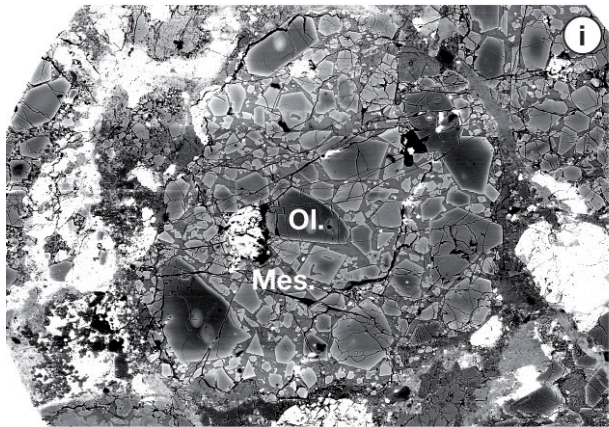
4.3.1. Pétrographie et minéralogie des chondres

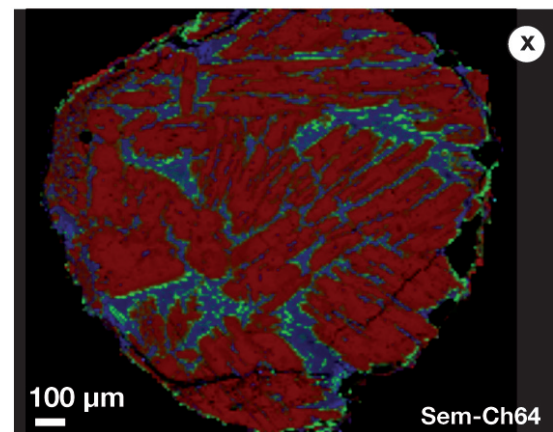
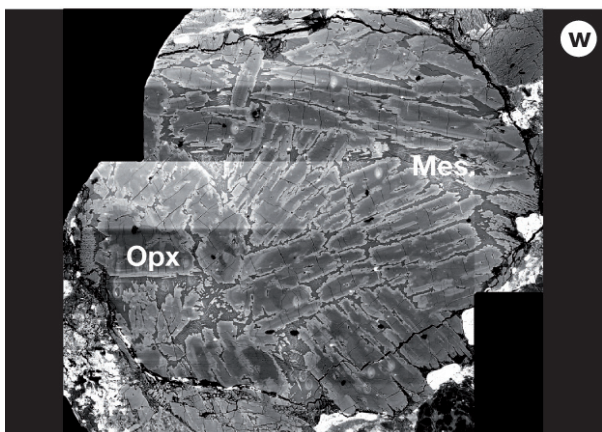
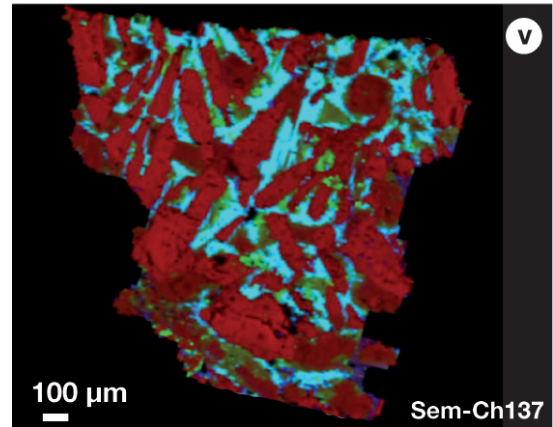
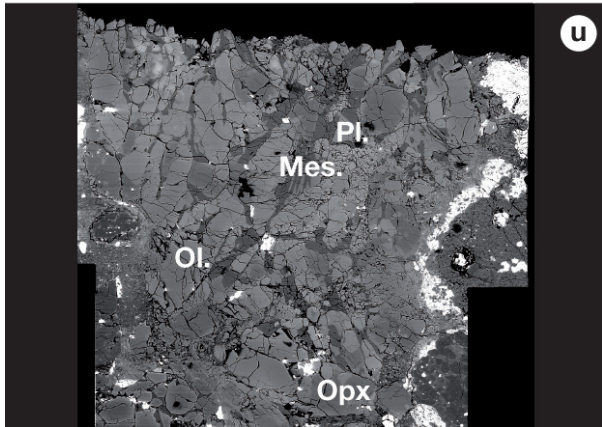
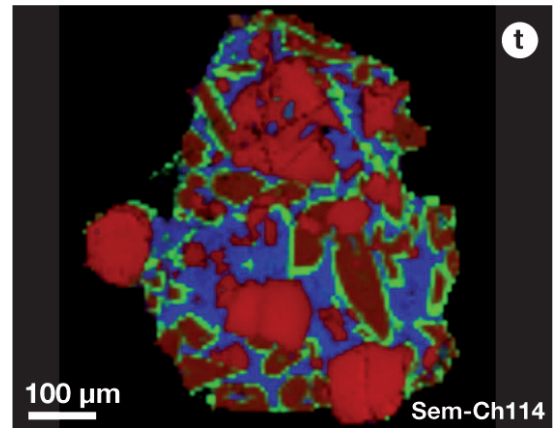
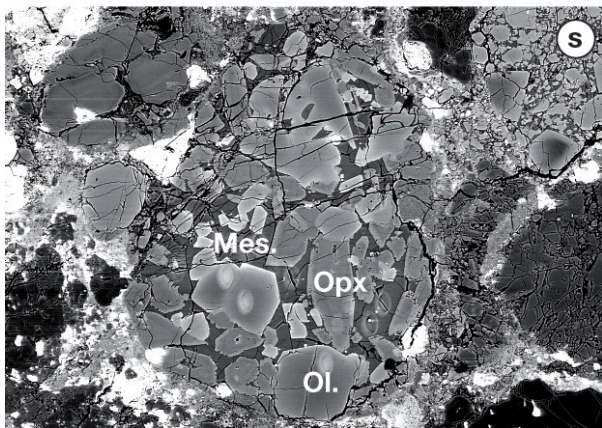
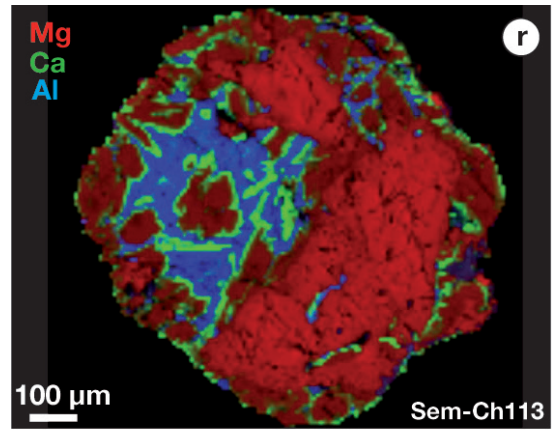
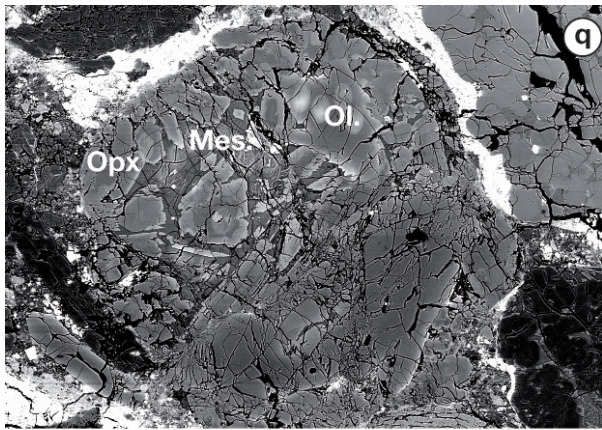
Sem-Ch2 est un chondre POP de type I composé très majoritairement d'olivines magnésiennes (Fo_{99} , Tableau 1), de nodules de Fe, Ni-métal et d'un peu d'orthopyroxène (En_{95} , Wo_4 , Fs_1), le tout entouré d'une mésostase micro-cristallisée (Fig. 5a, b). La mésostase est composée d'un mélange de micro-cristaux dendritiques de clinopyroxène et de verre. Les cristaux d'olivine sont partiellement résorbés et renferment localement de petits grains de Fe, Ni-métal et plus rarement des inclusions vitreuses. En périphérie, on retrouve des cristaux automorphes et allongés d'orthopyroxène, parallèles aux bords du chondre et qui parfois blindent des cristaux d'olivine.

Sem-Ch121 est un chondre POP de type I composé de forstérite (Fo_{96}) et de grands cristaux d'orthopyroxène (En_{91} , Wo_4 , Fs_5) en périphérie (Fig. 5c, d). Dans la partie centrale du chondre, les cristaux corrodés d'olivine sont entourés de grandes zones de mésostase vitreuse tandis qu'en bordure, les olivines présentent des textures poecilitiques dans les cristaux automorphes d'orthopyroxène.

Sem-Ch32 est un chondre PP de type I constitué quasiment exclusivement de grands cristaux d'orthopyroxène (En_{95} , Wo_1 , Fs_4) avec localement des reliques très altérées d'olivine forstéritique, entourés d'une mésostase vitreuse contenant de nombreux cristaux dendritiques de clinopyroxène (Fig. 5e, f).







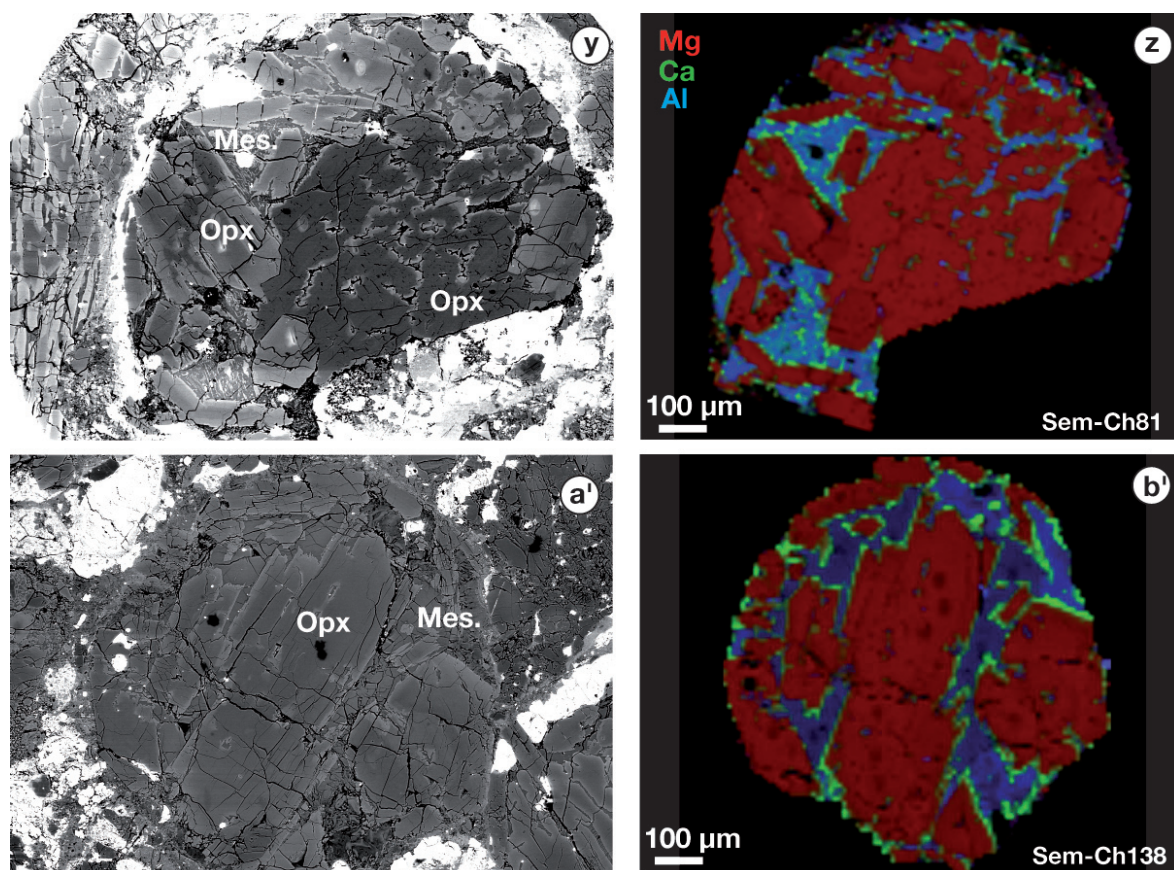


Fig. 5 : Images en électrons rétro-diffusés et cartes chimiques élémentaires combinées du Mg, Ca et Al des 14 chondres ferromagnésiens de Semarkona étudiés. Sur les cartes chimiques, le Mg est en rouge, le Ca en vert et l'Al en bleu. Ol. = olivine, Opx. = orthopyroxène, Pl. = plagioclase, Mes. = mésostase et Met. = métal.

Sem-Ch21 et Sem-Ch83 sont tous deux des chondres PO de type II composés de grands cristaux d'olivine riche en fer (Fo_{80} et Fo_{84} respectivement), zonés du cœur vers la bordure (de $\sim Fo_{87}$ à $\sim Fo_{65}$), avec quelques fois des cœurs reliques d'olivines magnésiennes ($\sim Fo_{95}$, Fig. 5g-j). Les olivines sont entourées d'une mésostase vitreuse contenant des clinopyroxènes dendritiques.

Sem-Ch136 est également un chondre PO de type II qui semble être un fragment de chondre (Fig. 5k, l). Il contient des olivines automorphes (Fo_{85}) entourées d'une mésostase vitreuse avec des clinopyroxènes dendritiques.

Sem-Ch62, Sem-Ch76, Sem-Ch113 et Sem-Ch114 sont des chondres POP de type II composés d'olivines automorphes (Fo_{82} , Fo_{85} , Fo_{84} et Fo_{78} respectivement) et de cristaux d'orthopyroxène (En_{67} , Wo_5 , Fs_{28} ; En_{73} , Wo_8 , Fs_{19} ; En_{70} , Wo_7 , Fs_{23} et En_{67} , Wo_8 , Fs_{25} respectivement) principalement en périphérie des chondres et entourés d'une mésostase vitreuse (Fig. 5m-t). Ces chondres ne contiennent que peu, voire pas de clinopyroxènes. Les olivines sont zonées du cœur vers la bordure et contiennent quelques fois de petits nodules de Fe, Ni-métal.

Le chondre Sem-Ch137 est un POP de type II atypique puisqu'il assemble de façon désordonnée des cristaux de fayalite (Fe_{75}), d'orthopyroxène (En_{68}, Wo_5, Fs_{27}) et de plagioclase, entrecoupés d'une mésostase vitreuse (Fig. 5u, v). Ce chondre très fracturé semble avoir été déstructuré par un ou plusieurs impacts.

Sem-Ch64, Sem-Ch81 et Sem-Ch138 sont des chondres PP de type II constitués de grands cristaux automorphes d'orthopyroxène ($En_{75}, Wo_{0,5}, Fs_{24,5}$; En_{80}, Wo_3, Fs_{17} et En_{77}, Fs_{23} respectivement) entourés d'une mésostase vitreuse pour Sem-Ch138 et une mésostase vitreuse avec de petits cristaux dendritiques de clinopyroxène pour Sem-Ch64 et Sem-Ch81 (Fig. 5w-b'). Sem-Ch81 contient quelques petites reliques de forstérite dans les grands cristaux d'orthopyroxène.

Il est intéressant de noter que lorsque l'olivine et l'orthopyroxène cohabitent, la croissance du second se fait toujours au détriment du premier (textures poecilitiques des olivines dans le pyroxène). D'autre part, on remarque que l'orthopyroxène est systématiquement plus ferreux que l'olivine.

4.3.2. Compositions chimiques des chondres

Les compositions chimiques en roches totales ainsi que des différentes composantes minéralogiques calculées à partir des cartes chimiques sont compilées dans le Tableau 1.

Tableau 1 : Compositions chimiques et proportions de chaque phase minérale présente dans les chondres de cette étude.

Chondre	Phase (%)	Px [†] (%)	Al ₂ O ₃ %ox.	CaO	TiO ₂	MgO	SiO ₂	Cr ₂ O ₃	FeO	MnO	Na ₂ O	K ₂ O	Total
Sem-Ch2	I POP												
olivine	53		0,13	0,32	0,03	53,88	42,89	0,44	1,21	0,06	0,01	0,01	98,97
opx	17,4		1,93	2,11	0,31	36,33	57,30	0,83	1,05	0,16	0,01	0,01	100,03
verre	22,4		17,67	15,29	0,63	6,00	54,44	0,48	2,74	0,11	1,43	0,08	97,45
métal	7,2		-	-	0,05	-	-	0,21	90,20 [‡]	0,03	-	0,04	
total		25	4,36	3,96	0,21	36,22	44,90	0,50	1,55	0,09	0,33	0,03	91,82[‡]
<i>2σ^b</i>			<i>0,22</i>	<i>0,20</i>	<i>0,01</i>	<i>1,81</i>	<i>2,24</i>	<i>0,03</i>	<i>0,08</i>	<i>0,004</i>	<i>0,02</i>	<i>0,001</i>	
Sem-Ch121	I POP												
olivine	14,1		0,00	0,36	0,02	49,91	42,14	0,39	3,29	0,27	0	0	96,39
opx	68,3		0,89	2,14	0,05	33,74	56,72	0,53	3,02	0,19	0,11	0,04	97,43
verre	17,6		15,49	10,16	0,55	4,83	57,16	0,20	2,55	0,89	4,35	0,30	96,48
total		83	3,33	3,30	0,13	30,93	54,74	0,45	2,98	0,32	0,84	0,08	97,11
<i>2σ</i>			<i>0,17</i>	<i>0,17</i>	<i>0,01</i>	<i>1,55</i>	<i>2,74</i>	<i>0,02</i>	<i>0,15</i>	<i>0,02</i>	<i>0,04</i>	<i>0,004</i>	
Sem-Ch32	I PP												
opx	58,57		0,23	0,48	0,03	34,30	57,25	0,81	2,51	1,08	0,03	0	97,11
verre+cpx	41,43		6,78	7,32	0,36	10,51	65,30	0,49	2,39	0,34	1,96	0,56	95,45
total		0	2,94	3,31	0,17	24,45	60,59	0,68	2,46	0,77	0,83	0,23	96,42
<i>2σ</i>			<i>0,15</i>	<i>0,17</i>	<i>0,01</i>	<i>1,22</i>	<i>3,03</i>	<i>0,03</i>	<i>0,12</i>	<i>0,04</i>	<i>0,04</i>	<i>0,01</i>	

Sem-Ch21	II PO												
olivine	43,2	0,05	0,27	0,01	42,03	38,51	0,48	17,43	0,38	0,03	0,01	99,20	
verre+cpx	56,8	4,48	4,71	0,36	10,90	58,92	0,44	15,49	0,37	1,61	0,39	97,68	
total		2,57	2,79	0,21	24,35	50,1	0,46	16,33	0,37	0,93	0,23	98,33	
2σ		0,13	0,14	0,01	1,22	2,51	0,02	0,82	0,02	0,05	0,01		
		100											
Sem-Ch83	II PO												
olivine	62,1	0,02	0,60	0	43,50	38,93	0,41	14,93	0,33	0,03	0	98,75	
verre	37,9	7,65	7,22	0,47	3,33	60,66	0,11	14,61	0,25	3,32	0,58	98,19	
total		2,91	3,11	0,18	28,28	47,17	0,29	14,81	0,30	1,28	0,22	98,54	
2σ		0,15	0,16	0,01	1,41	2,36	0,01	0,74	0,01	0,06	0,01		
		0											
Sem-ch136	II PO												
olivine	50,7	0,03	0,35	0	44,20	40,85	0,30	13,73	0,20	0	0	99,66	
verre	49,3	6,97	7,89	0,35	4,98	58,17	0,72	13,48	0,31	2,47	0,50	95,85	
total		3,45	4,07	0,17	24,86	49,39	0,51	13,61	0,26	1,22	0,25	97,78	
2σ		0,17	0,20	0,01	1,24	2,47	0,03	0,68	0,01	0,06	0,01		
		0											
Sem-Ch62	II POP												
olivine	33,7	0,08	0,18	0,03	41,45	38,78	0,39	16,57	0,40	0,02	0,04	97,95	
opx	42,7	0,70	2,42	0,01	21,64	55,27	0,87	15,86	0,71	0,05	0,01	97,54	
verre	23,6	8,47	2,78	0,41	2,09	65,97	0,10	13,77	0,44	4,56	0,51	99,09	
total		2,32	1,75	0,11	23,70	52,24	0,53	15,61	0,54	1,10	0,14	98,04	
2σ		0,12	0,09	0,01	1,19	2,61	0,03	0,78	0,03	0,06	0,007		
		56											
Sem-Ch76	II POP												
olivine	37,1	0,02	0,56	0	43,21	40,57	0,40	13,13	0,40	0	0,04	98,34	
opx	44,2	0,33	3,58	0,04	24,34	55,98	0,92	11,53	0,71	0,05	0,01	97,49	
verre	18,7	13,20	4,17	0,51	1,02	67,02	0,10	7,03	0,52	5,41	0,59	99,57	
total		2,62	2,57	0,11	26,95	52,28	0,57	11,27	0,56	1,03	0,13	98,09	
2σ		0,13	0,13	0,01	1,35	2,61	0,03	0,56	0,03	0,05	0,006		
		54											
Sem-Ch113	II POP												
olivine	30,7	0,21	0,22	0,02	41,15	43,30	0,58	13,87	0,51	0,04	0,02	99,92	
opx	53,1	1,28	3,16	0,02	23,49	54,70	0,82	13,95	0,58	0,09	0,02	98,11	
verre	16,2	10,98	2,70	0,53	2,47	63,99	0,13	10,31	0,49	4,16	0,43	96,19	
total		2,52	2,19	0,10	25,51	52,71	0,63	13,33	0,54	0,73	0,09	98,36	
2σ		0,13	0,11	0,01	1,28	2,64	0,03	0,67	0,03	0,04	0,004		
		63											
Sem-ch114	II POP												
olivine	28	0,02	0,28	0,01	38,97	39,04	0,43	19,45	0,44	0,03	0,01	98,68	
opx	46,8	0,32	3,95	0,04	22,32	54,95	1,00	14,95	0,64	0,03	0,01	98,20	
verre	25,2	12,72	2,34	0,52	1,31	64,29	0,03	13,68	0,19	3,80	0,85	99,73	
total		3,36	2,51	0,15	21,69	52,85	0,59	15,89	0,47	0,98	0,22	98,72	
2σ		0,17	0,13	0,01	1,08	2,64	0,03	0,79	0,02	0,05	0,01		
		63											
Sem-Ch137	II POP												
olivine	23,8	0,02	0,31	0,00	36,34	38,96	0,20	21,72	0,48	0,01	0,01	98,04	
opx	58,9	0,81	2,59	0,05	24,24	53,50	0,82	16,75	0,34	0,03	0,01	99,13	
verre+pl	17,3	25,37	10,47	0,36	1,40	50,13	0,03	9,46	0,01	2,40	0,20	99,82	
total		4,87	3,41	0,09	23,17	49,46	0,53	16,67	0,32	0,44	0,04	98,99	
2σ		0,24	0,17	0,004	1,16	2,47	0,03	0,83	0,02	0,02	0,002		
		71											
Sem-Ch64	II PP												
opx	77,8	0,08	0,20	0,01	24,87	55,53	0,54	14,55	0,41	0,02	0,02	96,23	
verre	22,2	7,69	3,06	0,31	0,57	63,18	0,51	19,80	0,48	2,87	0,57	99,03	
total		1,77	0,83	0,08	19,48	57,23	0,53	15,72	0,43	0,65	0,14	96,86	
2σ		0,09	0,04	0,004	0,97	2,86	0,03	0,79	0,02	0,03	0,007		
		100											
Sem-Ch81	II PP												
opx	80,1	0,14	1,39	0,02	27,95	56,01	0,71	10,96	0,42	0,01	0,01	97,62	
verre	19,9	12,30	3,20	0,45	0,32	62,70	0,35	12,34	0,53	4,45	0,94	97,58	
total		2,56	1,75	0,11	22,45	57,35	0,64	11,24	0,44	0,90	0,19	97,61	
2σ		0,13	0,09	0,01	1,12	2,87	0,03	0,56	0,02	0,04	0,01		
		100											

sem-Ch138	II PP												
opx	76,2		0,17	0,20	0,01	27,57	55,57	0,44	14,10	0,37	0,02	0,01	98,45
verre	23,8		7,85	2,15	0,37	1,99	64,18	0,03	16,07	0,59	3,32	0,20	96,76
total		100	2,00	0,67	0,10	21,48	57,62	0,34	14,57	0,42	0,81	0,06	98,05
2σ			0,10	0,03	0,005	1,07	2,88	0,02	0,73	0,02	0,04	0,003	98,05

[†] Px = %opx / (%opx+%ol) × 100. [‡] L'erreur à 2 sigma est difficile à calculer puisqu'elle dépend à la fois des écart-types sur chaque analyse et surtout des incertitudes liées à la détermination des contours du chondre ou des contours des différentes phases minérales. Elle est estimée à 5% de la concentration de l'élément considéré. ^{*} La quantité de Fe métal n'est pas prise en compte dans le calcul total de la concentration en FeO, ce qui explique un bouclage bien inférieur à 100%. Opx = orthopyroxène, cpx = clinopyroxène et pl = plagioclase.

Comme l'atteste la Figure 6, sur laquelle les compositions globales normalisées à la composition des CI (Lodders, 2003) sont comparées à la gamme de compositions observée pour les chondres ferromagnésiens de Semarkona par Jones et Scott (1989) et Jones (1990, 1994, 1996), ces chondres sont tout à fait ordinaires et parfaitement représentatifs des chondres de la chondrite Semarkona.

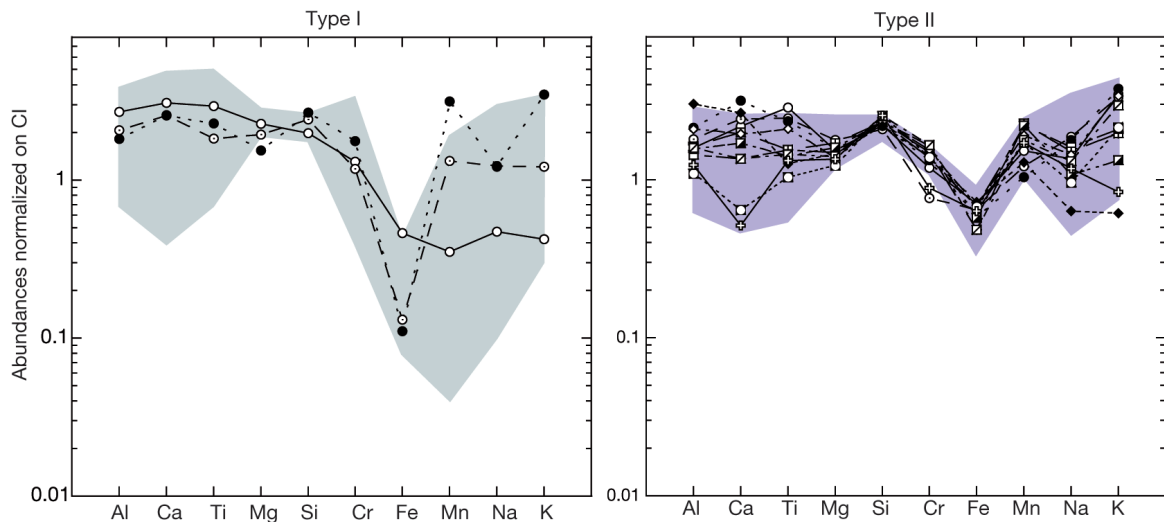


Fig. 6 : Compositions globales des chondres de cette étude normalisées aux CI (Lodders, 2003). Les gammes de compositions des chondres de Semarkona étudiés par Jones et Scott (1989, 1990, 1994, 1996) sont représentées par les zones de couleurs vertes et violettes en arrière plan.

Les variations de concentrations en réfractaires (Ca, Al et Ti) reflètent les variations d'abondance de mésostase, qui est la phase porteuse des réfractaires, par rapport aux autres phases minérales. Les chondres étudiés sont de façon générale plus riches en mésostase (entre 17% et 50% de la surface globale, Fig. 5 et Tableau 1) que la moyenne des chondres ferromagnésiens de Semarkona, du fait qu'ils ont été choisis pour leurs larges plages de mésostase propices pour les analyses de sonde ionique. Cela se traduit par des concentrations en éléments réfractaires situées dans la partie haute de la gamme de compositions (Fig. 6). Cela explique également pourquoi les concentrations en Mg (porté principalement par l'olivine et l'orthopyroxène) sont situées dans la partie basse de la gamme de composition (Fig. 6). Tous les chondres, à l'exception de Sem-Ch2, présentent des concentrations en éléments modérément volatils et volatils (Cr, Mn, Na, K) soit similaires soit enrichies par rapport

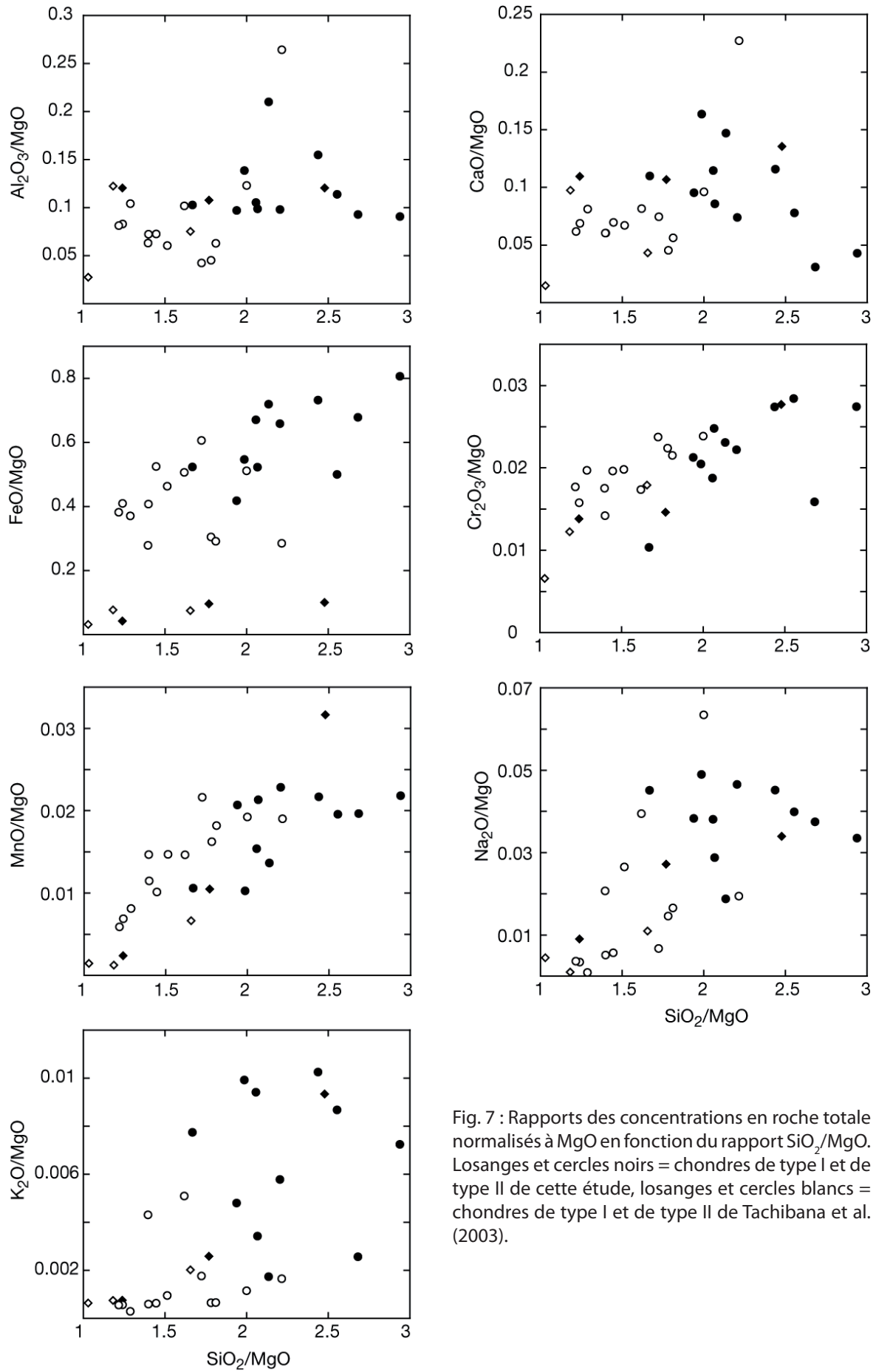


Fig. 7 : Rapports des concentrations en roche totale normalisés à MgO en fonction du rapport SiO_2/MgO . Losanges et cercles noirs = chondres de type I et de type II de cette étude, losanges et cercles blancs = chondres de type I et de type II de Tachibana et al. (2003).

aux CI. Cela peut également être expliqué par l'abondance relative de la mésostase par rapport aux autres phases minérales. En revanche, contrairement aux autres éléments modérément volatils, Fe est systématiquement appauvri par rapport aux CI y compris dans les chondres de type II (Fig. 6). La raison d'un tel déficit est peut être à chercher au niveau du comportement ubiquiste du Fe lors de la formation des chondres, qui se traduit par un partitionnement entre les phases silicatées (sous forme de FeO) et métalliques (sous forme de Fe métal) en fonction de la fugacité en oxygène suivie d'une séparation mécanique entre les deux phases (Rambaldi et Wasson, 1981; Zanda et al., 1994).

Lorsque l'on compare les compositions chimiques globales des chondres on constate qu'il semble exister des corrélations positives entre les rapports des éléments modérément volatils et volatils/MgO en fonction du rapport SiO₂/MgO (Fig. 7). Cette corrélation très nette pour les rapports MnO/MgO et Cr₂O₃/MgO et Na₂O/MgO, est cependant moins marquée pour le rapport K₂O/MgO, probablement en raison des très faibles concentrations en K₂O dans les chondres. Concernant le rapport FeO/MgO, il existe un découplage entre les chondres de type I et de type II mais dans les deux cas une corrélation positive avec le rapport SiO₂/MgO est observée. Ces corrélations positives entre les concentrations des éléments modérément volatils et volatils (Si, Cr, Fe, Mn, Na et K) dans les chondres indiquent qu'ils ont évolués conjointement lors de la formation des chondres.

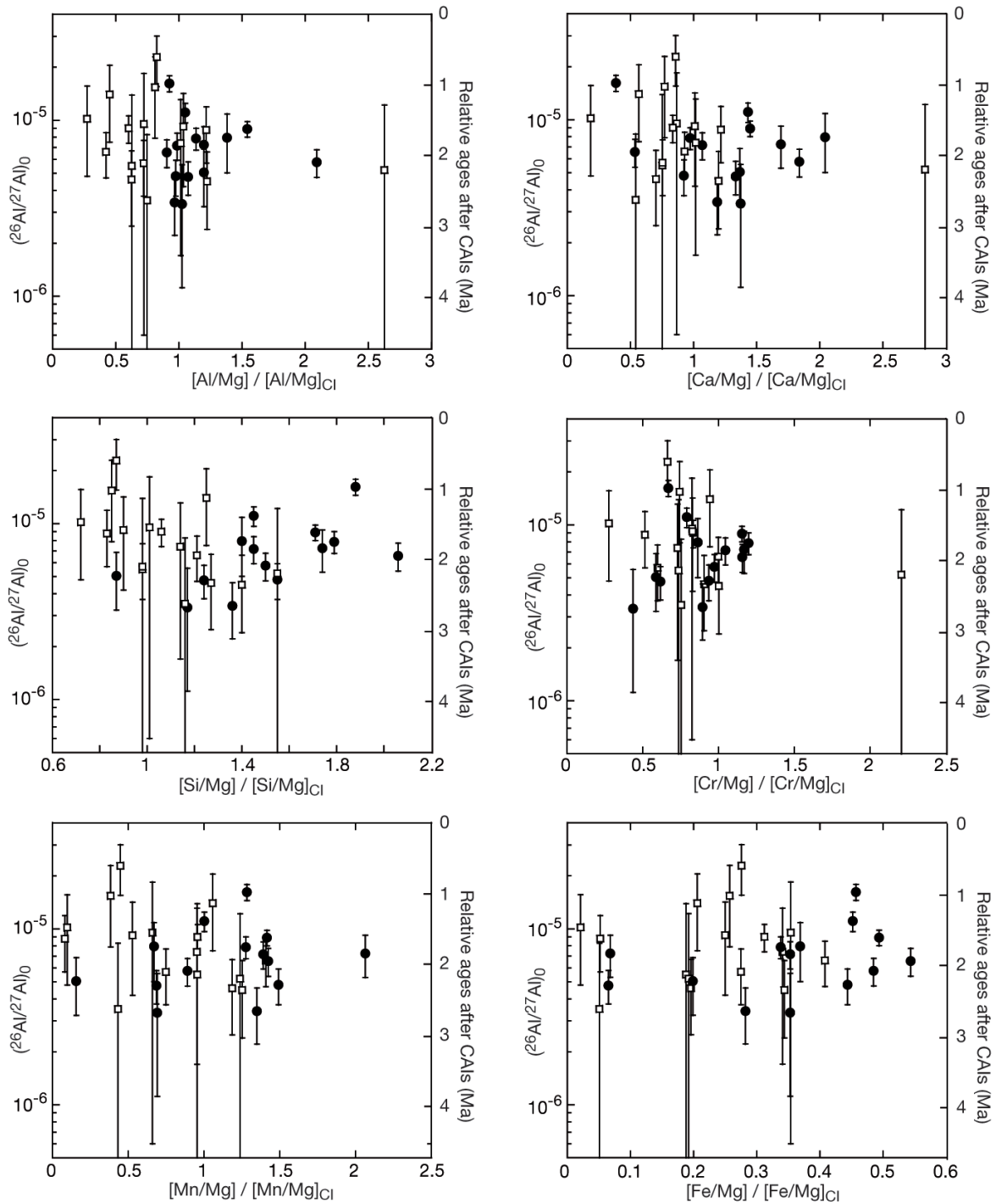
A l'inverse, aucune corrélation n'est observée entre les rapports des réfractaires/MgO en fonction du rapport SiO₂/MgO (Fig. 7). Cela indique que l'évolution des concentrations des réfractaires dans les chondres n'est pas couplée à celle des éléments modérément volatils et volatils.

4.3.3. Relations entre les âges relatifs et les compositions chimiques

Tableau 2 : (²⁶Al/²⁷Al)₀ et âges relatifs après les CAIs des chondres de cette étude.

Chondre	type	(²⁶ Al/ ²⁷ Al) ₀	2σ	Age relatif (Ma)	2σ
Sem-Ch2	I POP	0,5043×10 ⁻⁵	0,1811×10 ⁻⁵	2,457	+ 0,465 / - 0,312
Sem-Ch121	I POP	0,4765×10 ⁻⁵	0,1031×10 ⁻⁵	2,523	+ 0,257 / - 0,206
Sem-Ch32	I PP	0,7245×10 ⁻⁵	0,1950×10 ⁻⁵	2,081	+ 0,330 / - 0,251
Sem-Ch21	II PO	1,105×10 ⁻⁵	0,1393×10 ⁻⁵	1,637	+ 0,142 / - 0,125
Sem-Ch83	II PO	0,3344×10 ⁻⁵	0,2229×10 ⁻⁵	3,002	+ 0,555 / - 0,362
Sem-Ch136	II PO	0,7941×10 ⁻⁵	0,2926×10 ⁻⁵	1,985	+ 0,484 / - 0,330
Sem-Ch62	II POP	0,4807×10 ⁻⁵	0,1101×10 ⁻⁵	2,513	+ 0,274 / - 0,217
Sem-Ch76	II POP	0,3413×10 ⁻⁵	0,1198×10 ⁻⁵	2,874	+ 0,455 / - 0,317
Sem-Ch113	II POP	0,7175×10 ⁻⁵	0,1254×10 ⁻⁵	2,092	+ 0,202 / - 0,170
Sem-Ch114	II POP	0,8916×10 ⁻⁵	0,09056×10 ⁻⁵	1,863	+ 0,113 / - 0,102
Sem-Ch137	II POP	0,5768×10 ⁻⁵	0,1031×10 ⁻⁵	2,322	+ 0,207 / - 0,173
Sem-Ch64	II PP	0,6562×10 ⁻⁵	0,1184×10 ⁻⁵	2,186	+ 0,210 / - 0,174
Sem-Ch81	II PP	0,7872×10 ⁻⁵	0,1115×10 ⁻⁵	1,994	+ 0,161 / - 0,139
Sem-Ch138	II PP	1,619×10 ⁻⁵	0,1672×10 ⁻⁵	1,235	+ 0,115 / - 0,104

Lorsque l'on compare les âges relatifs obtenus lors de notre étude (Tableau 2) avec les compositions chimiques normalisées au Mg et aux CI, on s'aperçoit qu'il n'existe aucune corrélation particulière (Fig. 8).



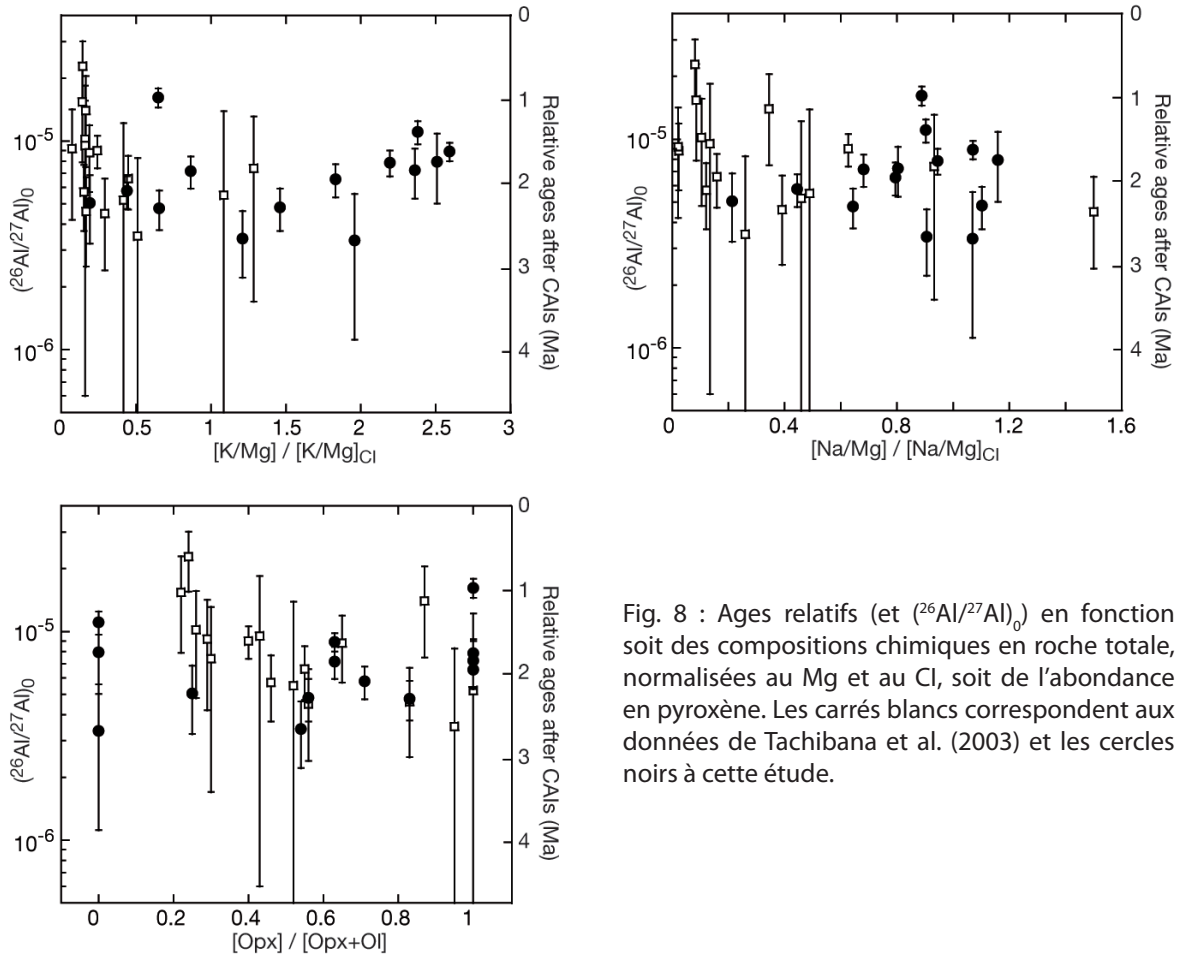


Fig. 8 : Ages relatifs (et $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$) en fonction soit des compositions chimiques en roche totale, normalisées au Mg et au Cl, soit de l'abondance en pyroxène. Les carrés blancs correspondent aux données de Tachibana et al. (2003) et les cercles noirs à cette étude.

L'absence manifeste de corrélation entre les âges relatifs et Si ainsi que les volatils dans les chondres de Semarkona et de Bishunpur, déduite de cette étude, va à l'encontre des interprétations proposées par Tachibana et al. (2003). Les raisons possibles d'une telle divergence de résultats ainsi que les implications qui en découlent sont discutées dans le paragraphe suivant.

4.4. Discussion

Si l'on observe en détails les 17 mesures de $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ utilisées par Tachibana et al. (2003) dans leur étude, on peut s'apercevoir qu'à deux exceptions près, qui sont d'ailleurs systématiquement en dehors des intervalles de confiance à 95% des droites de régression (Fig. 1, 2), elles présentent toutes des valeurs qui se recoupent fortement en raison des importantes barres d'erreurs analytiques. Cela signifie que ces chondres, dans leur immense majorité, ne présentent pas de différences d'âges relatifs réellement significatives. A ce titre, il semble (i) peu justifié de chercher à établir des corrélations entre les âges relatifs et les compositions chimiques des chondres et (ii) que cette étude est fondée sur une surinterprétation des données analytiques. La combinaison dans les mêmes figures des résultats de cette étude avec celle de Tachibana et al. (2003) montre d'ailleurs clairement qu'avec des précisions analytiques bien meilleures sur les mesures de $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ et ainsi sur les calculs des

âges relatifs, on n'observe pas de corrélation avec les concentrations en Si et en éléments volatils (Fig. 7).

L'absence de corrélation entre les âges relatifs déduits des $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ et les compositions chimiques en roche totale peut être interprétée de deux façons :

- Soit il n'existe réellement aucune corrélation entre les compositions chimiques et les âges de formation des chondres, auquel cas la variabilité de compositions chimiques observée dans les chondres n'est pas liée à leur évolution dans la nébuleuse solaire mais est complètement héritée de la variabilité des précurseurs. Dans ce cas de figure, il y a alors un découplage complet entre la composition chimique d'un chondre et le moment de sa formation. Cette interprétation rejoint la vision canonique du modèle d'évolution nébulaire, qui prévoit la formation des chondres par un mécanisme de chauffe instantanée («flash heating») d'agglomérats de poussières, condensées à partir du gaz, e.g. les chondres pauvres en volatils se forment à partir de précurseurs pauvres en volatils (e.g. Grossman and Wasson, 1983; Grossman, 1988). Cela revient à considérer que la formation des chondres s'effectue en système fermé sans aucun processus d'évaporation et/ou de condensation.

Cependant, des expériences ont montré qu'il était impossible d'expliquer les teneurs en volatils des chondres de type II avec ce modèle (Yu et Hewins, 1998; Yu et al., 2003). En effet, pour empêcher la perte complète d'éléments volatils tels que S, Na ou K lors la chauffe, même instantanée, d'un échantillon, des conditions de fugacité en oxygène, de pressions partielles et totale très largement supérieures aux valeurs canoniques de la nébuleuse sont nécessaires. Même si les conditions de pressions partielles canoniques des éléments volatils dans la nébuleuse sont mal connues, elles étaient nécessairement suffisamment élevées pour permettre leur recondensation dans les chondres.

D'autre part, les olivines magnésiennes des chondres de type I des chondrites carbonées et ordinaires ne sont pas en équilibre chimique avec la mésostase adjacente (Libourel et al., 2006). Cela implique que cette mésostase n'a pas la composition du liquide à partir duquel les olivines ont cristallisé et donc, que les chondres de type I n'obéissent pas au modèle de cristallisation des chondres en système fermé. Il existe également de nombreux arguments en faveur de l'existence de processus de recyclage des chondres : cœurs reliques dans les olivines des chondres de type II (e.g. Pack et al., 2004; Ruzicka et al., 2007) ou inclusions de chondres reliques dans des chondres plus jeunes (e.g. Rubin et Krot, 1996).

Les compositions isotopiques de l'oxygène dans les minéraux des chondres de type I montrent que les olivines et les orthopyroxènes ne sont pas co-magmatiques et que les olivines n'ont pas pu cristalliser à partir de la mésostase (Chaussidon et al., 2008). Cette systématique des isotopes

de l'oxygène laisse très fortement supposer que les olivines magnésiennes des chondres de type I sont des reliques et que les interactions liquide/gaz ont joué un rôle important dans la formation des chondres.

Ainsi, puisque le modèle canonique en système fermé n'est pas en mesure d'expliquer la plupart des observations pétrographiques, chimiques et isotopiques des chondres, il est très probable que leur formation se soit produite en système ouvert et que leurs variations de compositions chimiques soit en partie liée à des processus d'évaporation/condensation en interaction avec le gaz.

- Soit il existe bien une corrélation entre les compositions chimiques et les âges de formation des chondres, auquel cas le chronomètre isotopique ^{26}Al - ^{26}Mg n'est pas un outil adapté pour dater l'évolution des compositions chimiques. On peut voir trois raisons à cela :

- La première est que tout simplement ce chronomètre n'est pas assez sensible pour permettre de dater l'évolution de la composition chimique des chondres, aussi bien intrinsèquement (demi-vie trop longue, 730 000 ans) qu'au niveau de la précision analytique (environ 100 000 ans au mieux avec les techniques actuelles, Tableau 2).

- La seconde est que la mesure d'isochrones internes permet de connaître l'âge du dernier épisode de fusion/cristallisation du chondre, mais en aucun cas ne permet de prédire qu'à cet épisode est associée ou non la condensation de Si et d'éléments volatils.

- La troisième est étroitement liée aux conditions de validité du modèle d'enrichissement des chondres en Si et en volatils développé par Tachibana et al. (2003). Dans ce modèle, la fusion des précurseurs génère l'évaporation de Si et de volatils, puis, tandis qu'une fraction de ces précurseurs est extraite de la région de formation des chondres pour cristalliser des chondres appauvris en Si et volatils, le reste en refroidissant s'enrichit en volatils qui se condensent. Ensuite, cette fraction subit une nouvelle fusion qui engendre à son tour l'évaporation de Si et de volatils, et ainsi de suite. Ce modèle est donc fondé sur une hypothèse contraignante, indispensable pour que l'utilisation du chronomètre ^{26}Al ait un sens, et qui suppose que l'ensemble des précurseurs des chondres et des chondres de chaque génération, excepté pour la fraction qui est séparée à chaque cycle, soient chauffés en même temps, s'enrichissent et s'appauvrissent en Si et volatils en même temps et de la même manière. Si cette hypothèse n'est pas vérifiée, l'utilisation du chronomètre ^{26}Al pour établir une corrélation entre les âges de formation et les compositions chimiques des chondres n'est pas justifiée.

Ainsi, il semble compliqué de chercher à établir un modèle global de formation des chondres liant les compositions chimiques aux âges de formation. En effet, si l'on considère par exemple les chondres ferromagnésiens de Semarkona dont les âges de formation s'étendent sur environ 2 Ma (Villeneuve et al., 2009), il n'y a aucune raison de penser qu'ils ont tous interagi de la même manière, avec le même gaz au cours de leur formation.

En revanche, de nombreux travaux mettent en évidence l'existence d'interactions importantes entre les chondres et une phase gazeuse riche en éléments modérément volatils et volatils. De forts gradients de compositions chimiques en Si et en éléments volatils (Na, Fe, Si) dans la mésostase de certains chondres du cœur vers la bordure ont été mesurés, e. g. le chondre de type I PO, Ch#7 (Fig. 9 et 10, Matsunami, 1993; Nagahara et al., 1999; Libourel et al., 2003, 2006; Krot et al. 2004).

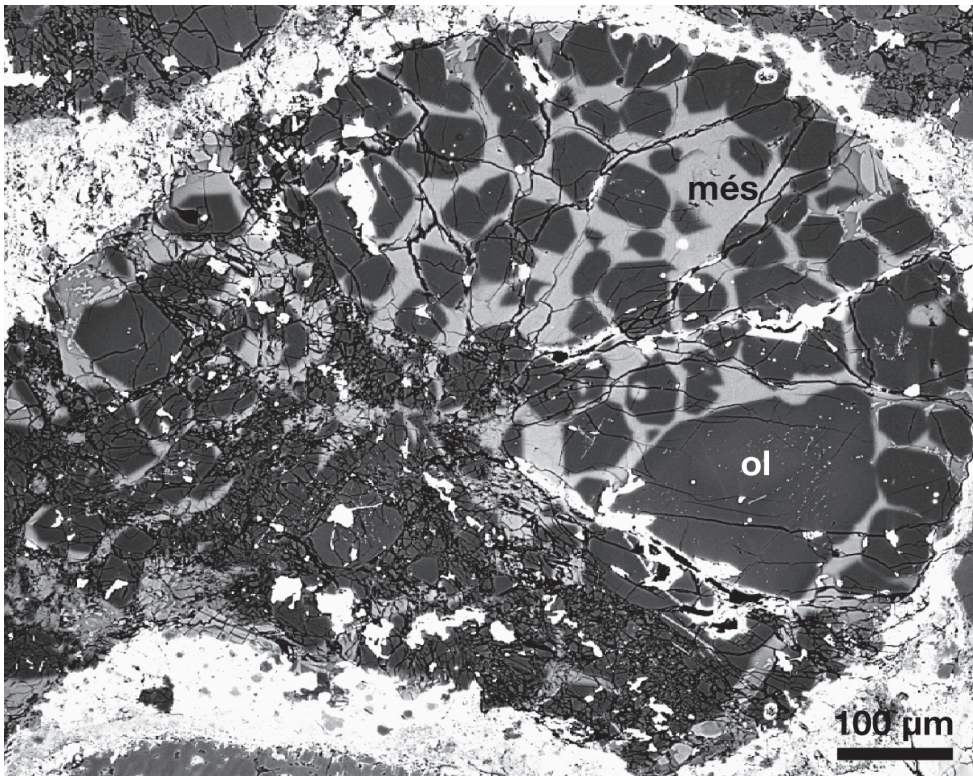


Fig. 9 : Image en électrons rétro diffusés du chondre de type I PO, Ch#7 provenant de la chondrite ordinaire Semarkona. Il est constitué d'olivines Fo_{99} entourées d'une mésostase vitreuse. Ol = olivine et més = mésostase.

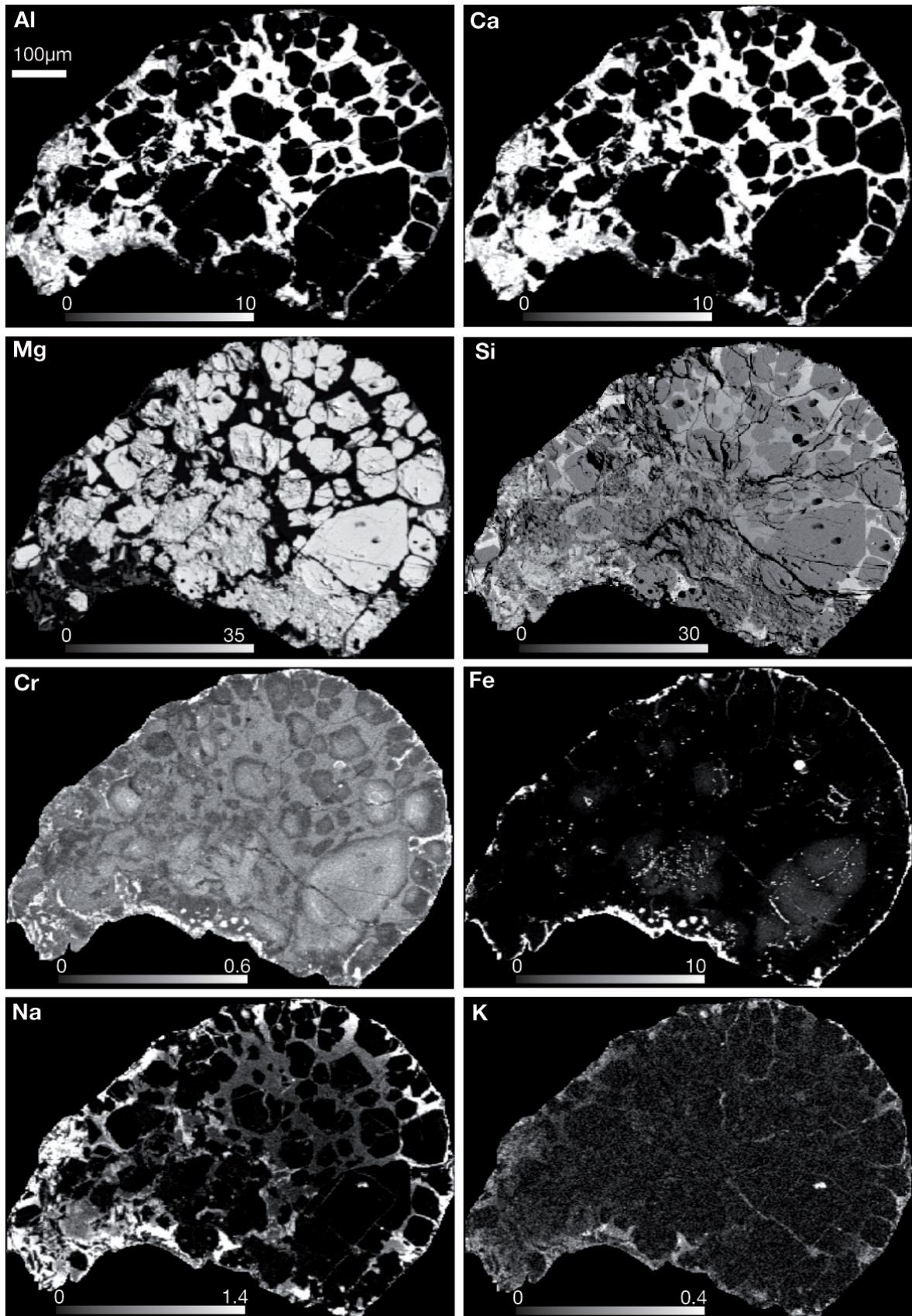


Fig. 10 : Cartes chimiques élémentaire du chondre de type I PO Ch#7 réalisée avec gOcad. Les abondances élémentaires sont en % pds. Les éléments les plus volatils (Si, Cr, Fe, Na, K) présentent dans la mésostase des gradients de concentration croissants du cœur vers la bordure du chondre. A l'inverse, les plus réfractaires (Al, Ca, Mg) ne présentent pas ce gradient.

Il existe une corrélation positive entre les teneurs en SiO_2 , K_2O et Na_2O au sein d'un même chondre et entre les chondres (Fig. 10, 11, Libourel et al., 2003). De façon générale, la mésostase des chondres PO est appauvrie en Si, Na et K par rapport à celle des POP et PP. La mésostase des type II PO est systématiquement enrichie en Si, Na et K par rapport à celle des type I PO. Des expérimentations ont montré que des interactions entre des proxy de chondres PO et un gaz de SiO permettait de reproduire des textures de chondres POP (Tissandier et al., 2002).

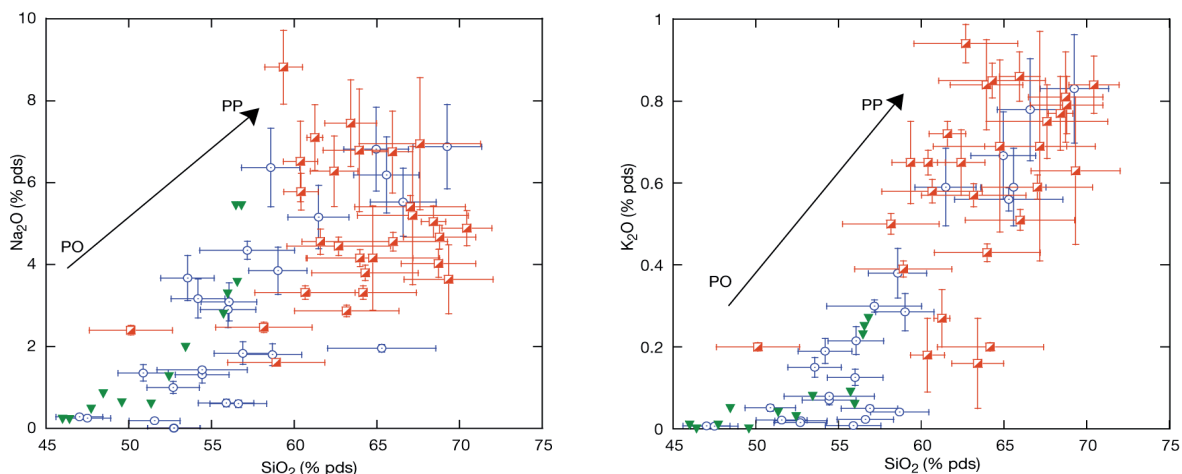


Fig. 11 : Concentrations moyennes en Na_2O et K_2O en fonction de SiO_2 de la mésostase des chondres de type I (cercle bleus) et de type II (carrés rouges) de Semarkona (données de cette étude et Libourel et al., 2003). Le profil de concentrations pour Ch#7 dont la mésostase est zonée du cœur vers la bordure est également représenté (triangles verts, d'après Libourel et al., 2003)

Cela suggère fortement que lors de leur formation, les chondres ont interagi avec la poussière et le gaz environnant, ce qui se traduit, en fonction des compositions du gaz et des chondres ainsi que des conditions de chauffe, par un enrichissement plus ou moins sensible des chondres en éléments modérément volatils et volatils (Si, Na, K, Mn, Cr) et parfois par des zonations chimiques

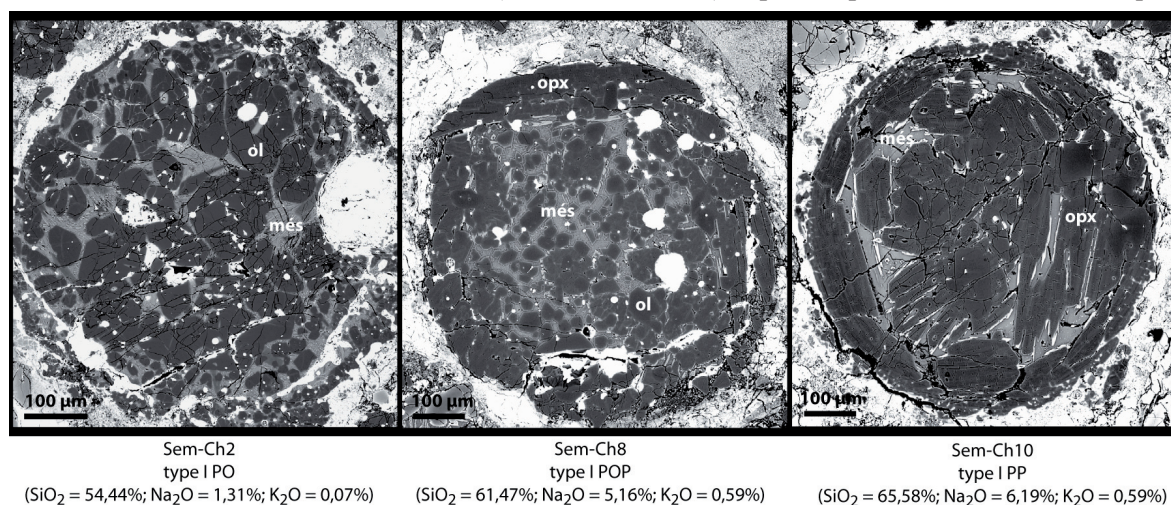


Fig. 12 : Evolution des textures des chondres de PO vers POP dans des chondres de type I. La cristallisation des orthopyroxènes s'effectue de la périphérie vers le cœur des chondres et s'accroît avec l'augmentation des compositions moyennes en SiO_2 , Na_2O et K_2O des mésostases. Ol = olivine, opx = orthopyroxène et més = mésostase.

en ces éléments du cœur vers la bordure (Fig. 10, 11). Ces enrichissements en volatils et modérément volatils s'accompagnent d'une évolution des textures minéralogiques des chondres avec la cristallisation préférentielle d'orthopyroxène au détriment de l'olivine, progressivement de la bordure vers le cœur des chondres (Fig. 12, Libourel et al., 2003, 2006; Tissandier et al. 2002).

Ainsi s'il n'existe pas de corrélation globale entre les compositions chimiques des chondres et leurs âges de formation, il semblerait qu'il puisse exister une relation «chronologique», à petite échelle spatiale et temporelle qui permettrait d'expliquer la formation de chondres riches en Si et en volatils par l'interaction de chondres appauvris en volatils et du gaz de la nébuleuse.

Le chapitre suivant est une étude pétrographique et expérimentale qui s'intéresse à ces éventuelles relations de filiation entre les différents classes de chondres, en mettant notamment l'accent sur la formation des chondres de type II PO (Fe oxydé) à partir de chondres de type I PO (Fe réduit).

Chapitre 6

Formation des Chondres : Approche Pétrographique et Expérimentale

1. Introduction	156
2. Expériences d'oxydation d'analogues de chondres de type I PO	159
2.1. Protocoles d'expérimentations sur four vertical	159
2.1.1. Description de l'appareillage	159
2.1.2. Synthèse du matériel de départ	160
2.1.3. Protocoles expérimentaux	163
2.2. Présentation des résultats	166
2.2.1. Evolutions texturales des charges expérimentales	166
2.2.2. Evolution des compositions chimiques	171
2.2.3. Coefficients de partage des éléments	181
2.3. Discussion	185
2.3.1. Interprétation des résultats expérimentaux	185
2.3.2. Formation des chondres de type II PO par oxydation à haute température des chondres de type I PO?	188
3. Modèle de formation des chondres : filiations et chronologie	202
3.1. Introduction	202
3.2. Présentation du modèle	203
3.2.1. Composition des produits de départ	203
3.2.2. Paramètres du modèle	205
3.3. Résultats	206
3.3.1. Composition chimique globale des chondres modélisés	206
3.3.2. Evolution des proportions modales des composants réfractaires et volatil	208
3.3.3. Composition du liquide volatil	210
3.4. Discussion	213
3.4.1. Profils de composition des traces et des terres rares	213
3.4.2. A propos de la composition chimique de la phase gazeuse	214
3.4.3. Une filiation entre les différents types de chondres?	215
4. Conclusion	218

1. Introduction

Dans les modèles classiques, la formation des chondres de type I est complètement dé耦plée de celle des types II avec notamment, des conditions redox radicalement différentes (réducteur pour les types I et oxydant pour les types II) impliquant, une dichotomie spatiale (e.g. Jones et al., 2005). Dans ces modèles, la variabilité des textures et des compositions chimiques est tout ou partie héritée des précurseurs suivant si l'on considère une formation en système ouvert ou fermé (e.g. Sears et al., 1996; Jones et al., 2005). D'autre part, il est considéré que la formation des chondres se produit à la faveur d'un épisode de chauffe de type «flash heating» suivi d'un refroidissement rapide (e.g. Jones et al., 2005; Hewins et al., 2005), provoqué par exemple par le passage d'une onde de choc (Desch et Connoly, 2002)

Les olivines magnésiennes sont très largement répandues dans les chondrites, et ce, de façon ubiquiste puisqu'on les retrouvent comme minéral majoritaire dans les chondres de type I PO, comme reliques en inclusion dans les olivines fayalitiques ou les orthopyroxènes dans les chondres de type II et sous forme de minéraux isolés dans la matrice (Reid et al., 1970; Fuchs et al., 1973; Nagahara, 1981; Rambaldi, 1981; Steele, 1985, 1986, 1995). Leur taille varie d'environ 10 μm jusqu'à environ 500 μm lorsqu'elles sont isolées dans la matrice des chondrites. Elles présentent la particularité d'être enrichies en éléments réfractaires lithophiles (Ca, Al, Ti et Terres Rares) et appauvries en Fe, Ni et Mn dans des proportions similaires (Klerner et al., 2000; Weinbruch et al., 2000; Pack et al., 2004, 2005). Les olivines magnésiennes présentent souvent des bordures enrichies en Fe et appauvries en Ca et Al (Pack et al., 2004).

Plusieurs études montrent que les olivines magnésiennes présentent systématiquement des enrichissements en ^{16}O par rapport aux minéraux voisins (fayalite, pyroxène) et à la mésostase (Weinbruch et al., 1993; Leshin et al., 1997, 2000; Saxton et al., 1998; Sears et al., 1998; Ruzicka et al., 2000, 2007; Pack et al., 2004; Chaussidon et al., 2008). Ces similitudes chimiques et isotopiques suggèrent que les olivines magnésiennes ont été formées par un unique processus à partir d'un nombre limité de réservoirs (Steele, 1986; Pack et al., 2004, 2005). Certains auteurs proposent que ce processus soit la condensation directe du gaz de la nébuleuse solaire (Grossman and Olsen, 1974; Steele, 1986; Weinbruch et al., 1993), d'autres suggèrent que les olivines magnésiennes ont cristallisé dans des chondres de type I riches en éléments réfractaires et pauvres en fer (McSween, 1977; Jones, 1996; Leshin et al., 1997) et d'autres encore proposent une formation par cristallisation dans des liquides réfractaires condensés à partir du gaz de la nébuleuse (Varela et al., 2002; Pack et al., 2003; Pack et al., 2004, 2005). Récemment, sur la base d'analyses chimiques et isotopiques en oxygène, Libourel et al. (2006) et Chaussidon et al. (2008) ont démontré que les olivines magnésiennes

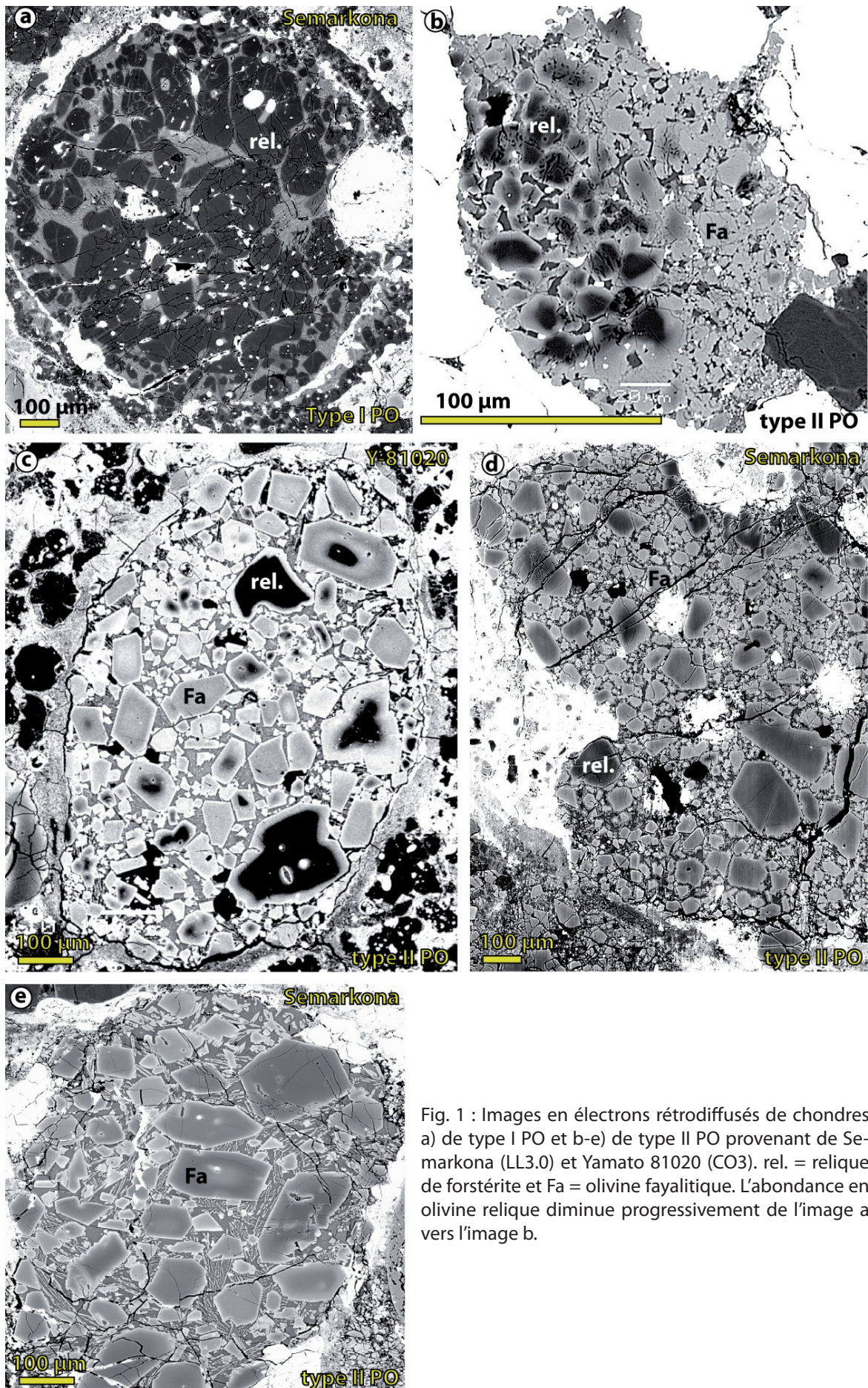


Fig. 1 : Images en électrons rétrodiffusés de chondres a) de type I PO et b-e) de type II PO provenant de Semarkona (LL3.0) et Yamato 81020 (CO3). rel. = relique de forstérite et Fa = olivine fayalitique. L'abondance en olivine relique diminue progressivement de l'image a vers l'image b.

des chondres de type I n'ont pas pu cristalliser à partir de la mésostase des chondres et que, par conséquent, il s'agissait de reliques. Dans les chondres de type I PO, ces olivines reliques présentent des textures ignées de type granoblastiques qui peuvent être interprétées comme étant héritées de fragments de planétésimaux différenciés (Libourel et Krot, 2007).

Du fait de la présence d'inclusions réfractaires et étant donné la taille de certaines olivines magnésiennes, une origine par condensation du gaz est à écarter (Pack et al., 2004). Les mesures de compositions isotopiques en Mg des olivines reliques isolées et des chondres de type I PO d'Allende montrent des âges de formation compris entre $\sim 0,15$ Ma et $\sim 3,5$ Ma après les CAIs dans le cas d'une origine nébulaire (Chap. 5, partie 3). Une formation par cristallisation dans des liquides réfractaires condensés à partir du gaz de la nébuleuse semble ainsi peu vraisemblable étant donnée qu'il faudrait que la nébuleuse reste suffisamment chaude pour condenser des liquides réfractaires dont les compositions seraient similaires pendant plus de 3 Ma.

Au delà du débat sur l'origine de ces olivines magnésiennes, il est très intéressant de noter qu'on les retrouve sous forme de reliques à la fois dans les chondres de type I et dans les chondres de type II (Fig. 1). Si l'on se restreint aux textures PO, on remarque que les olivines magnésiennes sont majoritaires dans les chondres de type I PO (Fig. 1a) alors qu'elles sont soit peu abondantes, en amas (Fig. 1b) ou isolées (Fig. 1c, d) mais toujours en inclusion dans des fayalites automorphes, soit absentes (Fig. 1e) dans les chondres de type II PO. L'exemple de la Fig. 1b montre une disposition des reliques de forstérite en amas qui n'est pas sans rappeler, nonobstant les billes de Fe métal, la morphologie d'un chondre de type I PO (e.g. Fig. 1a). D'autre part, dans le cas où la relique est bien préservée, on peut voir que les contours de la surcroissance suivent parfaitement ceux de la relique. En revanche, avec la résorption de la relique, la fayalite acquiert peu à peu une texture automorphe (Fig. 1b, c).

La limite entre chondres de type I et de type II est arbitrairement placée à Fe_{90} ou En_{90} . Ainsi par habitude, les chondres de type I sont dits réduits (i.e. Fe métal) et les types II sont dits oxydés (i.e. FeO). Néanmoins, les observations chimiques et pétrographiques montrent qu'il ne s'agit pas d'une limite franche (e.g. Chap. 2, Fig. 14) mais qu'il s'agit plutôt une transition progressive entre les types I et les types II, marquée par une résorption progressive des olivines reliques (Fig. 1)

La présence de forstérites reliques dans ces deux types de chondres ainsi que l'absence de limite chimique et pétrographique franche semble indiquer qu'il existe peut être un lien entre les chondres de type I PO et de type II PO. D'autre part, l'étude des compositions isotopiques en oxygène des olivines reliques des chondres de type II suggèrent que celles-ci sont similaires aux olivines

reliques des chondres de type I (Connolly et Huss, 2010). S'il existe bien un lien entre les chondres de type I PO et les chondres de type II PO, il est possible d'imaginer d'autres explications pour la formation d'olivines riches en FeO. On peut, par exemple, penser à un changement de composition chimique dû à l'oxydation du Fe métal, entraînant une arrivée plus ou moins importante de FeO dans le système forstérite-mésostase. Puisque les olivines magnésiennes reliques sont très altérées et en inclusions dans les fayalites pour les type II PO alors qu'elles sont moins altérées dans les type I PO (Fig. 1), il y a tout lieu de penser que les chondres de type II PO dérivent par oxydation des chondres de type I PO. Dans un premier temps, afin de tester cette hypothèse, nous avons conduit une série d'expériences consistant à oxyder des analogues de chondres de type I PO, en fonction de la teneur initiale en fer métal et des paramètres de temps et de fO_2 . Dans un second temps, une étude des compositions élémentaires en majeurs et en traces des chondres des chondrites ordinaires Semarkona et Bishunpur, nous a permis de pousser plus loin ce raisonnement en nous intéressant aux relations de filiations entre les différentes classes de chondres porphyriques (i.e. I PO, POP, PP, ...) ainsi qu'aux degrés d'interaction avec le gaz de la nébuleuse.

2. Expériences d'oxydation d'analogues de chondres de type I PO

2.1. Protocoles d'expérimentations sur four vertical

Ce paragraphe décrit l'ensemble des expérimentations, conduites au sein du laboratoire de pétrologie expérimentale du CRPG, qui nous ont permis d'étudier le rôle du fer métal sur des analogues artificiels de chondres de type I, porphyriques à olivines (PO) dans des conditions oxydantes et de hautes températures.

2.1.1. Description de l'appareillage

Toutes les expériences ont été réalisées à 1 atm dans un four vertical GERO (Fig. 2). Ce modèle de four étanche permet l'injection d'un gaz/ou mélange de gaz afin de contrôler la pression partielle en oxygène (PO_2) à l'intérieur. La température est réglée à l'aide d'un thermocouple Pt Rh6-Pt Rh30 situé à l'extrémité de la canne porte échantillons. La calibration du thermocouple est réalisée à partir des points de fusion de l'or et du palladium qui sont utilisés comme fusible afin de déterminer la température absolue dans le four à une température de consigne donnée. D'autre part, la canne porte échantillons est calibrée afin de déterminer la zone chaude du four.

Selon les expériences, les charges expérimentales sont accrochées soit sur un «panier» porte échantillon classique soit sur le panier de la canne dite «multitrempe» qui, comme son nom l'indique, permet de tremper individuellement chaque charge (Fig. 2). Dans les deux cas, la trempe

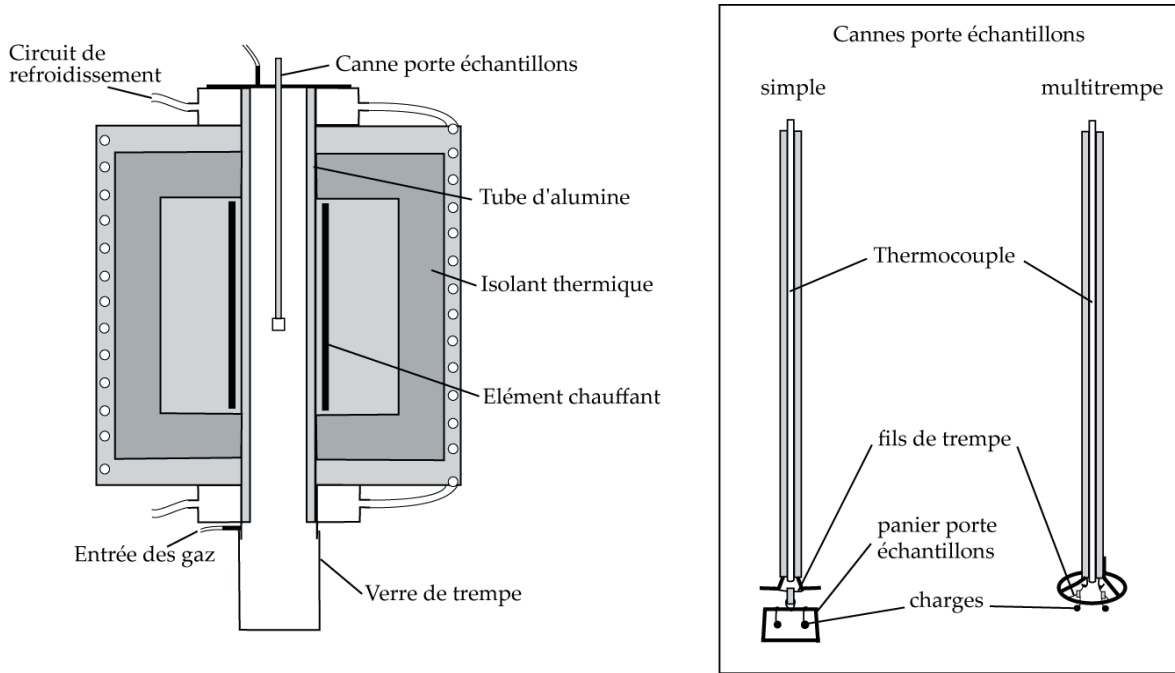


Fig. 2 : Schéma en coupe du four vertical GERO et détails des cannes porte échantillons (d'après Faure, 2001).

des échantillons s'effectue par l'envoi d'une décharge électrique dans les fils de platine qui fondent par court-circuit et libèrent soit le panier soit la charge. La configuration verticale du four permet la chute directe des échantillons dans un vase de trempe qui dans le cadre de ces expériences ne contient pas d'eau. Pour un tel montage, la vitesse de refroidissement est estimée à plusieurs centaines de degrés par seconde.

2.1.2. Synthèse du matériel de départ

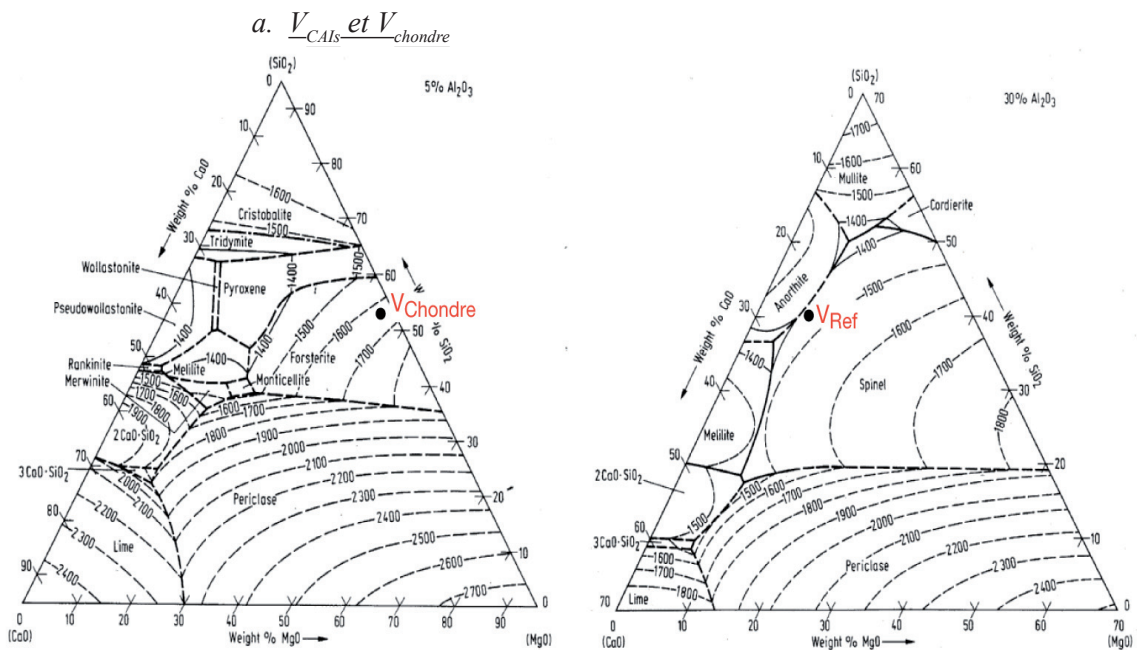


Fig. 3 : Diagrammes ternaire CMS pour 5% et 30% d' Al_2O_3 respectivement. Les compositions des verres sont représentées par les cercles noirs.

Toutes les expérimentations ont été conduites dans le système chimique $\text{CaO-MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ (CMAS) + Fe qui comprend plus de 90% des constituants chimiques des chondres. Afin de produire les analogues artificiels de chondres de type I PO, nous avons préalablement synthétisé 2 verres : le premier de composition chimique 24,09% CaO, 6,44% MgO, 29,65% Al_2O_3 et 39,77% SiO_2 (V_{Ref} dans la suite), similaire aux compositions de verres de chondres les plus réfractaires et appauvris en Si (Libourel et al., 2006), situé dans le champ de stabilité du spinelle et le second de composition chimique 3,12% CaO, 39,25% MgO, 4,63% Al_2O_3 et 53,02% SiO_2 (V_{chondre} dans la suite), similaire aux chondres PO sans le fer (Jones et Scott, 1989; Jones 1990), situé dans le champ de stabilité de la forstérite. Les températures de liquidus pour V_{Ref} et V_{chondre} sont estimées respectivement à environ 1450°C et 1630°C à partir des diagrammes ternaires CMS *ad hoc* (Fig. 3).

Ces verres ont été synthétisés en suivant le protocole ci-dessous:

- Mélange de poudres d'oxydes et de carbonates, CaCO_3 , MgCO_3 , Al_2O_3 et SiO_2 .
- 1^{ère} fusion dans le four à moufle durant ½ heure à 1480°C pour V_{Ref} et 1630°C pour V_{chondre} puis trempe à l'air.
- Broyage et porphyrisation des verres.
- 2nd fusion durant 1 heure aux mêmes températures.
- Broyage et porphyrisation des verres.
- L'homogénéité des verres a ensuite été contrôlée à la sonde électronique.

b. Série A

Cinq mélanges initiaux différentes (de C0 à C4) ont été synthétisés à partir d'un mélange de V_{Ref} de broyat de forstérite pure (57,3% MgO, 42,7% SiO_2) dont la granulométrie va des fines jusqu'à 1mm et de limaille de fer de granulométrie comprise entre 50µm et 80µm. Un sixième mélange (C3bis) pour lequel la forstérite a été broyée plus finement (granulométrie plus homogène autour de 100-200 µm), a également été synthétisé. Ces mélanges ont des compositions globalement similaires, tout au moins pour les majeurs, aux chondres de type I PO (Jones et Scott, 1989) avec des teneurs en Fe variant de 0 wt% à 20 wt% (Tableau 1).

De façon analogue aux chondres de type I PO, tels que décrit par Libourel et al. (2006), ces compositions figurent un mélange entre de la forstérite, un verre enrichi en éléments réfractaires (Ca, Al), chimiquement et thermodynamiquement hors équilibre avec l'olivine, et du fer métal.

Tableau 1: Compositions chimiques et proportions de phases des mélanges C0-C4, C3bis et des V_{chondre} cristallisés.

Série A	proportions de phases (wt%)				compositions chimiques [†] (wt%)				
	Fo	Fe	V_{Ref}	MgO	CaO	Al_2O_3	SiO_2	FeO	total
C0	75	0	25	44,61	6,00	7,40	41,99	0	100
C1	70	5	25	41,15	5,92	7,29	39,29	6,35	100
C2	65	10	25	37,79	5,84	7,19	36,67	12,52	100
C3/C3bis	60	15	25	34,52	5,76	7,09	34,11	18,52	100
C4	55	20	25	31,34	5,68	6,99	31,63	24,36	100
Série B	Fo [‡]	Verre [‡]	composition chimique du verre						
			27,64	5,58	6,94	59,81	0	99,97	
V_{chondre} cristallisé	~ 40	~ 60	composition chimique de la forstérite						
			57,23	0,04	0,06	42,73	0	100,06	

[†] Pour la série A, les compositions sont estimées à partir des proportions et des compositions de chaque phase. Pour la série B, les compositions chimiques du verre et de la forstérite sont des moyennes sur 10 mesures ponctuelles. [‡] Proportions estimées par traitement d'image.

c. Série B

Des charges ont été réalisées à partir de V_{chondre} afin de synthétiser des forstérites en équilibre avec leur liquide, selon le protocole suivant :

- Mélange de poudre de V_{chondre} avec de l'alcool polyvinylique afin de confectionner des billes qui sont ensuite déposées sur des boucles de platine, elles mêmes accrochées à un «panier» en platine.
- Les charges sont chauffées à une température inférieure à celle du liquidus (1580°C) pendant 1 heure. Cette étape est suivie d'une rampe de refroidissement à une vitesse constante de 10°C/h puis d'un palier final à 1450°C pendant 4 heures (Fig. 4).
- Les charges subissent ensuite une trempe à l'air.

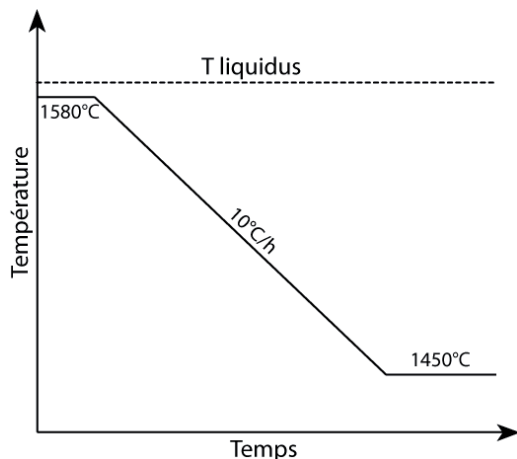


Fig. 4 : Schéma du chemin thermique appliqué aux échantillons de la série B.

Ce protocole nous a permis d'obtenir des charges contenant de très nombreuses forstérites automorphes présentant des diamètres moyens de l'ordre de la centaine de μm . Les compositions des olivines en équilibre avec le verre sont présentées dans le Tableau 1.

Ces charges ont ensuite été «poudrées» de limaille de fer en vue des expérimentations d'oxydation du fer.

Les compositions initiales des produits de départ de la série A démarrent d'une composition de

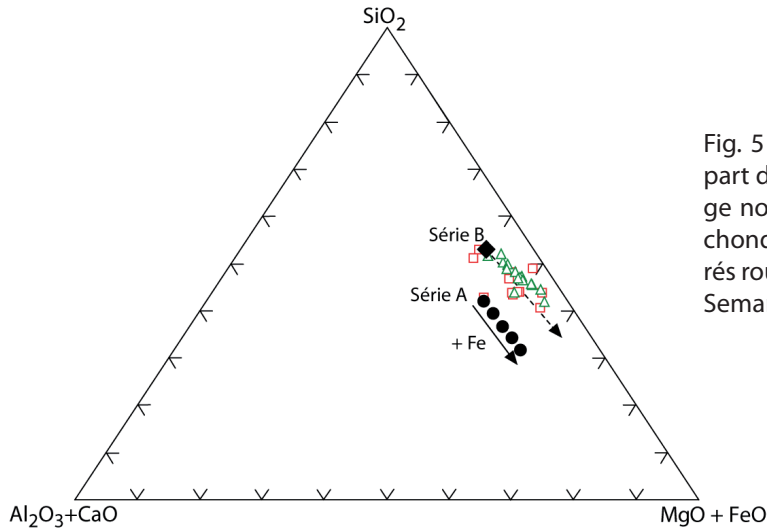


Fig. 5 : Compositions des produits de départ des séries A (cercles noirs) et B (losange noir) comparées aux compositions des chondres de type I PO de Semarkona (carrés rouges, Jones et Scott, 1989) et II PO de Semarkona (triangles verts, Jones, 1990).

chondre de type I PO riche en réfractaires (Jones et Scott, 1989) puis sont progressivement enrichies en fer (Fig. 5). La composition initiale de la série B correspond au pôle siliceux des chondres de type I PO et II PO. L'ajout de fer déplace cette composition au travers du champ de composition des I PO et II PO.

2.1.3. Protocoles expérimentaux

a. Description des protocoles expérimentaux

Les mélanges de la série A ont été utilisés selon le protocole expérimental suivant:

- Confection de billes déposées sur des boucles de platine, à partir des mélanges C0-C4.
- Une bille de chaque mélange est ensuite accrochée au panier porte échantillon.
- Les charges sont chauffées à 1500°C sur des gammes de temps variant de 1 min 30 à 24h et sous un flux de CO-CO₂ permettant de travailler soit au tampon IW+1, soit au tampon Ni-NiO.
- Trempe simultanée à l'air des cinq charges.

Le mélange C3bis a été employé dans une série d'expérimentations similaires mais conduites avec la canne multitrempes.

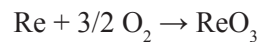
Les charges de la série B sont montées sur la canne multitrempes et chauffées à 1450°C au tampon IW+1 sur des durées variant de 15 min à 22h. Chaque charge est trempée individuellement.

Les charges sont ensuite enrobées de résine et polies afin d'être caractérisées et analysées au MEB et à la microsonde électronique.

b. *Problèmes rencontrés et limites de ces protocoles*Perte en fer

L'utilisation simultanée de platine et de fer en expérimentation pose un problème connu de longue date, qui est celui de la perte en fer due à la réduction du FeO contenu dans la charge silicatée et la formation d'un alliage FePt (Bowen et Schairer, 1932). Suite à ce constat, plusieurs méthodes visant à diminuer la perte en fer ont été développées : (i) par minimisation de la surface d'interaction Pt - liquide silicaté (Presnall et Brenner, 1974), (ii) par saturation en fer du fil de platine (Ford 1978; Lofgren et al., 1979) ou (iii) par enrobage du fil de platine par un film de fer métal (Johannes et Bode, 1978). Toutes ces méthodes, en plus d'être difficiles à mettre en pratique, ne semblent pas permettre de s'affranchir significativement des pertes en fer ni d'assurer un comportement inerte vis à vis du liquide silicaté en fonction des conditions de fO_2 , de température et de composition.

Du fait de son exceptionnelle résistance à la chaleur, l'utilisation de filament de rhénium comme substitut au platine a un temps été envisagée avant d'être abandonnée pour des raisons techniques et pratiques. En premier lieu, le rhénium est difficilement manipulable du fait de sa fragilité. De plus, dans les gammes de fO_2 et de températures utilisées pour ces expérimentations, le rhénium s'oxyde très rapidement en trioxyde de rhénium selon la formule :



Cette oxydation a pour conséquence la chute précoce des charges après 1h d'expérimentation à 1500°C et au tampon IW+1.

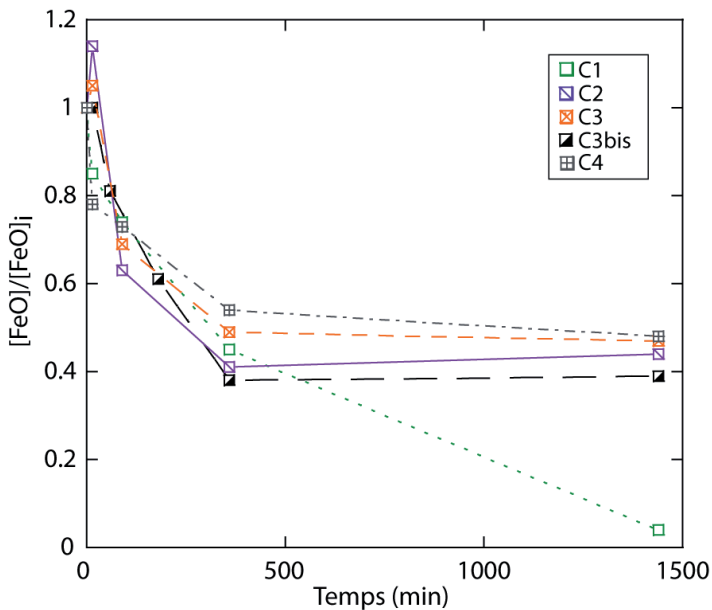


Fig. 6 : Evolution de la quantité de fer globale normalisée à la quantité de fer initiale dans les charges expérimentales en fonction du temps.

tion à 1500°C et au tampon IW+1.

Finalement, l'emploi de fil de platine a été conservé et les pertes en fer ont été quantifiées afin de tenir compte de ce processus lors de l'interprétation des données (Fig. 6).

On remarque que, sauf pour le mélange C1, la quantité de fer diminue rapidement lors des premières heures d'expérience (avant 6h) avant d'atteindre un équilibre avec environ 45-50% de perte en fer. Le mélange

C1 semble perdre la quasi totalité de son fer au bout de 24h. Comme aucun duplicata de cette expérience n'a été fait, il n'est pas possible de savoir si cette évolution est due uniquement à la perte en fer ou s'il existe d'autres causes telle qu'une erreur dans la préparation de la charge. D'autre part, il est important de noter qu'une part de cette perte en fer peut être due à l'évaporation de ce dernier à partir des charges sans qu'il soit possible d'en quantifier l'effet.

A propos de l'addition de fer dans les charges de la série B

Le protocole initial de préparation de ces charges prévoyait l'ajout immédiat de quantités connues de fer au V_{chondre} afin de préparer directement les différents mélanges. Des charges montées sur filament de rhénium devaient ensuite être préparées à partir des mélanges afin de faire cristalliser des forstérites en appliquant le protocole thermique présenté dans la partie 2.1.2.2. mais sous atmosphère très réductrice afin que le fer reste sous forme métallique. Malheureusement, dès les premiers tests, il s'est avéré que le rhénium ne résistait pas aux conditions de température et de fugacité en oxygène. Ce protocole a donc été abandonné.

Par la suite, un second protocole a été testé sans plus de succès. Il s'agissait de broyer grossièrement une charge de la série B après cristallisation des olivines, de placer les fragments dans un creuset en graphite afin d'assurer une atmosphère réduite, puis d'ajouter la quantité de fer souhaitée. Le creuset était ensuite introduit pendant 5 min dans un four à moufle à la température de fin de cristallisation (1450°C) puis trempé à l'air. Le graphite permettait de maintenir une atmosphère réduite dans le creuset et l'idée était ainsi d'agglomérer les fragments de la charge avec le fer métal. Cependant, il s'est avéré que si les fragments de silicates formaient à nouveau une bille, il n'en était pas de même pour le fer métal puisque celui-ci s'adsorbait à la surface du graphite rendant impossible l'extraction de la charge.

Le protocole finalement appliqué est très simple à mettre en œuvre, puisqu'il consiste simplement à «trempier» la charge dans de la limaille de fer, mais il présente un inconvénient majeur qui est de ne pas pouvoir contrôler la quantité de fer ajoutée. Cependant, cela ne remet pas en cause les interprétations qu'il est possible de faire à partir des résultats.

2.2. Présentation des résultats

2.2.1. Evolutions texturales des charges expérimentales

a. Expériences de la série A

Expériences avec le tampon Ni-NiO

Les textures typiquement obtenues avec ce tampon avec les compositions C0, C2 et C4, et pour des temps de chauffe compris entre 15 et 180 min, sont présentées sur la Fig. 7.

Dans les charges ne contenant initialement pas de Fe métal (i.e. réalisées à partir de C0), on observe une dissolution de la forstérite, due au déséquilibre chimique avec la mésostase, se traduisant par un arrondissement progressif de la bordure des cristaux et la disparition quasi immédiate des fines.

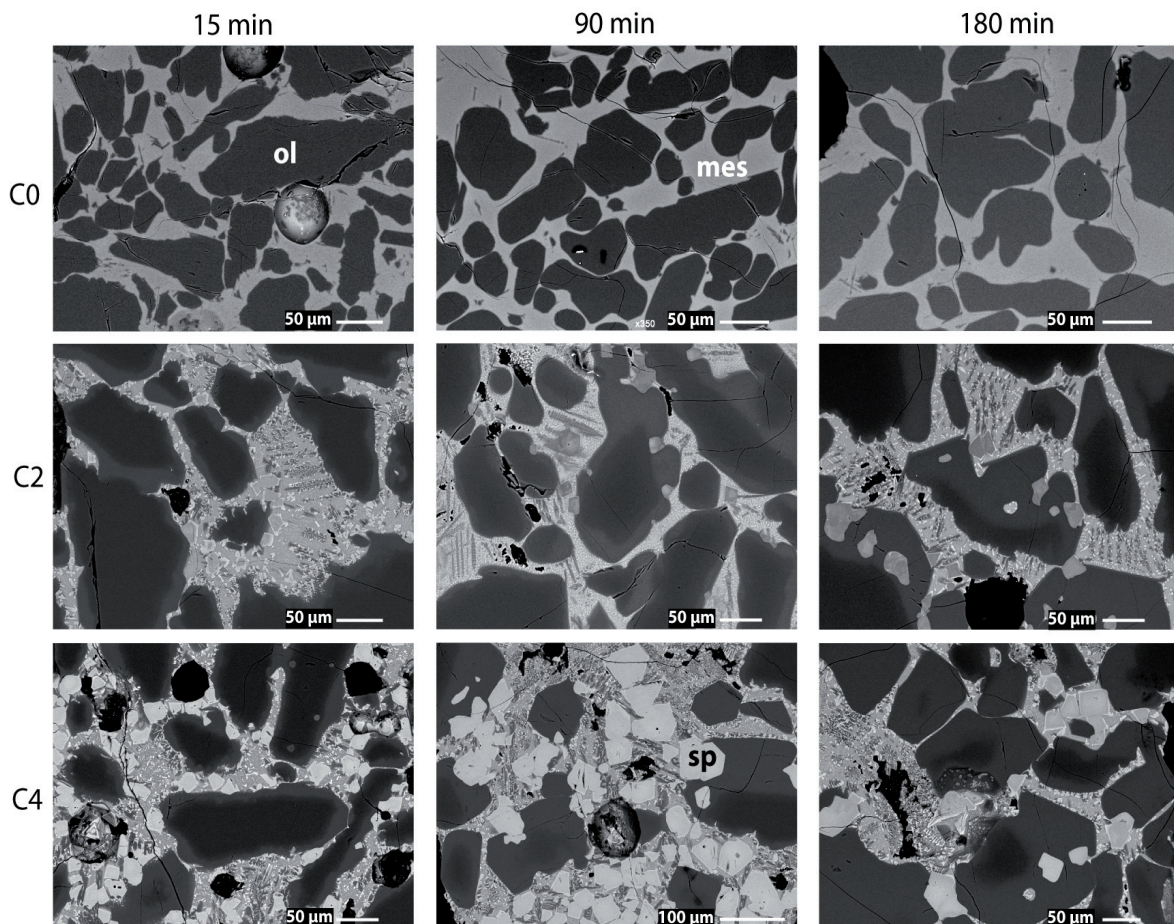


Fig. 7 : Textures obtenues au tampon Ni-NiO pour différentes compositions de départ et différents temps de chauffe à 1500°C. Ol = olivine, mes = mésostase et sp = spinelle.

Dans les charges contenant initialement du Fe métal (i.e. réalisées à partir de C2 et C4), on remarque la dissolution instantanée de la limaille de Fe métal et la cristallisation de spinelle ferrifère

[Mg(Al, Fe)₂O₄] généralement au contact de la forstérite. Les spinelles sont d'autant plus riches en fer et de grande taille que le produit de départ est riche en fer, i.e. C4 par rapport à C2 (Fig. 7). La dissolution de la forstérite est également effective dans ces charges, et entraîne la disparition très rapide des fines. Cependant, elle est rapidement remplacée par la mise en place de surcroissances de fayalite qui dans certains cas, englobent les cristaux de spinelle (Fig. 7). La présence de spinelle ferrique n'est pas quelque chose que l'on observe dans les chondres. Puisque ceux-ci incorporent le fer préférentiellement sous forme de Fe³⁺, on peut en déduire que le tampon Ni-NiO impose des conditions de fO_2 trop élevées par rapport à ce qu'elles ont du être lors de la formation des chondres. Dans la mésostase on observe des cristaux dendritiques de fayalite et des petits cristaux de magnétite vraisemblablement formés lors de la trempe.

Expériences au tampon IW+1

Expériences réalisées avec les compositions C0 à C4

Les textures typiquement obtenues avec ce tampon, pour des temps de chauffe compris entre 1 min 30 et 1440 min et les compositions C0, C2 et C4, sont présentées sur la Fig. 8.

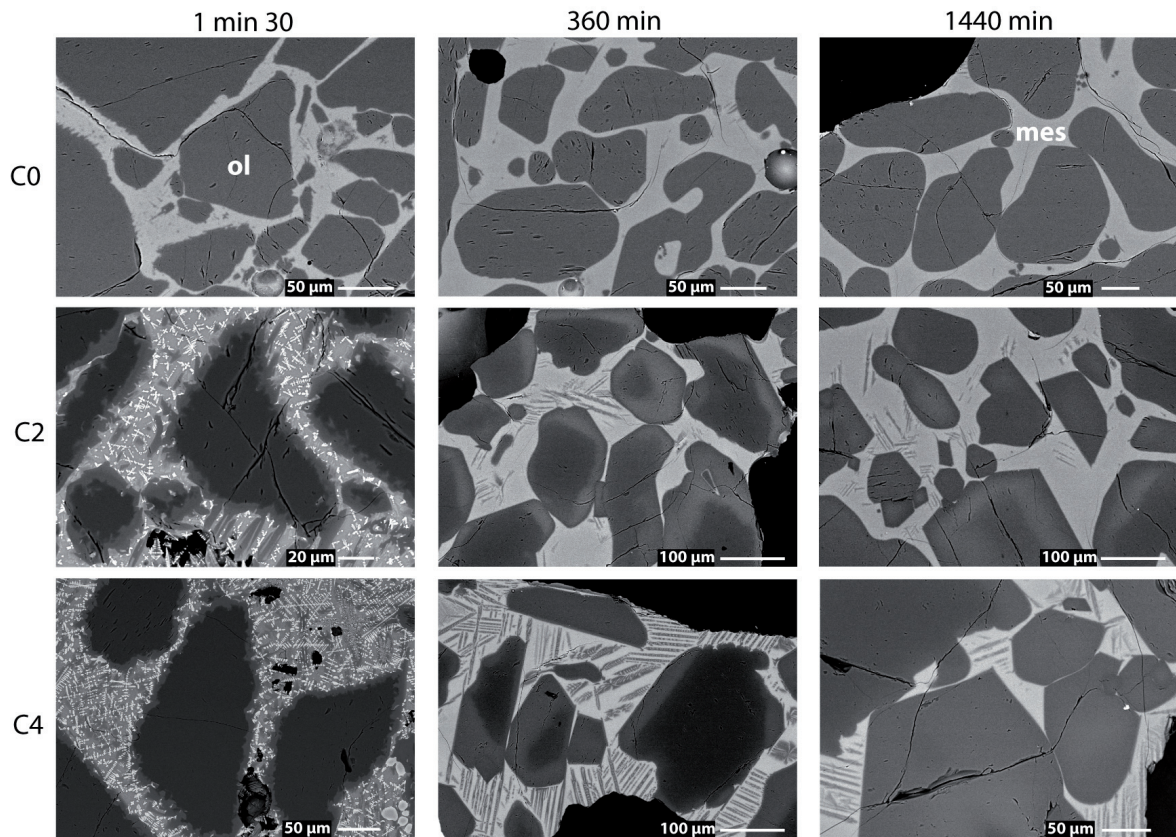


Fig. 8 : Textures obtenues au tampon IW+1 pour différentes compositions de départ et différents temps de chauffe à 1500°C. Ol = olivine, mes = mésostase.

Comme pour le tampon Ni-NiO, dans les charges ne contenant pas de fer (i.e. réalisées à partir de C0), on observe une dissolution de la forstérite se traduisant par un arrondissement progressif de la bordure des fragments et la disparition des fines. Les changements de composition chimique de la mésostase montrent que la dissolution de la forstérite (notamment des fines) est un processus extrêmement rapide (Fig. 14-15). Par ailleurs, tout au long de l'expérience la mésostase reste vitreuse.

Dans les charges contenant du fer (réalisées à partir de C2 et C4), les surcroissances de fayalite autour de la forstérite sont bien visibles dès 1 min 30 et s'élargissent au cours du temps (Fig. 8). Conjointement à la cristallisation de ces surcroissances, on observe une diffusion chimique, visible pour Fe, de la surcroissance vers la forstérite (Fig. 8, 18). Ainsi, les reliques de forstérite se résorbent petit à petit au cours du temps. De façon générale, les surcroissances épousent les contours des reliques de forstérite avant d'acquiescer des textures automorphes (Fig. 8). Les olivines les plus petites disparaissent et leur taille tend, en moyenne, à augmenter et à s'homogénéiser par rapport à la granulométrie de départ (e.g. pour le mélange C3bis sur la Fig. 11). On retrouve quelques petits cristaux de spinelle lors des temps d'expérience très court (1 min 30) mais qui disparaissent rapidement par la suite. Enfin la mésostase qui, initialement, contient beaucoup de cristaux dendritiques de fayalite et de magnétite redevient de plus en plus vitreuse au cours du temps (Fig. 8).

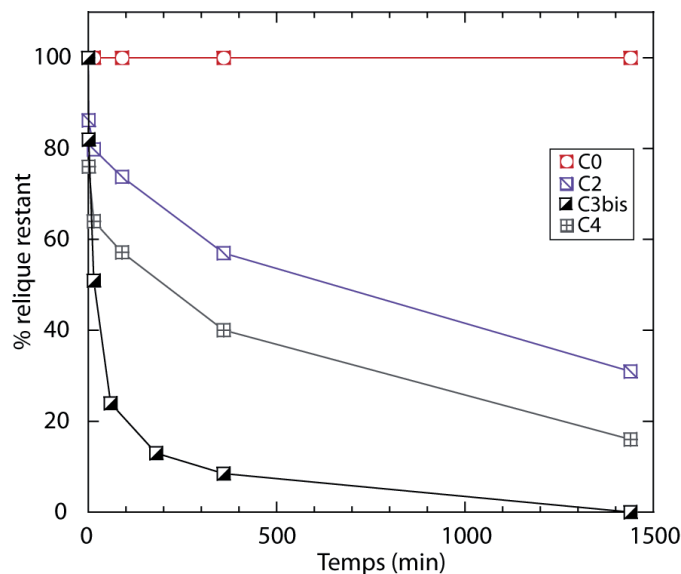


Fig. 9 : Quantité volumique de relique restante par rapport à la quantité totale d'olivine en fonction du temps dans les charges réalisées à partir de C0, C2, C4 et C3bis.

La quantité d'olivine relique par rapport à la quantité globale d'olivine restante dans les charges au cours du temps diminue rapidement en début d'expérience puis plus lentement par la suite (Fig. 9). On peut remarquer que l'abondance de Fe métal initiale joue un rôle important dans le contrôle de la quantité de relique restante puisque pour les charges réalisées sans Fe, cette quantité reste constante alors qu'elle diminue d'autant plus qu'il y a du Fe métal initialement (Fig. 9). Le second paramètre clé est la granulométrie initiale.

En effet les charges réalisées à partir de C3bis montrent qu'au delà de 360 min toutes les reliques sont résorbées alors que pour les autres charges, il reste des reliques même après 1440 min (Fig. 9).

Expériences réalisées avec la composition C3bis

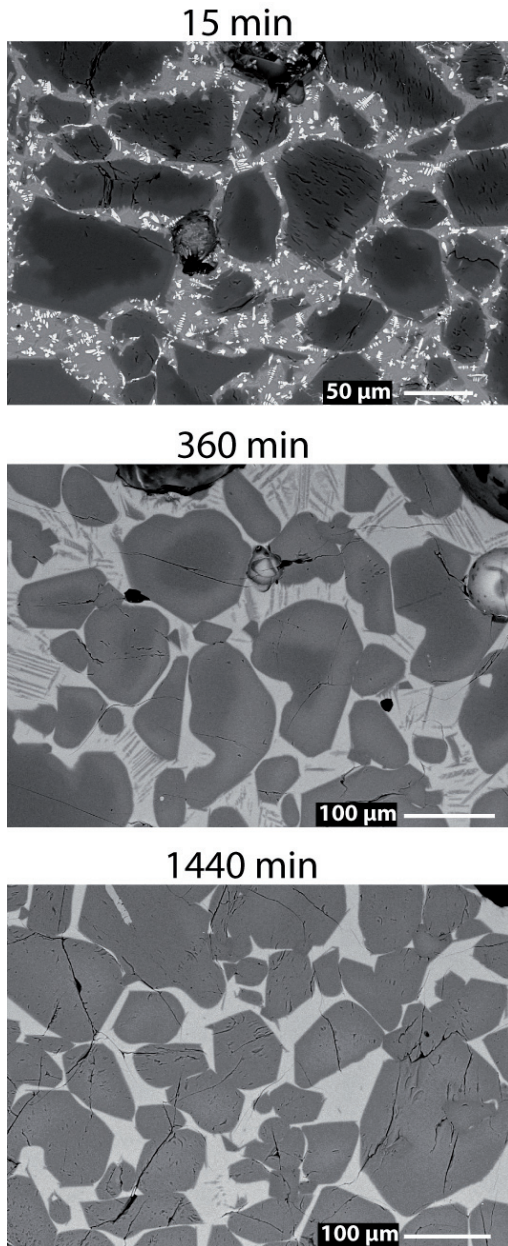


Fig. 10 : Textures obtenues pour C3bis au tampon IW+1 et différents temps de chauffe à 1500°C.

granulométrie finale est fortement contrôlée par la granulométrie initiale (Fig. 11). En d'autres termes, cela signifie que si la granulométrie initiale de la forstérite est grossière, alors la granulométrie finale de la fayalite le sera également (e.g. Fig. 8, 10). Comme précédemment, la substitution de la texture «clastique» par une texture automorphe est également bien visible.

Les charges expérimentales réalisées à partir du produit C3bis présentent, de façons générales, des caractéristiques texturales proches de celles des charges C0-C4 présentées ci-dessus, avec cependant une granulométrie plus homogène (Fig. 10). Comme dans le cas des autres expériences, les olivines de petite taille disparaissent progressivement et la distribution granulométrique tend à augmenter et à s'homogénéiser en cours d'expérience (Fig. 11).

En outre, on peut constater que malgré l'augmentation moyenne de la taille des cristaux, la

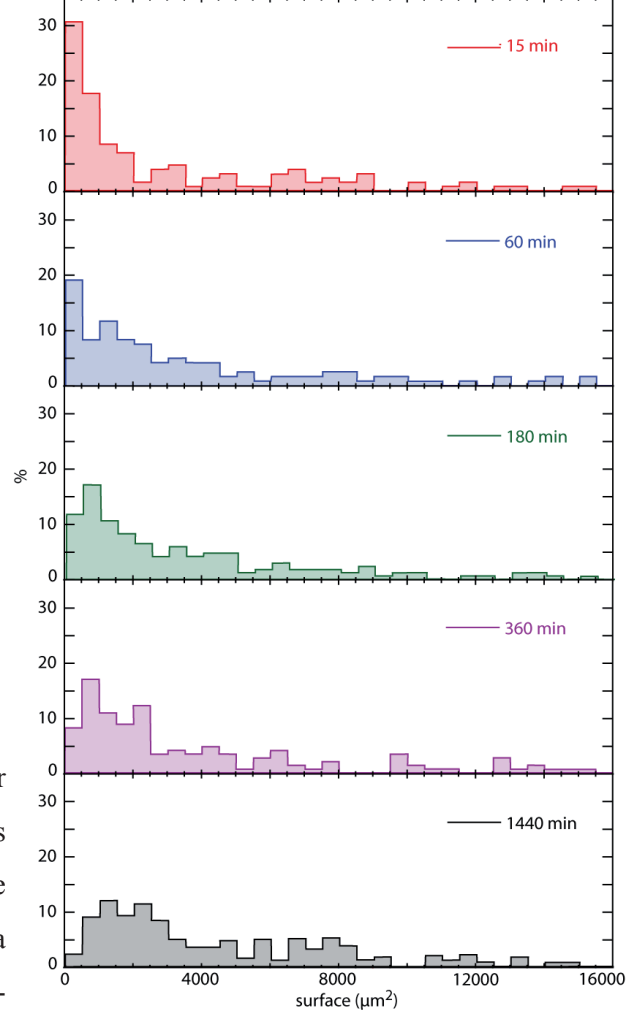


Fig. 11 : Distribution des tailles des olivines des charges réalisées à partir de C3bis en fonction du temps.

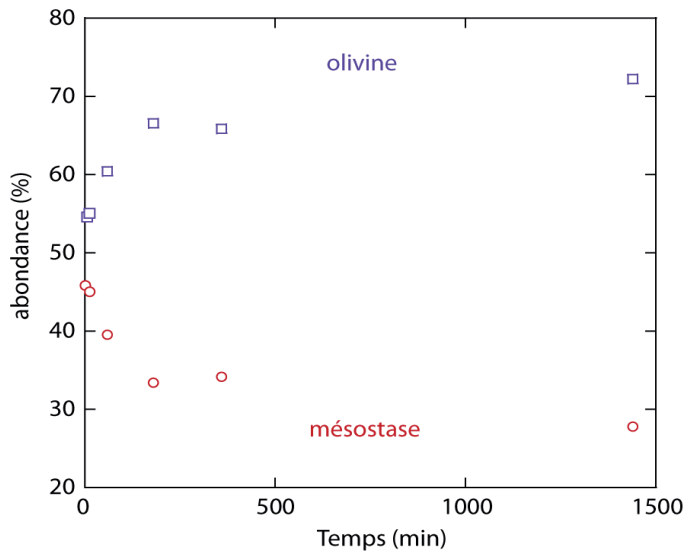


Fig. 12 : Abondance de mésostase et d'olivine dans les charges expérimentales obtenue pour les charges réalisées à partir de C3bis, au cours du temps.

b. Expériences de la série B

Le protocole thermique appliqué au verre de la série B a permis l'obtention de charges contenant environ 40% de forstérites avec des tailles de cristaux variant entre $\sim 20 \mu\text{m}$ jusqu'à $\sim 300 \mu\text{m}$ pour les plus gros (Fig. 13). Néanmoins la plupart des cristaux ont des tailles comprises entre $20 \mu\text{m}$ et $100 \mu\text{m}$, ce qui est assez comparable aux tailles d'olivines des chondres de type I PO. L'ajout de Fe métal dans ces charges se traduit, lors de la chauffe dans des conditions oxydantes (i.e. IW+1), par la cristallisation de surcroissances de fayalite autour des cristaux de forstérite et par la diffusion de FeO dans la forstérite (Fig. 13). Ainsi, les reliques de forstérite disparaissent peu à peu au profit de la fayalite. Comme dans le cas des expériences de la série A, la taille des olivines tend à s'homogénéiser et à s'accroître, avec une disparition des cristaux les plus fins (Fig. 13). Les cristaux de fayalite dendritique qui apparaissent lors de la trempe dans la mésostase pour les temps d'expérience courts, deviennent de moins en

Une étude par traitement d'image montre que l'abondance relative de l'olivine par rapport à la mésostase au cours du temps tend à augmenter (Fig. 12) et que la proportion de relique de forstérite par rapport à l'olivine fayalitique diminue au cours du temps (Fig. 9). Cela traduit très bien la cristallisation de l'olivine fayalitique ainsi que la résorption de la forstérite.

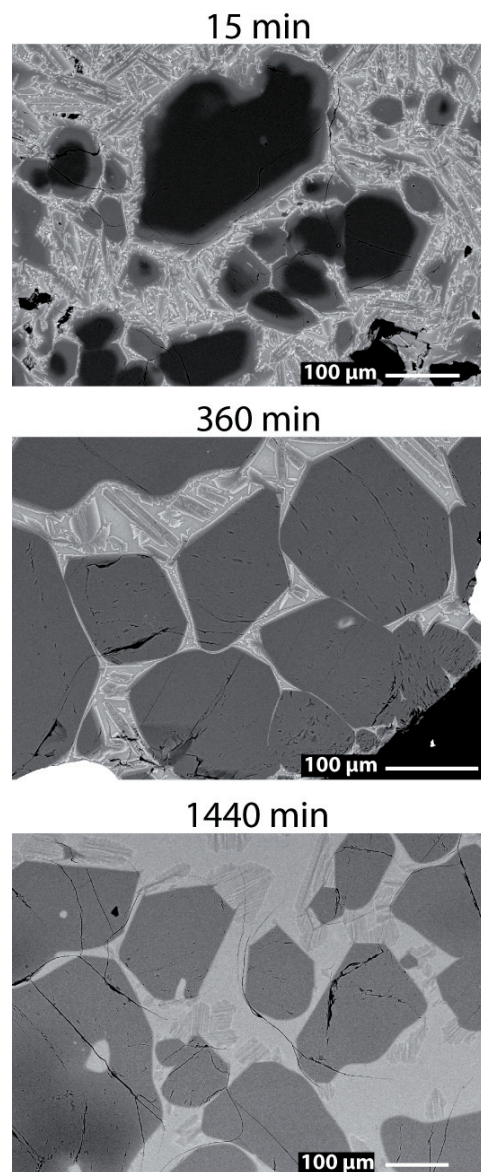


Fig. 13 : Textures obtenues pour la série B au tampon IW+1 et différents temps de chauffe à 1500°C . Les vues d'ensemble des charges expérimentales sont présentées en annexe.

moins nombreux au cours du temps.

2.2.2. Evolution des compositions chimiques

a. Evolution de la mésostase

Le Tableau 2 placé à la fin de cette partie récapitule l'ensemble des compositions chimiques globales des mésostases des différentes charges expérimentales.

Série A

Afin de s'affranchir des effets de la perte en fer, celle-ci a été prise en compte dans le calcul des abondances élémentaires de la mésostase. La figure 14 présente l'évolution des compositions des mésostases au cours du temps corrigées de la perte en fer (cf. Fig. 6), tandis que la figure 15 présente les résultats bruts non corrigés.

La concentration des éléments réfractaires Al et Ca est un bon marqueur de l'évolution du liquide car ils sont tout les deux incompatibles dans l'olivine. La baisse brutale de ces concentrations dès le début de l'expérience est due à l'effet de dilution causée par la dissolution instantanée des olivines et du Fe métal dans le liquide (Fig. 14). Par la suite, dans les charges ne contenant initialement pas de fer (i.e. C0), cette concentration en réfractaire reste à une valeur basse, tandis que dans les charges contenant initialement du fer (C1-C4), elle remonte rapidement dès les premières minutes d'expérience, i.e. 15 min, jusqu'à rejoindre sa valeur initiale. Cela traduit la cristallisation de la fayalite qui vient compenser la dilution initiale (Fig. 14).

La dissolution du Fe métal est quasiment instantanée, i.e. moins de 1 min 30, lors du choc en fO_2 et se traduit par une brusque augmentation de la concentration en FeO dans la mésostase (Fig. 14). Cette hausse de FeO est proportionnelle à l'abondance initiale de Fe métal. La concentration en FeO diminue ensuite d'abord rapidement, puis plus lentement en raison de la cristallisation de fayalite d'une part et d'autre part de la diffusion du fer dans la forstérite.

La dissolution de la forstérite est elle aussi extrêmement rapide et se traduit par une augmentation brutale de la quantité de MgO dans la mésostase dès 1 min 30 d'expérience (du simple au quadruple, Fig. 14). Dans le cas des charges réalisées à partir de C0, on constate que la vitesse de dissolution ralentit très rapidement et très fortement dès que la composition chimique de la mésostase entre dans le champ de stabilité de la forstérite, i.e. dès que le déséquilibre chimique est compensé. Lorsque l'on observe en détails les textures des charges, on s'aperçoit que les fines disparaissent quasiment immédiatement puisqu'on en retrouve pratiquement plus après 1 min 30 (e.g. Fig. 10). Ceci

est très vraisemblablement attribuable au fort rapport surface/volume des fines, qui favorise grandement leur dissolution. Le rôle très important des fines dans l'augmentation brutale de la quantité de MgO dans la mésostase est confirmé par le fait qu'à composition chimique similaire, la quantité d'olivine dissoute est plus importante pour C3bis, dont la granulométrie est plus fine, que pour C3, i.e. ~ 33% contre ~ 28% (Fig. 16a). On peut noter que la quantité de forstérite dissoute, calculée à

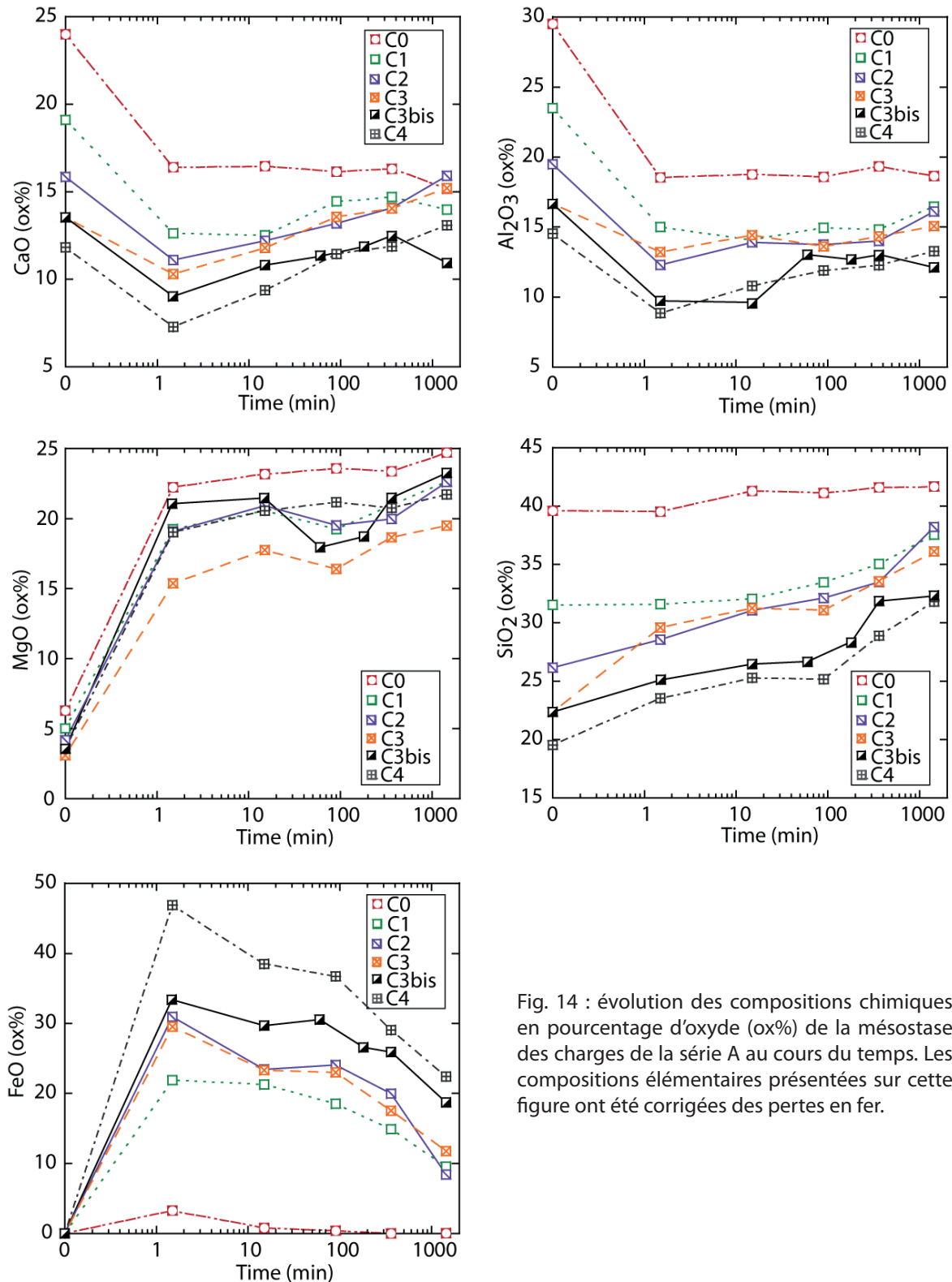


Fig. 14 : évolution des compositions chimiques en pourcentage d'oxyde (ox%) de la mésostase des charges de la série A au cours du temps. Les compositions élémentaires présentées sur cette figure ont été corrigées des pertes en fer.

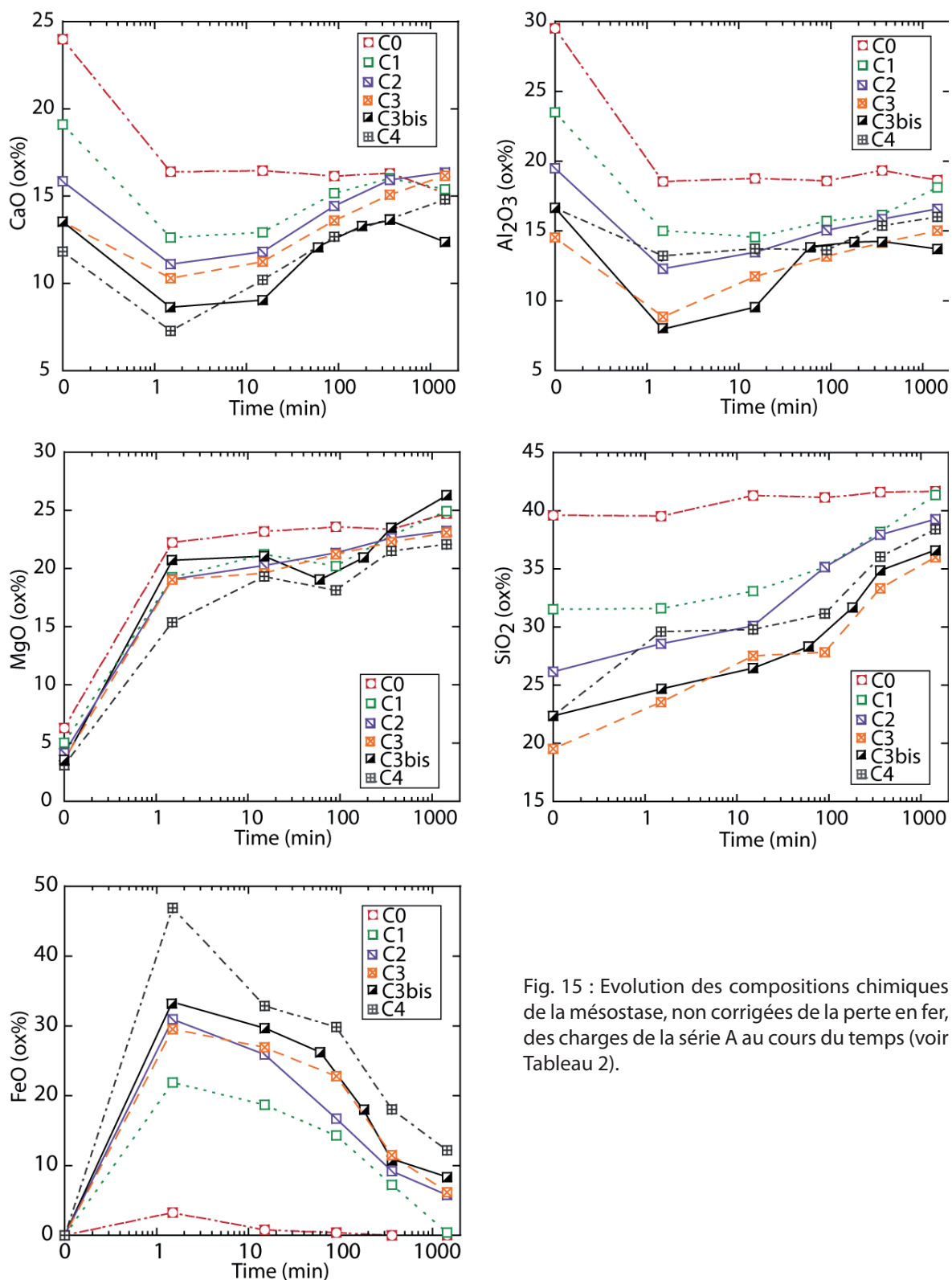


Fig. 15 : Evolution des compositions chimiques de la mésostase, non corrigées de la perte en fer, des charges de la série A au cours du temps (voir Tableau 2).

1 min 30 à partir des abondances en MgO de la mésostase, varie entre ~ 20 et ~ 35% d'une charge à l'autre et est corrélée à l'abondance en FeO (Fig. 16a). Cela peut s'expliquer par le fait que les olivines dans les charges contenant du FeO sont rapidement blindées par la fayalite, ce qui stoppe la dissolution (Fig. 16b).

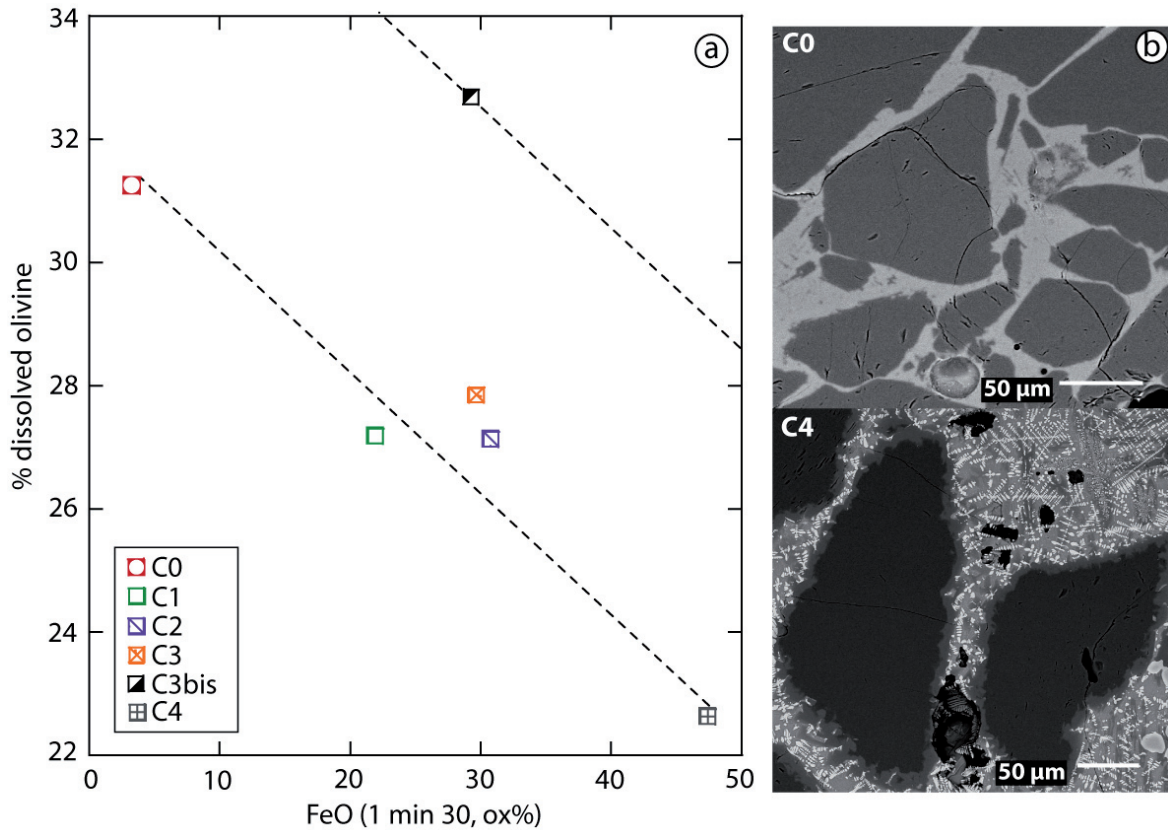


Fig. 16 : a) Quantité d'olivine dissoute en fonction de l'abondance en FeO de la mésostase après 1 min 30 d'expérience. b) Détails de cristaux de forstérite après 1 min 30 d'expérience pour les charges C0 et C4. Dans les charges riches en Fe, un blindage de fayalite vient empêcher la dissolution de la forstérite.

Cette dissolution importante d'olivine n'est pas quelque chose que l'on observe naturellement dans les chondres de type I PO puisque leur mésostase est toujours pauvre en MgO, i.e. en général < 10 ox%. Dans les charges expérimentales, la dissolution est favorisée par la présence importante de fines et la dispersion de la forstérite dans la mésostase, i.e. rapport entre la surface en contact avec la mésostase et le volume total des olivines élevé. A l'inverse, dans les chondres de type I PO, les forstérites sont de taille homogène, i.e. $\sim 50 - 100 \mu\text{m}$, et surtout présentent des textures granoblastiques (Libourel et al., 2006; Chap. 2). Cet arrangement minéralogique minimise la surface d'olivine en contact avec la mésostase et réduit ainsi l'efficacité de la dissolution. Comme d'autre part, il semble y avoir une compétition entre la dissolution de la forstérite et la cristallisation rapide de la fayalite (Fig. 16), l'efficacité de la dissolution peut être de fait encore plus fortement réduite dans les chondres de type I PO.

Série B

Dans les charges de la série B, les concentrations élémentaires de la mésostase restent constantes au cours du temps (Fig. 17a). Cela confirme le fait qu'il n'y a pas de dissolution impor-

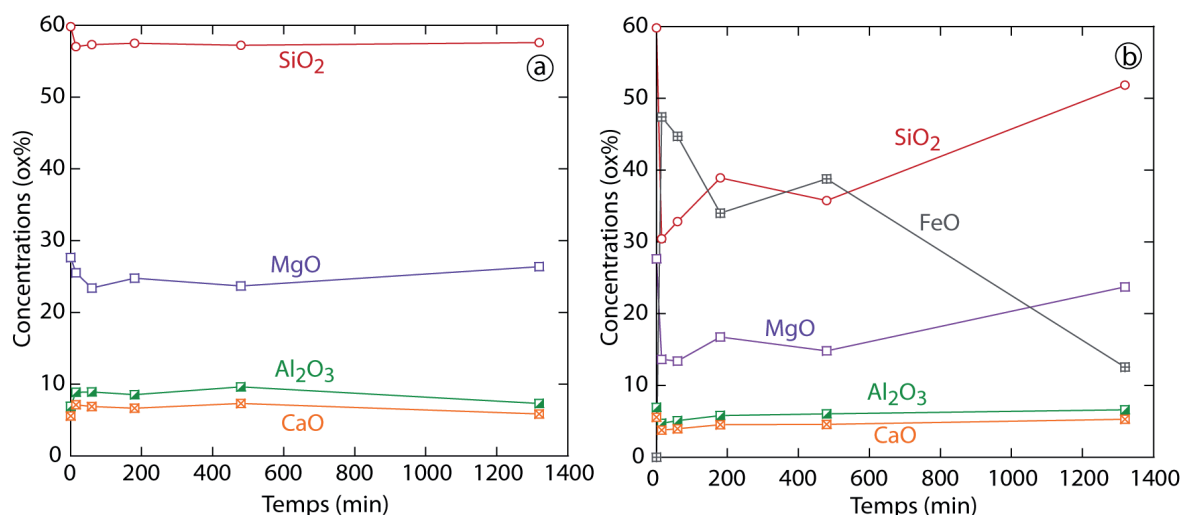


Fig. 17 : Evolution des compositions chimiques de la mésostase des charges de la série B au cours du temps, a) normalisées à 100 % sans FeO et b) avec FeO (voir Tableau 2).

tante d'olivine lors de ces expériences en dépit de l'ajout de fer. Comme on ne connaît pas les quantités exactes de fer métal initialement ajoutée dans chacune des charges, il est impossible de tirer une quelconque conclusion de l'évolution de la concentration en FeO au cours du temps (Fig. 17b).

Tableau 2 : Récapitulatif des compositions globales des verres dans les différentes charges expérimentales.

Série A	Nom	Durée (min)	Tampon	Composition chimique (± 1 s.d.)					Figures
				SiO ₂	MgO	Al ₂ O ₃	CaO	FeO	
		15		41,00 \pm 0,21	22,90 \pm 1,05	18,87 \pm 0,05	16,66 \pm 0,47	0,39 \pm 0,18	
	C0	90	Ni-NiO	41,19 \pm 0,13	24,54 \pm 0,40	18,24 \pm 0,19	15,41 \pm 0,24	0,37 \pm 0,12	7
		165		41,35 \pm 0,05	23,79 \pm 1,01	18,48 \pm 0,31	16,01 \pm 0,44	0,27 \pm 0,04	
	C1	15		35,01 \pm 0,48	20,91 \pm 2,10	14,82 \pm 0,80	13,85 \pm 0,92	15,62 \pm 0,32	
		90	Ni-NiO	36,62 \pm 0,35	22,41 \pm 1,34	15,16 \pm 0,20	14,33 \pm 0,58	11,78 \pm 1,03	
		165		39,36 \pm 0,30	23,39 \pm 0,40	16,38 \pm 0,34	15,15 \pm 0,06	5,52 \pm 0,72	
	C2	15		29,08 \pm 1,04	17,90 \pm 5,74	10,61 \pm 0,90	11,04 \pm 2,62	32,00 \pm 2,66	
		90	Ni-NiO	34,66 \pm 1,07	21,72 \pm 1,34	14,04 \pm 0,75	13,77 \pm 0,27	16,31 \pm 3,50	7
		165		31,86 \pm 0,38	19,88 \pm 0,19	11,19 \pm 0,17	12,70 \pm 0,40	24,68 \pm 0,73	
	C3	15		26,38 \pm 0,62	15,45 \pm 4,03	8,14 \pm 0,81	10,25 \pm 2,05	39,46 \pm 1,92	
		90	Ni-NiO	26,17 \pm 0,23	16,59 \pm 1,21	7,39 \pm 0,29	9,92 \pm 0,55	40,21 \pm 1,39	
		165		29,06 \pm 0,29	19,61 \pm 0,76	9,55 \pm 0,22	11,31 \pm 0,42	30,68 \pm 0,41	
	C4	15		25,95 \pm 0,88	17,02 \pm 4,23	6,86 \pm 0,36	8,81 \pm 2,54	40,85 \pm 1,83	
		90	Ni-NiO	22,72 \pm 5,70	18,60 \pm 1,92	8,20 \pm 2,12	7,04 \pm 2,07	43,92 \pm 6,47	7
		165		27,80 \pm 1,80	17,97 \pm 1,10	8,96 \pm 0,65	11,29 \pm 1,30	33,77 \pm 1,57	
		1 min 30		39,52 \pm 0,34	22,24 \pm 0,60	18,54 \pm 0,37	16,40 \pm 0,31	3,26 \pm 0,25	
	C0	15		41,31 \pm 1,26	23,18 \pm 2,80	18,76 \pm 0,72	16,47 \pm 1,14	0,80 \pm 2,18	
		90	IW+1	41,13 \pm 0,03	23,58 \pm 1,59	18,59 \pm 0,55	16,16 \pm 0,76	0,41 \pm 0,20	8, 14-15, 21-24
		360		41,62 \pm 0,33	23,38 \pm 3,12	19,34 \pm 0,83	16,30 \pm 1,61	0,01 \pm 0,76	
		1440		41,68 \pm 0,32	24,72 \pm 0,08	18,65 \pm 0,29	15,18 \pm 0,05	0,06 \pm 0,05	
		1 min 30		31,60 \pm 0,66	19,24 \pm 0,66	15,01 \pm 0,50	12,63 \pm 0,44	21,89 \pm 0,89	
	C1	15		33,08 \pm 0,74	21,22 \pm 0,75	14,55 \pm 0,25	12,93 \pm 0,27	18,73 \pm 0,21	
		90	IW+1	35,18 \pm 0,41	20,23 \pm 2,31	15,71 \pm 1,07	15,18 \pm 1,16	14,32 \pm 1,26	14-15, 21-24
		360		38,19 \pm 0,15	22,84 \pm 2,53	16,15 \pm 1,70	16,02 \pm 1,24	7,24 \pm 0,01	
		1440		41,35 \pm 0,20	24,93 \pm 0,08	18,12 \pm 0,14	15,39 \pm 0,27	0,39 \pm 0,05	

	1 min 30		28,56 ± 2,18	19,09 ± 0,62	12,30 ± 1,60	11,10 ± 1,52	30,94 ± 5,64	
	15		30,10 ± 0,32	20,27 ± 0,92	13,47 ± 0,48	11,82 ± 0,60	25,89 ± 0,49	
C2	90	IW+1	35,15 ± 1,26	21,36 ± 1,00	15,04 ± 0,53	14,44 ± 0,47	16,70 ± 2,40	8, 14-15, 21-24
	360		37,92 ± 0,29	22,62 ± 0,73	15,85 ± 0,16	15,93 ± 0,51	9,20 ± 0,51	
	1440		39,28 ± 0,10	23,23 ± 0,74	16,58 ± 0,28	16,36 ± 0,39	5,80 ± 0,23	
	1 min 30		29,60 ± 0,34	19,03 ± 1,09	13,22 ± 0,58	10,30 ± 0,45	29,51 ± 0,56	
	15		29,80 ± 0,58	19,60 ± 0,93	13,74 ± 0,30	11,25 ± 0,69	26,95 ± 1,27	
C3	90	IW+1	31,17 ± 0,55	21,23 ± 1,15	13,64 ± 0,49	13,60 ± 0,87	22,81 ± 0,46	14-15, 21-24
	360		36,03 ± 0,25	22,27 ± 0,26	15,39 ± 0,06	15,08 ± 0,44	11,47 ± 0,14	
	1440		38,40 ± 0,12	23,09 ± 0,39	16,02 ± 0,17	16,17 ± 0,21	6,19 ± 0,30	
	1 min 30		24,02 ± 2,74	20,52 ± 2,9	7,13 ± 0,98	8,34 ± 1,02	33,27 ± 1,33	
	15		26,46 ± 2,81	21,08 ± 2,59	9,54 ± 1,33	9,05 ± 0,84	29,70 ± 2,04	
C3bis	60	IW+1	28,32 ± 0,50	19,06 ± 2,00	13,84 ± 0,60	12,07 ± 0,72	26,22 ± 1,06	10, 14-15, 21-24
	180		31,68 ± 0,46	20,95 ± 0,68	14,20 ± 0,29	13,29 ± 0,46	18,01 ± 0,59	
	360		34,86 ± 0,75	23,52 ± 2,06	14,23 ± 0,92	13,65 ± 0,95	10,74 ± 0,32	
	1440		36,59 ± 0,30	26,31 ± 0,54	13,71 ± 0,73	12,37 ± 0,79	8,34 ± 0,21	
	1 min 30		23,54 ± 0,42	15,37 ± 0,77	8,85 ± 0,39	7,29 ± 0,71	46,90 ± 1,99	
	15		27,53 ± 0,20	19,31 ± 0,99	11,75 ± 0,14	10,20 ± 0,58	32,87 ± 0,56	
C4	90	IW+1	27,84 ± 1,26	18,14 ± 2,80	13,18 ± 0,72	12,68 ± 1,14	29,82 ± 2,18	8, 14-15, 21-24
	360		33,33 ± 0,41	21,52 ± 0,76	14,16 ± 0,45	13,69 ± 0,46	18,06 ± 0,85	
	1440		36,00 ± 0,24	22,08 ± 0,28	15,03 ± 0,41	14,81 ± 0,28	12,18 ± 0,46	
	15		30,00 ± 0,97	13,43 ± 1,06	4,66 ± 0,58	3,74 ± 0,46	46,72 ± 3,24	
	60		31,68 ± 0,47	12,93 ± 0,58	4,94 ± 0,27	3,82 ± 0,23	43,17 ± 1,14	
Série B	180	IW+1	37,96 ± 0,39	16,34 ± 1,36	5,64 ± 0,36	4,41 ± 0,28	33,17 ± 0,31	13, 17, 21-24
	480		35,02 ± 0,18	14,51 ± 0,59	5,90 ± 0,28	4,49 ± 0,11	37,97 ± 0,53	
	1320		50,36 ± 0,45	23,07 ± 0,55	6,40 ± 0,06	5,13 ± 0,11	12,22 ± 0,21	

Les erreurs correspondent à l'écart type sur une moyenne de 10 analyses individuelles.

b. Evolution des olivines

Le Tableau 3 placé à la fin de cette partie récapitule l'ensemble des compositions chimiques globales des olivines et des bordures des surcroissances fayalitiques des différentes charges expérimentales.

Série A

Des profils types de concentrations en CaO, Al₂O₃ et FeO dans les olivines pour les compositions C2, C3bis et C4 en fonction du temps sont présentés sur la figure 18.

Ces profils de concentration sont de très bons marqueurs pour distinguer l'olivine fayalitique formée par surcroissance de l'olivine fayalitique formée par diffusion du FeO. En effet, comme la forstérite de départ ne contient pas de CaO et compte tenu du fait que la mésostase présente des concentrations élevées en CaO (~ 10 - 15 ox%) et en FeO (~ 10 - 40 ox% suivant la durée de l'expérience et le produit de départ), on peut s'attendre à ce que les surcroissances de fayalite contiennent des concentrations élevées et constantes de CaO (> 0,4 - 0,8 ox%, Libourel, 1999), permettant de distinguer la surcroissance fayalitique de la relique de forstérite. D'autre part, la sous-saturation en

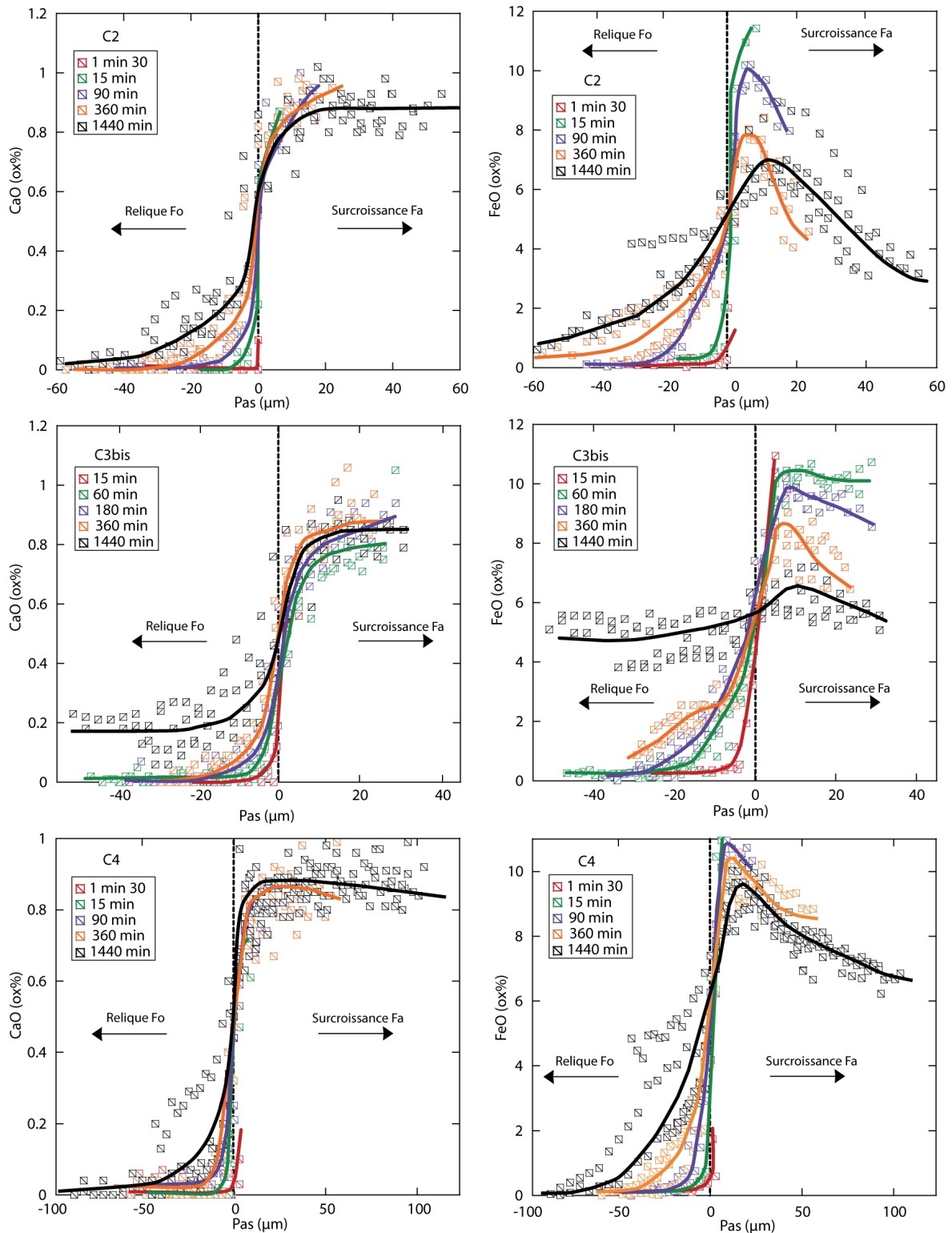


Fig. 18 : Profils de concentrations types en FeO et CaO (en ox%) dans les olivines des charges C2, C3bis et C4 en fonction du temps. Le point d'inflexion de ces profils marque la position de l'interface entre les reliques de forstérite et les surcroissances fayalitiques

SiO₂ dans le liquide (~ 25 - 40 ox%) est favorable à la cristallisation d'olivines riches en Ca (Libourel et al., 1989; Shi et Libourel, 1991; Shi, 1993; Libourel, 1999). Ainsi, lorsque l'on observe les profils de concentration en CaO dans les olivines des charges expérimentales, on s'aperçoit qu'il existe une

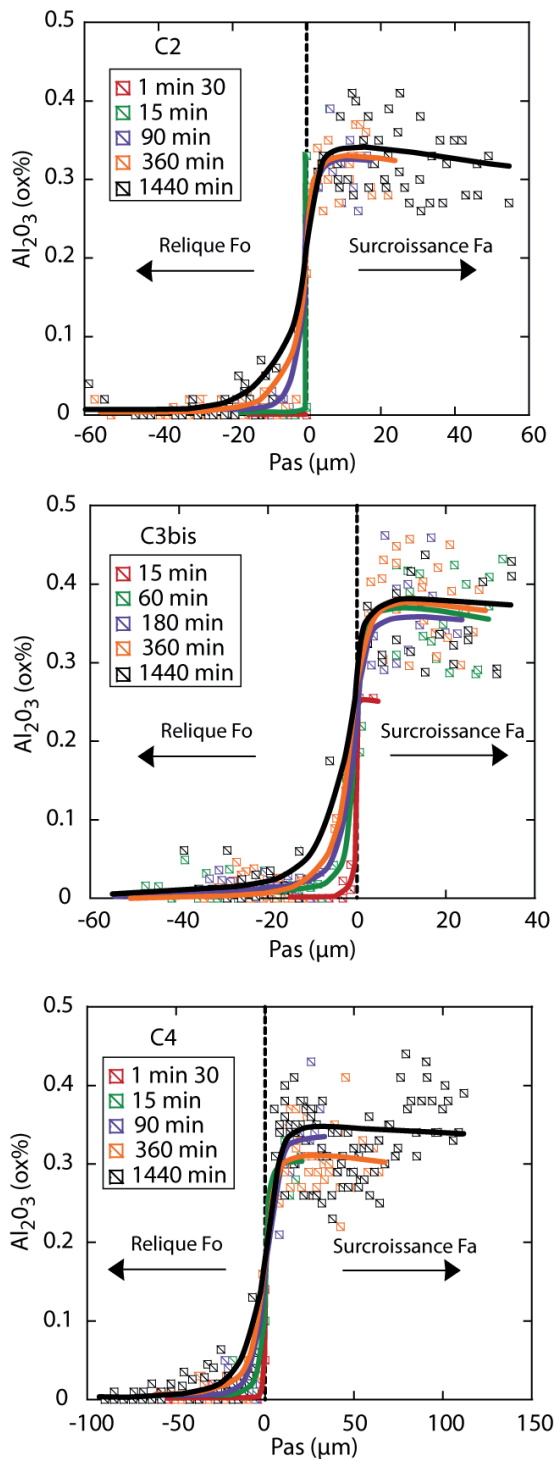


Fig. 19 : Profils de concentrations types en Al_2O_3 (en ox%) dans les olivines des charges C2, C3bis et C4 en fonction du temps

limite franche entre la surcroissance de fayalite qui présente une concentration constante de CaO comprise entre $\sim 0,8$ et $\sim 0,9$ ox% de CaO et l'olivine relique qui présente des profils de diffusion de CaO avec des concentrations comprises entre $\sim 0,8$ et ~ 0 ox%, contrôlés par les gradients de compositions entre la fayalite et la forstérite (Fig. 18).

De même, les profils de concentration en Al_2O_3 présentent des valeurs élevées et stables dans la surcroissance de fayalite (entre $\sim 0,25$ et $\sim 0,45$ ox%) tandis que dans la forstérite relique on observe des profils de diffusion (Fig. 19).

Les profils de concentration en FeO sont assez similaires à ceux de CaO et Al_2O_3 avec toutefois des variations dans les surcroissances. La baisse de concentration en FeO dans les surcroissances de fayalite au cours du temps est un effet de la perte en fer des charges qui, au *pro rata* du coefficient de partage du Fe entre l'olivine et le liquide, entraîne une diminution de la quantité de FeO entrant dans les surcroissances (Fig. 18). On peut cependant noter qu'à l'exception de ces baisses de concentrations dans les surcroissances, les profils de concentrations en FeO sont en tout point similaire à ceux observés dans les olivines reliques des chondres (e. g. Greeney et Ruzicka, 2004, Hewins et al., 2009).

La largeur des surcroissances ainsi que les distances de diffusion de CaO, d' Al_2O_3 et de FeO dans la forstérite relique sont corrélées au temps de chauffe. Plus celui-ci est long et plus les surcroissances et les distances de diffusion seront importantes (Fig. 18, 19). Cependant, les distances de diffusion ne sont pas les mêmes pour les trois éléments. Ainsi, à durée de chauffe égale, FeO diffuse plus loin que CaO qui lui-même diffuse plus

loin qu' Al_2O_3 (Fig. 18, 19). Cela signifie que la vitesse de diffusion de FeO est plus importante que celle de CaO et d' Al_2O_3 . Enfin, on peut noter que les gradients de concentration en FeO, Al_2O_3 et CaO entre les surcroissances et les reliques s'atténuent au cours du temps (Fig. 18, 19).

Série B

Dans les charges de cette série, les profils de concentration de FeO dans les surcroissances de fayalite et les reliques de forstérite sont similaires à ceux des charges de la série A (Fig. 20). Les profils de concentration de CaO et Al_2O_3 ne sont en revanche pas exploitables car les forstérite sont

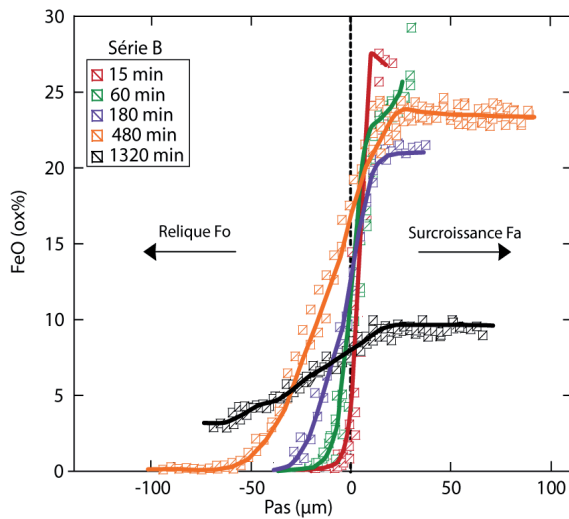


Fig. 20 : Profils de concentrations en FeO dans les olivines des charges de la série B en fonction du temps.

déjà très enrichies en ces éléments, ce qui entraîne une absence de gradient chimique marqué.

Comme précédemment, la largeur des surcroissances ainsi que les distances de diffusion sont proportionnelles à la durée de l'expérience. On remarque toutefois que dans la charge avec le temps de chauffe le plus long, les concentrations en FeO dans les surcroissances de fayalite sont beaucoup moins importantes que dans les autres (Fig. 20). Cependant, comme la quantité initiale de Fe métal ajoutée à chaque charge n'est pas connue, il n'est pas

possible de déterminer la cause des variations de concentration en FeO entre les différentes charges

Tableau 3 : Récapitulatif des compositions chimiques des olivines globales et des bordures des surcroissances pour les différentes charges au tampon IW+1.

Nom	Durée (min)	Olivine†	Composition chimique					Figures
			SiO_2	MgO	Al_2O_3	CaO	FeO	
Série A	1 min 30	globale	42,70	57,30	-	-	0,00	
		bordure Fa	-	-	-	-	-	
C0	15	globale	42,70	57,30	-	-	0,00	
		bordure Fa	-	-	-	-	-	
C0	90	globale	42,70	57,30	-	-	0,00	18-19
		bordure Fa	-	-	-	-	-	21-24
C0	360	globale	42,70	57,30	-	-	0,00	
		bordure Fa	41,83	57,80	-	0,38	0,00	
C0	1440	globale	42,70	57,30	-	-	0,00	
		bordure Fa	42,70	56,99	-	0,31	0,00	

C1	1 min 30	globale	42,54	57,12	-	-	0,23	21-24		
		bordure Fa	-	-	-	-	-			
	15	globale	41,81	56,27	-	-	1,21			
		bordure Fa	40,08	48,73	0,28	0,92	10,00			
	90	globale	40,94	55,31	-	-	2,39			
		bordure Fa	40,41	50,11	0,30	0,94	8,25			
	360	globale	40,95	55,37	-	-	2,38			
		bordure Fa	40,46	53,59	0,32	0,89	4,75			
	1440	globale	42,55	57,14	-	-	0,21			
		bordure Fa	42,24	56,74	0,30	0,49	0,23			
	C2	1 min 30	globale	41,86	56,45	-	-		1,14	18-19 21-24
			bordure Fa	-	-	-	-		-	
		15	globale	41,41	56,03	-	-		1,75	
			bordure Fa	39,21	48,84	0,33	0,82		10,81	
		90	globale	41,05	55,60	-	-		2,24	
			bordure Fa	39,85	50,81	0,32	0,98		8,05	
		360	globale	41,13	55,57	-	-		2,12	
			bordure Fa	41,21	52,98	0,33	0,91		4,57	
1440		globale	40,29	53,82	-	-	3,23			
		bordure Fa	40,73	54,73	0,31	0,85	3,38			
C3		1 min 30	globale	42,40	56,99	-	-	0,41	21-24	
			bordure Fa	-	-	-	-	-		
		15	globale	41,50	55,91	-	-	1,63		
			bordure Fa	39,66	46,56	0,30	0,98	12,51		
		90	globale	40,66	54,87	-	-	2,75		
			bordure Fa	40,22	48,45	0,32	0,87	10,14		
		360	globale	40,56	54,88	-	-	2,90		
			bordure Fa	40,41	51,66	0,32	0,89	6,72		
	1440	globale	39,72	53,11	-	-	3,99			
		bordure Fa	42,21	52,81	0,33	0,85	3,79			
	C3bis	15	globale	38,92	53,15	-	-	5,17		18-19 21-24
			bordure Fa	39,27	49,27	0,15	0,80	10,31		
		60	globale	39,41	53,98	-	-	4,51		
			bordure Fa	39,09	49,38	0,35	0,81	10,37		
		180	globale	38,55	52,88	-	-	5,69		
			bordure Fa	39,80	49,77	0,36	0,89	9,18		
		360	globale	39,70	53,51	-	-	4,05		
			bordure Fa	40,06	51,59	0,36	0,93	7,05		
1440		globale	38,51	51,78	-	-	5,64			
		bordure Fa	41,71	52,06	0,38	0,84	5,40			
C4		1 min 30	globale	42,22	56,61	-	-	0,65	18-19 21-24	
			bordure Fa	-	-	-	-	-		
		15	globale	41,44	55,93	-	-	1,71		
			bordure Fa	38,80	48,48	0,30	0,71	11,72		
		90	globale	40,03	54,38	-	-	3,64		
			bordure Fa	39,65	49,01	0,31	0,80	10,24		
		360	globale	40,70	55,18	-	-	2,72		
			bordure Fa	39,53	50,33	0,32	0,89	8,93		
	1440	globale	38,67	54,03	-	-	5,63			
		bordure Fa	39,88	52,07	0,30	0,90	6,86			

Série B	15	globale	35,76	49,48	-	-	9,61	
		bordure Fa	37,35	35,46	0,09	0,28	26,82	
	60	globale	33,27	46,32	-	-	13,13	
		bordure Fa	37,27	36,00	0,07	0,26	26,40	
	180	globale	30,36	41,56	-	-	16,89	13
		bordure Fa	37,67	38,95	0,08	0,19	23,10	20-24
	480	globale	30,04	40,03	-	-	16,87	
		bordure Fa	37,20	38,65	0,08	0,25	23,82	
	1320	globale	36,90	50,72	-	-	7,97	
		bordure Fa	40,08	50,48	0,04	0,17	9,24	

[†] Les compositions globales en FeO et MgO des olivines ont été déterminées sur la base d'un traitement d'images tandis que celle de SiO₂ a juste une valeur indicative. Les compositions des bordures des surcroissances fayalitiques sont les valeurs moyennes constatées sur les profils.

2.2.3. Coefficients de partage des éléments

a. Coefficients de partages de Ca

Les concentrations de CaO des surcroissances de fayalites varient entre ~ 0,2 ox% et ~ 1 ox% suivant les charges expérimentales et sont corrélées aux concentrations de CaO dans la mésostase (Fig. 21a). En accord avec les travaux de Libourel (1999), ces données indiquent que la présence de FeO à la fois dans l'olivine (i. e. la surcroissance de fayalite) et dans la mésostase favorise l'entrée de CaO dans l'olivine (Fig. 21a).

La concentration de CaO dans une olivine à l'équilibre est fonction à la fois de la composition du liquide et de la teneur en FeO de l'olivine. Elle est définie empiriquement par la formule suivante :

$$\text{CaO}_{\text{Calc}}^{\text{ol}} = a_{\text{CaO}}^{\text{melt}} \times e^{-1,24 \times X_{\text{Fo}}^3 + 3,33 \times X_{\text{Fo}}^2 - 6,55 \times X_{\text{Fo}} + 2,55}$$

avec X_{Fo} la proportion de Fo dans l'olivine et $a_{\text{CaO}}^{\text{melt}} = (X_{\text{CaO}}^{\text{melt}})^2 / X_{\text{SiO}_2}^{\text{melt}}$ la pseudo-activité (Libourel, 1999).

La comparaison des concentrations de CaO mesurées avec les concentrations théoriques révèle que dans certaines charges, notamment sur les temps d'expérience courts, les concentrations mesurées sont significativement plus élevées que les concentrations théoriques calculées (Fig. 21b). Comme d'autre part, Pack et Palme (2003) ont montré que le coefficient de partage du Ca entre l'olivine et la mésostase ($D_{\text{Ca}}^{\text{ol/melt}}$) était indépendant de la vitesse de refroidissement, i.e. il est le même à l'équilibre ou hors équilibre, il semblerait que ces excès de CaO par rapport aux valeurs théoriques dans les bordures des fayalites puissent être attribués aux effets de la perte en fer. En effet, on a pu constater que les concentrations en FeO de l'olivine fayalitique diminuaient du cœur vers la bordure contrairement à celles du CaO (Fig. 18). Comme la vitesse de diffusion du CaO dans l'olivine est

moindre que celle du FeO, on peut supposer que le CaO dans les surcroissances n'a pas eu le temps de se rééquilibrer avec la mésostase

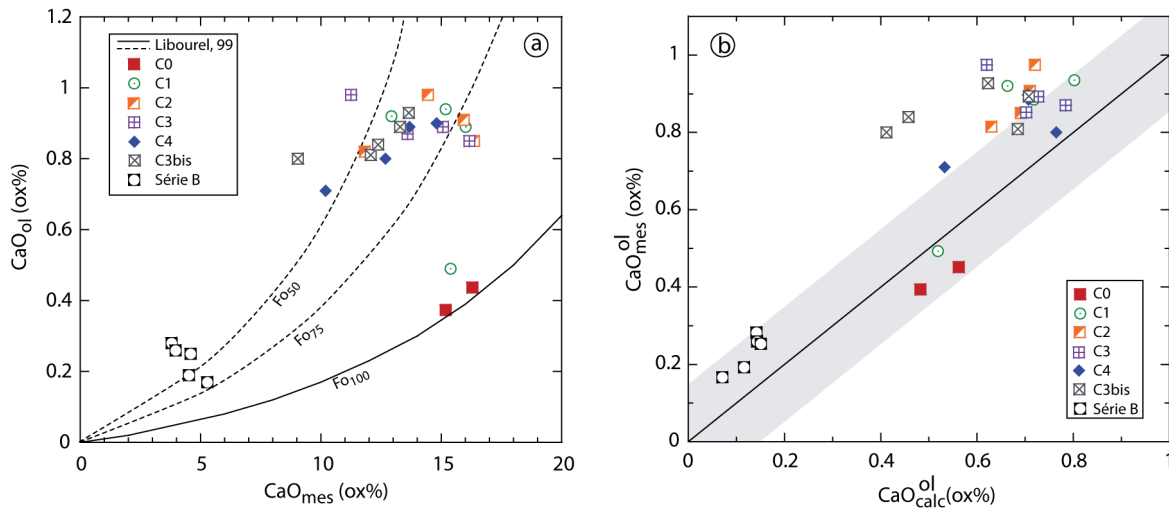


Fig. 21 : a) Concentration de CaO dans les surcroissances fayalitiques en fonction de la concentration globale de CaO dans les mésostases, en pourcentage poids (wt %). Les courbes en trait plein et en pointillées correspondent au partage du CaO à l'équilibre entre la forstérite et des liquides situés dans le système CMAS et CMAS+Fe pour des olivines allant de Fo_{100} à Fo_{50} (Libourel, 1999). b) Concentration de CaO mesurée dans la bordure des fayalite en fonction de la concentration de CaO théorique à l'équilibre, calculée à partir de la formule empirique de Libourel (1999). La zone grisée autour de la droite de pente 1 définit l'incertitude liée à la formule empirique.

b. Coefficients de partage de Al

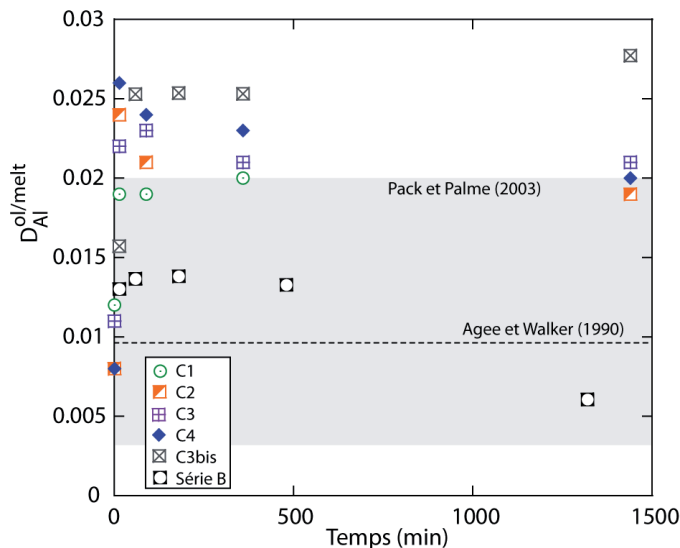


Fig. 22 : Coefficients de partage de l'Al mesuré entre la bordure des surcroissances de fayalite et la mésostase des charges expérimentales. La droite entrant pointillée correspond à la valeur à l'équilibre calculée à partir de la formule empirique de Agee et Walker (1990), $\text{Ln}D^{\text{ol-melt}} = 0,082 / P - 8290 / T$, avec P la pression en GPa et T la température en K. La zone grisée correspond à la gamme de coefficients de partage mesurée par Pack et Palme (2003).

Le coefficient de partage de l'Al entre l'olivine et le liquide est très dépendant de la température, mais en revanche il ne montre pas de dépendance à la composition du liquide et de l'olivine, ni à la vitesse de refroidissement (Agee et Walker, 1990; Pack et Palme, 2003). Nos expériences montrent une large gamme de coefficients de partage de l'Al, qui s'étend de $\sim 0,006$ jusqu'à $\sim 0,028$ (Fig. 22). De façon générale, ces valeurs sont supérieures aux valeurs constatées dans la littérature, i.e. $\sim 0,01$ (Agee et Walker, 1990) et de $\sim 0,003$ à $\sim 0,02$ (Pack et Palme, 2003). D'autre part, excepté pour les temps très courts, on n'observe pas de dépendance parti-

culière avec la durée de l'expérience (Fig. 22).

Toutefois, il est important de noter (i) que les faibles concentrations d' Al_2O_3 dans les surcroissances de fayalite, i.e. de $\sim 0,25$ à $\sim 0,45$ ox%, ainsi que les importantes fluctuations des ces valeurs (Fig. 19) rendent la mesure des concentrations assez hasardeuse, et par la même induisent de fortes erreurs sur les coefficients de partage et (ii) que le protocole d'analyse employé n'est pas adapté pour mesurer les traces.

c. Coefficients de partage de Fe et Fe-Mg

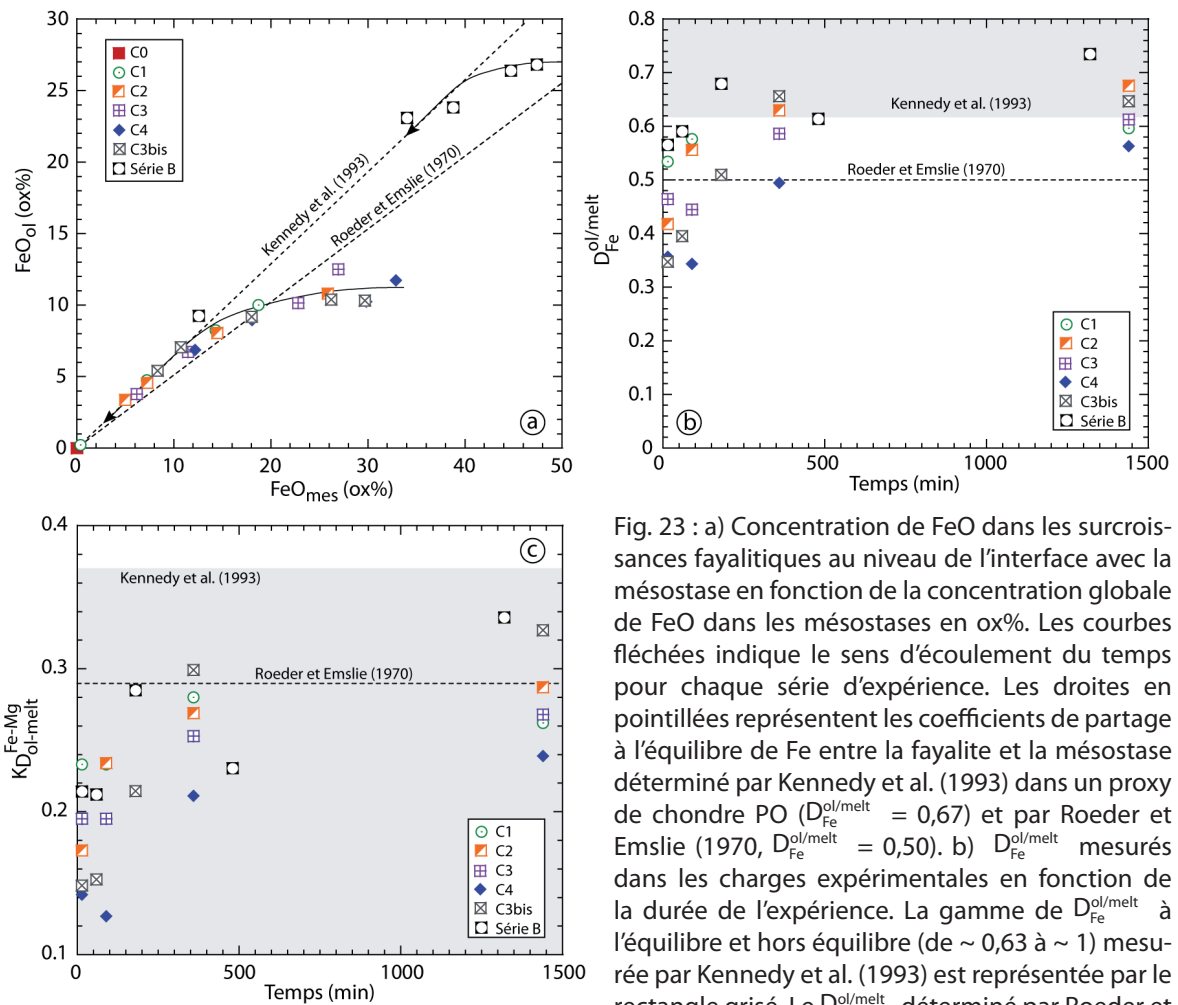


Fig. 23 : a) Concentration de FeO dans les surcroissances fayaliques au niveau de l'interface avec la mésostase en fonction de la concentration globale de FeO dans les mésostases en ox%. Les courbes fléchées indique le sens d'écoulement du temps pour chaque série d'expérience. Les droites en pointillées représentent les coefficients de partage à l'équilibre de Fe entre la fayalite et la mésostase déterminé par Kennedy et al. (1993) dans un proxy de chondre PO ($D_{\text{Fe}}^{\text{ol/melt}} = 0,67$) et par Roeder et Emslie (1970, $D_{\text{Fe}}^{\text{ol/melt}} = 0,50$). b) $D_{\text{Fe}}^{\text{ol/melt}}$ mesurés dans les charges expérimentales en fonction de la durée de l'expérience. La gamme de $D_{\text{Fe}}^{\text{ol/melt}}$ à l'équilibre et hors équilibre (de $\sim 0,63$ à ~ 1) mesurée par Kennedy et al. (1993) est représentée par le rectangle grisé. Le $D_{\text{Fe}}^{\text{ol/melt}}$ déterminé par Roeder et Emslie (1970) est représenté par la droite en pointillés. c) Coefficient de partage de Fe et Mg entre la bordure de la surcroissance de fayalite et la mésostase, $KD_{\text{Fe-Mg}}^{\text{ol-melt}}$, en fonction de la durée de l'expérience. Les coefficients de partages à l'équilibre et cinétiques mesurés par Kennedy et al. (de $\sim 0,1$ à $\sim 0,37$) et Roeder et Emslie (0,29) sont également représentés.

Selon le produit de départ et la durée de l'expérience, les concentrations de FeO des surcroissances de fayalites (à l'interface entre la surcroissance et la mésostase) varient entre 0 wt% et ~ 27 wt% et sont corrélées aux concentrations de FeO dans la mésostaste (Fig. 23a). Le

calcul des coefficients de partage du Fe entre les surcroissances de fayalite et la mésostase ($D_{\text{Fe}}^{\text{ol/melt}}$)

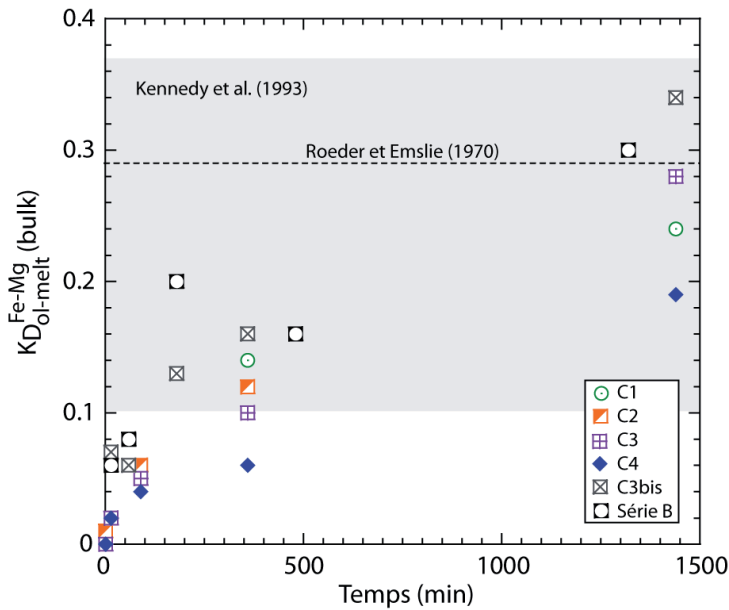


Fig. 24 : Coefficient de partage de Fe et Mg entre l'olivine totale (relique + surcroissance) et la mésostase, $K_D^{Fe-Mg} (bulk)$, calculé à partir des compositions globales de l'olivine et de la mésostase, en fonction de la durée de l'expérience. Le zone grisée correspond aux K_D^{Fe-Mg} à l'équilibre et cinétiques calculés à partir des données de Kennedy et al., (1993) et la droite pointillée à celui de Roeder et Emslie (1970).

indique que les conditions d'équilibre chimique sont atteintes pour les temps d'expérience les plus longs, i. e. > 360 min (Fig. 23a, b). De la même manière, les coefficients de partage de Fe et Mg entre les surcroissances de fayalite et la mésostase (K_D^{Fe-Mg}) indiquent que les conditions d'équilibre sont atteintes pour les expériences les plus longues, i. e. > 360 min (Fig. 23c). La persistance d'un tel déséquilibre est probablement due pour partie à la perte en fer mais également à la présence des forstérite reliques.

Les coefficients de partage

de Fe et Mg entre les olivines totales (reliques + surcroissances) et la mésostase montrent des déséquilibres très forts pour les temps d'expérience courts qui tendent à rejoindre les conditions d'équilibre pour les temps d'ex-

périence les plus longs, i. e. > 360 min (Fig. 24). Il est important de noter que l'équilibre est plus rapidement atteint dans les cas où les granulométries des forstérites des produits de départ sont plus fines et donc plus proches de celles des chondres (C3bis et série B). Ces coefficients de partage très faibles ne peuvent pas être expliqués par un effet cinétique (Fig. 24,

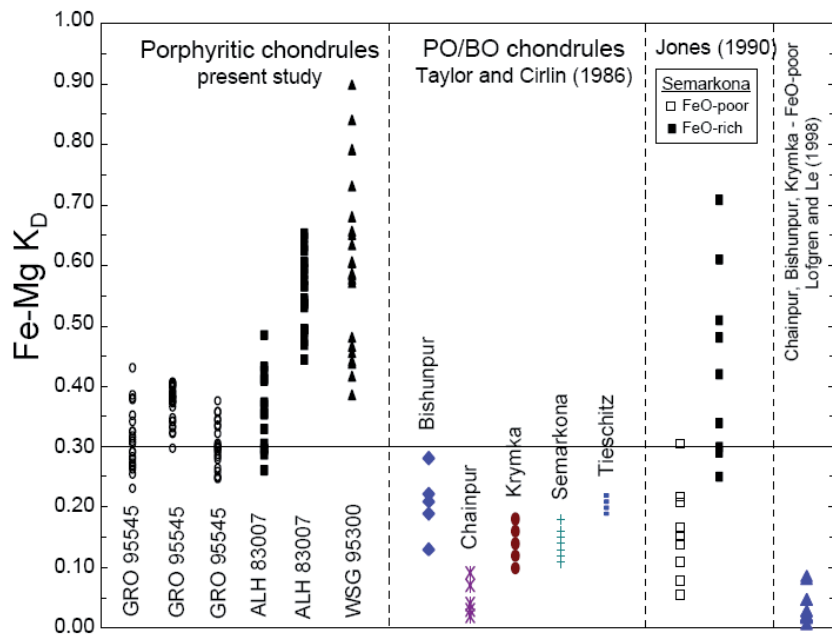


Fig. 25 : Coefficient de partage de Fe et Mg entre les olivines et la mésostase de chondres de type I et de chondres de type II provenant de différentes chondrites ordinaires. Les valeurs de K_D pour les chondres de type II sont proches ou supérieures à 0,3 (valeur à l'équilibre) tandis que celles des chondres de type I sont significativement inférieures à 0,3 (Symes et Lofgren, 1999).

Kennedy et al., 1993). Ils indiquent donc l'existence d'un important déséquilibre chimique entre l'olivine et la mésostase. On retrouve de tels déséquilibres chimiques dans les chondres de type I avec des valeurs de coefficients de partage aussi basses que 0,01 (Fig. 25, Symes et Lofgren 1999). En revanche dans les chondres de type II, les coefficients de partage se rapprochent plus des valeurs d'équilibre (Fig. 25).

2.3. Discussion

2.3.1. Interprétation des résultats expérimentaux

a. *Processus de formation des olivines riches en FeO*

Lorsque la forstérite n'est pas en équilibre avec la mésostase, la première conséquence de la chauffe est la dissolution d'une partie de cette forstérite afin de rejoindre un nouveau point d'équilibre. A titre de simplification, le diagramme ternaire SiO_2 - MgO - FeO permet de comprendre

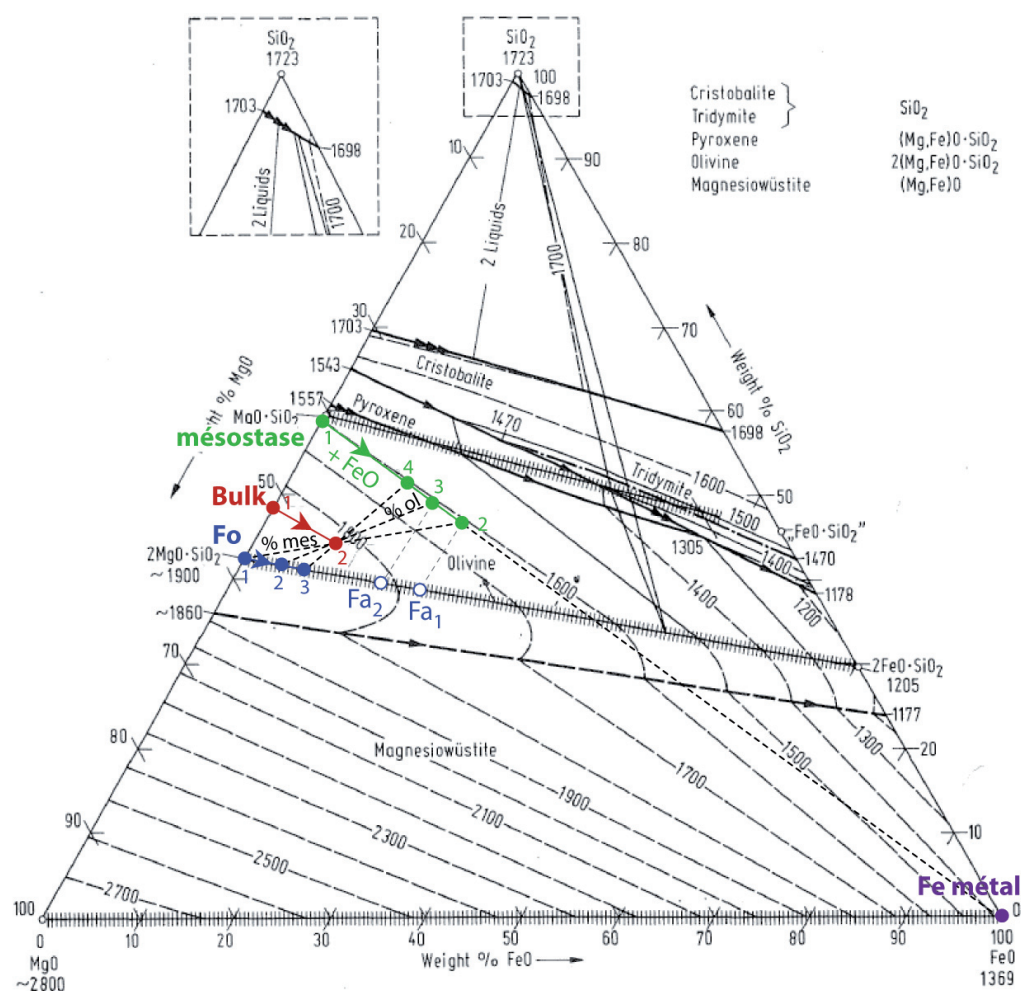


Fig. 25 : Diagramme ternaire SMF (SiO_2 , MgO , FeO) + Fe métal. Les évolutions de la composition globale, de la mésostase et de l'olivine sont représentées par les cercles rouges, verts et bleus respectivement. Les compositions des fayalites cristallisées sont représentées par les cercles blancs bordés de bleu. Fo = forstérite, Fa = fayalite, mes = mésostase et ol = olivine.

les différentes étapes se déroulant dans le système plus complet $\text{CaO-MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2 + \text{FeO}$ (Fig. 25). Initialement, les compositions de la mésostase, de l'olivine forstéritique et du système olivine -mésostase à l'équilibre sont situées sur le binaire $\text{MgO} - \text{SiO}_2$ (positions 1, Fig. 25). L'entrée de FeO dans le système traduit l'évolution de la composition de la mésostase vers la position 2, ce qui a pour conséquence de modifier également la composition globale du système olivine - mésostase et d'amener un déséquilibre chimique. La compensation de ce déséquilibre s'effectue par la cristallisation de fayalite en équilibre avec la mésostase (Fa_1). Ainsi, les compositions de l'olivine et de la mésostase évoluent à leur tour jusqu'à atteindre un nouvel équilibre (position 2 pour l'olivine, 3 pour la mésostase). Tant qu'aucun autre déséquilibre ne se produit, e.g. une modification de la température ou un changement de composition chimique, la situation en reste là.

Il est important de noter que le déséquilibre chimique apporté par l'entrée de FeO dans le système CMAS est le moteur de la cristallisation de la fayalite. D'autre part, on remarque qu'avec l'entrée de FeO , le rapport des proportions d'olivine et de mésostase à l'équilibre se déplace en faveur de l'olivine (Fig. 25).

b. Cinétiques de croissance des olivines riches en FeO

Comme indiqué dans les résultats, la largeur des surcroissances de fayalite est proportionnelle à la durée de l'expérience. Par exemple, si on considère la série d'expérience réalisée avec le mélange C4, la taille des surcroissances est micrométrique à 1 min 30, comprise entre ~ 5 et ~ 10 μm à 15 min, ~ 15 et ~ 20 μm à 20 min, ~ 25 et ~ 50 μm à 360 min et ~ 50 et ~ 100 μm à 1440 min (Fig. 26). L'augmentation de la taille des surcroissances n'est pas linéaire au cours du temps et aug-

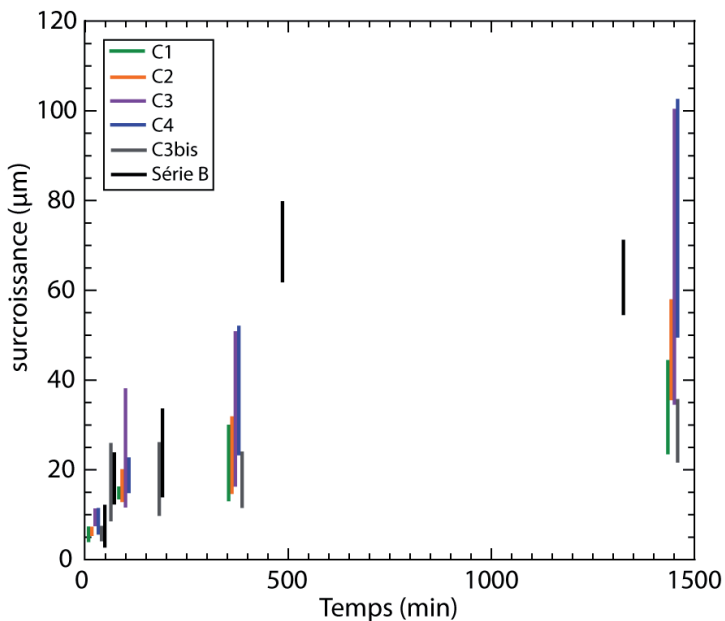


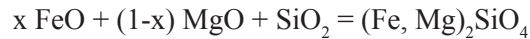
Fig. 26 : Largeur des surcroissances de fayalite dans les différentes charges en fonction de la durée de l'expérience.

mente avec la teneur initiale en FeO pour un temps d'expérience donné, e. g. entre C1 et C4 (Fig. 26). On peut trouver deux explications à ce constat très logique :

- La cristallisation de la fayalite se fait en réponse au déséquilibre chimique apporté par l'afflux de FeO dans la mésostase. Ainsi, plus la fayalite cristallise et plus ce déséquilibre est compensé et moins le moteur de la cristallisation est efficace.

- Pour chaque μm de surcroissance supplémentaire la surface totale de la surcroissance augmente en puissance de deux. Ainsi, la quantité d'éléments nécessaire pour faire croître les fayalites augmente dans les mêmes proportions au cours du temps.

La cristallisation de la fayalite se fait selon l'équation bilan :



dont la vitesse de réaction est définie par :

$$v = d\xi/dt = d\text{FeO}/xdt = d(\text{Fe, Mg})_2\text{SiO}_4/dt \text{ (avec } \xi, \text{ l'état d'avancement de la réaction)}$$

Cette équation montre bien d'une part, que plus la quantité initiale de FeO est importante et plus la cristallisation de la fayalite sera rapide et plus il sera possible d'en cristalliser, et d'autre part, que la cristallisation de la fayalite entraîne la baisse de la vitesse de la réaction.

D'autre part, La granulométrie initiale de l'olivine semble également jouer un rôle puisqu'à teneur en FeO et durée d'expérience équivalentes les largeurs de surcroissances sont de plus petite taille dans les charges réalisées à partir de C3bis que dans celle réalisées à partir de C3 (Fig. 26). Enfin, le fait que la forstérite soit en équilibre (Série B) ou non (C1-C3bis) avec la mésostase n'influe pas sur la vitesse de croissance de la fayalite (Fig. 26).

c. Cinétique de diffusion de FeO entre les reliques et les surcroissances

La distance de diffusion du FeO dans la forstérite est proportionnelle à la durée de l'expérience (Fig. 27). En première approximation, on peut considérer que puisque les expériences sont isothermes alors le coefficient de diffusion (D) doit rester constant au cours du temps. Ainsi, la distance de diffusion d'un élément (Δx) peut être caractérisé par l'équation suivante :

$$\Delta x = 2 \times \sqrt{Dt}$$

Connaissant les gammes de distances de diffusion dans chaque charge ainsi que la durée de chauffe, il a été possible de calculer les coefficients de diffusion de FeO pour chacune des charges. En pratique, il s'avère que les coefficients de diffusion calculés tendent à diminuer au cours du temps ce qui peut s'expliquer par la perte en fer des charges (Fig. 27), puisque en effet le coefficient de diffusion pour partie du différentiel de concentration en FeO entre les deux pôles de diffusion, i.e. la forstérite et la surcroissance de fayalite. Les profils de concentrations en FeO des surcroissances de fayalite montrent qu'au delà de 360 min la teneur en FeO des surcroissances baisse significativement

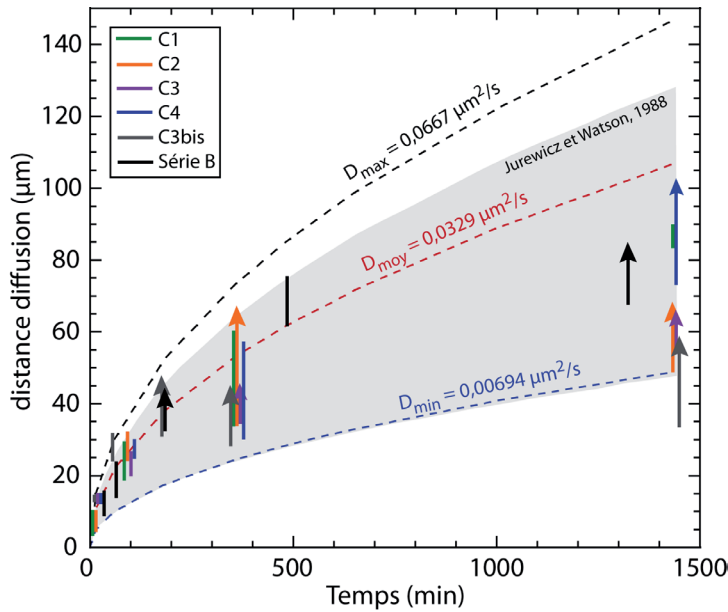


Fig. 27 : Distances de diffusion du FeO mesurées dans les charges en fonction de la durée de l'expérience. Les flèches indiquent que les bornes supérieures sont des valeurs minimales. Les courbes pointillées correspondent aux distances théoriques de diffusion en fonction du temps pour les coefficients de diffusion minimal, moyen et maximal déterminés à partir des charges expérimentales à 1500°C (C1-C3bis), 1450°C (Série B) et une fO_2 de $\sim 10^{-8}$ (pour les durées variant entre 15 min et 360 min, voir texte). La zone grisée correspond aux distances théoriques de diffusion en fonction du temps pour des coefficients de diffusion calculés à partir des données de Jurewicz et Watson (1988), à 1500°C et une fO_2 de 10^{-8} .

(e. g. Fig. 18). Afin de s'affranchir au mieux de cet effet, seuls les coefficients de diffusion pour les charges chauffées entre 15 min et 360 min ont été utilisés pour déterminer la gamme de variation des coefficients de diffusion de FeO. Ainsi ils varient entre $D_{\min} = 0,00694 \mu\text{m}^2/\text{s}$ et $D_{\max} = 0,0667 \mu\text{m}^2/\text{s}$, pour une valeur moyenne $D_{\text{moy}} = 0,0329 \mu\text{m}^2/\text{s}$ (Fig. 26). Ce résultat est tout à fait cohérent avec les données de la littérature, extrapolées pour la gamme de température à laquelle nous avons conduit ces expériences (Fig. 27, Jurewicz et Watson, 1988).

Le fait que la forstérite soit en équilibre (Série B) ou non (C1-C3bis) avec la mésostaste n'influe sur la vitesse de diffusion du FeO dans la forstérite (Fig. 27).

2.3.2. Formation des chondres de type II PO par oxydation à haute température des chondres de type I PO?

Ces expériences montrent que la formation des chondres de type II PO à partir des chondres de type I PO est un processus plausible. En effet, il est possible de reproduire en quelques heures des textures de chondres de type II PO par l'oxydation à haute température d'analogues de chondres de type I PO avec des conditions de température et de fugacité en oxygène compatibles avec la formation de chondres de type II, i. e. $T = 1500^\circ\text{C}$ ou 1450°C et $fO_2 = 10^{-7,7}$ ou $10^{-8,3}$ (e.g. Fig. 8, 10, 13).

a. Influence de l'héritage textural et chimique

On voit bien au travers de ces expériences que la transition entre les chondres de type I PO et les chondres de type II PO est un processus progressif dont le paramètre principal et primordial est la présence ou non initialement de fer. Au delà du fer, les textures et les compositions vont dépendre

de plusieurs paramètres clés :

- Le couple temps - température de chauffe. En effet, puisque les tailles des surcroissances de fayalite ainsi que les distances de diffusion de FeO, et donc la résorption de la forstérite, sont fonction du temps de chauffe et de la température, il est évident que de ce couple va aussi dépendre les textures finales des chondres (e. g. Fig. 8, 10, 13). Ce paramètre est un levier important dans la préservation des olivines reliques aussi bien dans les chondres de type I que dans les chondres de type II (Fig. 1)

- La quantité initiale de fer. En effet, si un chondre de type I PO ne contient initialement que peu ou pas de fer métal, les forstérites seront au final, éventuellement partiellement résorbées en cas de déséquilibre chimique (i.e. comme dans les chondres de type I) mais ne présenteront pas de textures de chondre de type II PO, indépendamment de la durée de chauffe (e.g. les charges réalisées à partir de C0, Fig. 8). En revanche, si le chondre contient initialement du Fe métal, la chauffe à haute température sous conditions oxydantes va entraîner l'oxydation du Fe métal en FeO, sa dissolution dans la mésostase puis la cristallisation de surcroissances de fayalite autour des forstérites ainsi que la diffusion de FeO dans ces mêmes forstérites, faisant ainsi apparaître des textures de chondres de type II PO (e.g. Fig. 8).

- La granulométrie initiale des forstérites. En effet, ces expériences montrent bien que la granulométrie finale reste très dépendante de la granulométrie initiale (e.g. Fig. 11). Cependant, dans le cadre de ces expériences comme pour les chondres, le passage de type I PO vers type II PO s'accompagne d'une augmentation sensible de la taille des olivines. Ainsi, on constate que la taille moyenne des fayalites dans les chondres de type II est toujours plus importante que celle des forstérites (Fig. 8, 11, 28). Cela s'explique très bien par le fait que la cristallisation de la fayalite se fait par surcroissance autour de la forstérite. D'autre part, la présence ou non de forstérite relique dépend aussi fortement de cette granulométrie, puisqu'à température, temps de chauffe et composition chimique similaire, i.e. même vitesse de diffusion de FeO, la relique de forstérite sera résorbée plus rapidement dans une olivine de petite taille que dans une olivine de grande taille (e.g. Fig. 8-10, 28).

On peut également considérer que la présence ou non d'un déséquilibre chimique initial entre la mésostase et la forstérite dans le chondre de type I PO n'affecte pas de façon significative le processus global de formation des chondres de type II PO. En effet, les expériences montrent bien que les vitesses de cristallisation de la fayalite, de diffusion de FeO ainsi que les textures sont similaires entre les expériences réalisées à partir de charges présentant un déséquilibre ou un équilibre

chimique initial (e.g. C3bis et Série B).

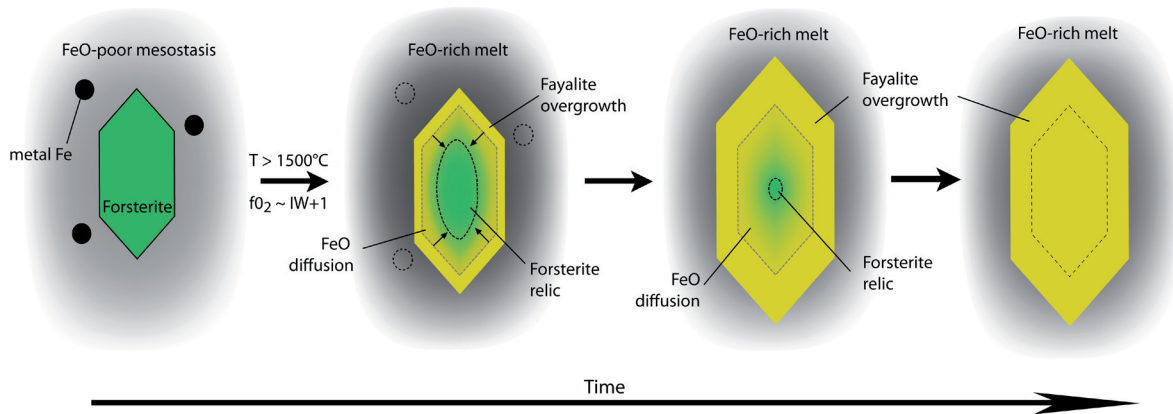


Fig. 28 : Schéma de formation de la fayalite au dépend de la forstérite lors de la chauffe et l'oxydation des chondres de type I PO.

La figure 28 résume les principaux processus de transformation des olivines survenant lors de la formation des chondres de type II PO à partir des chondres de type I PO. Au profit d'un épisode de chauffe dans un environnement oxydant, les billes de Fe métal sont oxydées et puis rapidement dissoutes dans la mésostase liquide entraînant ainsi un fort enrichissement de la mésostase en FeO. Contrairement aux expériences, dans les chondres de type I PO les billes de Fe métal sont de plus grande taille et souvent peu en contact avec la mésostase. Cela peut sans aucun doute créer une inertie dans le processus d'oxydation du fer et ainsi permettre une préservation plus longue des chondres de type I PO. Cet afflux de FeO dans la mésostase se traduit par le «blindage» des forstérites reliques par des surcroissances de fayalite, puis par la diffusion solide –solide de FeO entre la surcroissance et la relique, entraînant la résorption des forstérites reliques. Au cours de ce processus, la taille des olivines fayalitiques augmente sensiblement par rapport à celles des forstérites initiales. En fonction des différents paramètres de chauffe, de composition de la mésostase et de taille des forstérites, des reliques de forstérites pourront éventuellement perdurer au cœur des olivines forstéritiques néoformées (Fig. 1, 28).

b. Environnement de formation des chondres de type II PO

Expérimentalement, le fait de travailler avec des fO_2 proches de IW semble être un bon compromis permettant à la fois l'oxydation efficace du fer métal en Fe^{2+} , donc la cristallisation de la fayalite, et le maintien à un niveau bas de la concentration en Fe^{3+} , i.e. absence de spinelle ferrifère. Cependant ces expériences de formation de chondres de type II PO à partir de chondres de type I PO ont été menées sous des conditions de pression et de fugacité en oxygène qui ne sont pas celles de la nébuleuse solaire. Ainsi, il convient donc de se poser la question de l'environnement de formation

des chondres dans le disque d'accrétion.

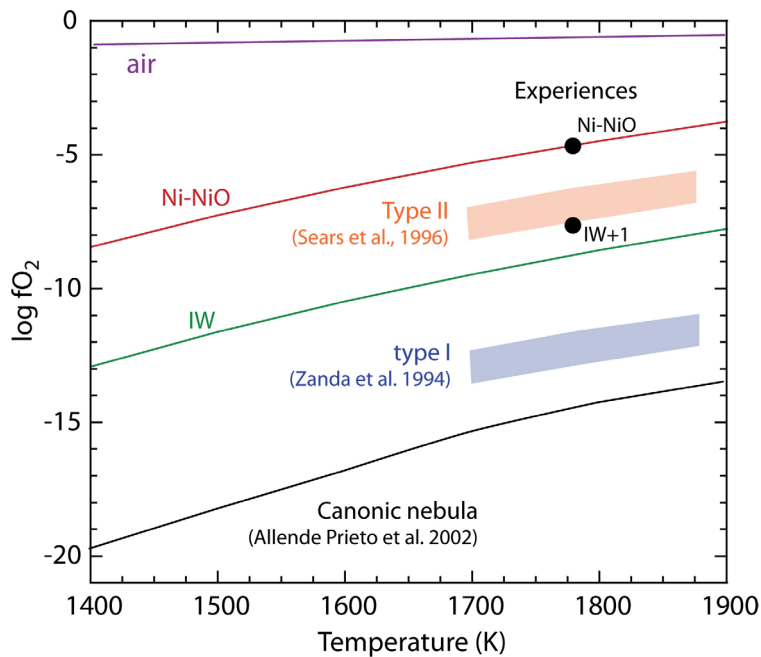


Fig. 29 : Log f_{O_2} en fonction de la température pour les tampons Ni-NiO et IW ainsi que pour la nébuleuse canonique (Allende Prieto et al., 2002) et les expériences d'oxydation. La gamme de valeurs de f_{O_2} intrinsèque des chondres de type I est également représentée (Zanda et al., 1994; Lauretta et al., 2001).

estimées entre 10^{-11} et 10^{-12} à 1600°C (Fig. 29, Zanda et al., 1994; Lauretta et al., 2001).

Les temps de chauffe nécessaires pour former les chondres de type II PO à partir des chondres de type I PO (de l'ordre de quelques heures à 1500°C) implique également que les densités de gaz et de poussière étaient très supérieures aux valeurs nébulaires, i. e. $P_{\text{tot}} = 10^{-3} - 10^{-5}$ atm (e.g. Wood et Morfill, 1988; Grossman et al., 2008). En effet, des densités de gaz trop faibles entraîneraient une évaporation importante des éléments les moins réfractaires associée à de forts fractionnements isotopiques (e. g. Na, K ...). Or les chondres présentent souvent de fortes concentrations en volatils et surtout sont caractérisés par une absence de fractionnement isotopiques aussi bien pour les éléments réfractaires que les éléments volatils (Alexander et al., 2000; Alexander et Wang, 2001; Yu et al., 2003). Il a également été montré que la formation des chondres était incompatible avec les conditions nébulaires classiques, même en considérant des conditions de chauffe de type «flash heating» suivies d'un refroidissement rapide (Yu et Hewins, 1998; Yu et al., 2003).

La question est donc de savoir quel(s) environnement(s) serai(en)t susceptible(s) de présenter d'une part, une f_{O_2} suffisamment élevée pour permettre l'oxydation des chondres de type I

Indubitablement, la présence importante de Fe^{2+} dans les chondres de type II nécessite que lors de leur formation les conditions de fugacité en oxygène aient été proches de IW. Cela implique que leur formation ne s'est pas faite dans un environnement nébulaire canonique puisque dans celui-ci les valeurs de fugacité en oxygène sont beaucoup trop basses, i.e. $10^{-14.5}$ à 1600°C (Fig. 29, e.g. Allende Prieto et al., 2002; Grossman et al., 2008). Ces valeurs sont même trop basses pour avoir été celles qui présidaient à la formation des chondres de type I PO, pour lesquelles les f_{O_2} intrinsèques sont

PO en chondres de type II PO et d'autre part, des densités de gaz suffisantes pour ne pas évaporer les chondres lors de leur formation? Dans le cadre d'un environnement nébulaire pour la formation des chondres, il faut envisager l'existence de zones avec de fortes densités de gaz et des conditions redox élevées. Des modèles de transport de planétésimaux de glace et d'enrichissement en poussière, augmentant localement le rapport $P_{\text{H}_2\text{O}}/P_{\text{H}_2}$ ont été proposés comme mécanismes permettant de créer des régions propices à la formation des chondres (Ciesla et Cuzzi, 2006, Cassen, 2001). Cependant les environnements proposés par ces modèles ne permettent pas la cristallisation de chondre de type II car les $f\text{O}_2$ sont trop faibles (e. g. Grossman et al., 2008). Alexander et al. (2008) ont proposé que les chondres soient formés dans des régions de forte densité de matière, possédant leur propre gravité et avec d'importantes pressions partielles de volatils et modérément volatils (notamment Na) produites par l'évaporation des chondres. L'absence de fractionnement isotopique dans les chondres pourrait ainsi être expliquée par un équilibre avec le gaz.

Une alternative serait d'imaginer que la formation des chondres se soit produite dans un environnement planétaire auquel cas, il est plus aisé d'envisager des conditions de densité de gaz et de $f\text{O}_2$ élevées. Dans le cadre de notre modèle de formation des chondres de type II PO à partir des chondres de type I PO, un tel environnement de formation est privilégié puisque de nombreux indices pétrographiques (Libourel et Krot, 2007) et isotopiques (Libourel et Chaussidon, 2009, en prép.; Villeneuve et al., soumis) suggèrent que les olivines reliques des chondres de type I PO proviennent de planétésimaux différenciés. D'autre part, les compositions chimiques semblables de l'ensemble de ces olivines reliques aussi bien dans les chondres de type I, que dans les chondres de type II ou isolées dans la matrice, impliquant une formation à partir d'un nombre limité de réservoirs, vont également dans ce sens.

c. Cinétique de formation des chondres

Les expériences prédisent des temps de formation pour les olivines fayalitiques à partir d'olivines forstéritiques de quelques heures à 1500°C ou 1450°C et à IW+1 :

- Si on se base sur les mesures de coefficients de partage de Fe et Mg entre les olivines et la mésostase, plus de 6 heures de chauffe dans les charges dont la granulométrie est la plus fine, i. e. proche de celle des chondres (C3bis et Série B), sont nécessaires pour atteindre l'équilibre chimique du Fe et du Mg entre l'olivine et la mésostase (Fig. 24).

- Les profils de diffusion du FeO dans les forstérites reliques indiquent pour leur part que 5-6 heures sont nécessaires pour que la partie centrale d'une forstérite relique de 100 μm de diamètre «voit» le fer et ainsi soit complètement résorbée (Fig. 18, 19).

• Si on se base sur le coefficient de diffusion moyen, $D_{\text{moy}} = 0,0329 \mu\text{m}^2/\text{s}$ à 1500°C , le temps nécessaire pour que le FeO diffuse de $50\mu\text{m}$ est similaire, i.e. $\sim 5\text{h}$ (Fig. 27).

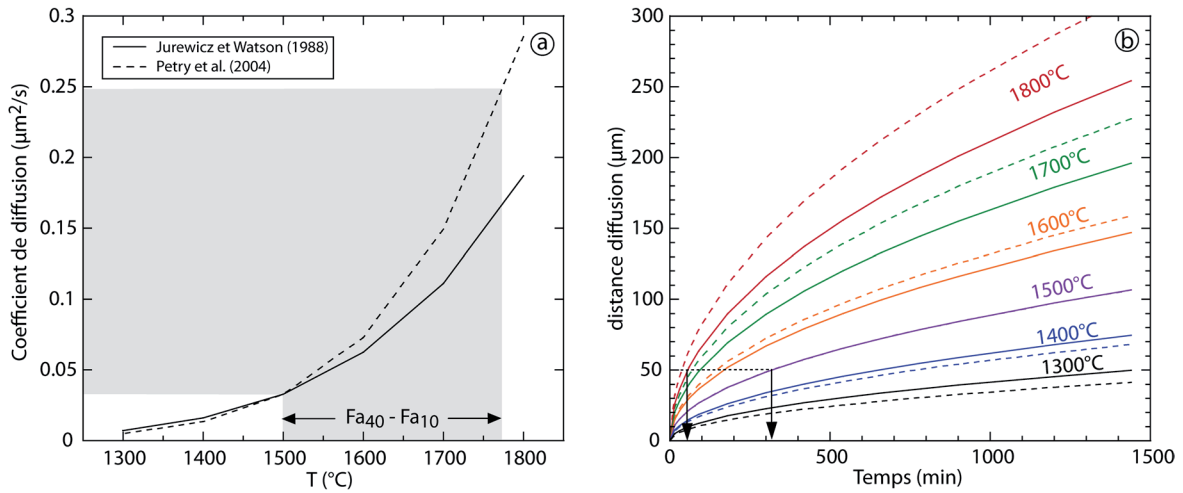


Fig. 29 : a) Evolution des coefficients de diffusion de FeO dans l'olivine en fonction de la température, selon la loi d'Arrhenius, $D(T) = D_0 \times \exp(-E/RT)$, avec E l'énergie d'activation valant 177 kJ/mol (valeur moyenne, Jurewicz et Watson, 1988) ou 237 kJ/mol (Petry et al., 2004), D_0 le facteur pré-exponentiel calculé ici avec $D_{\text{moy}} = 0,0329 \mu\text{m}^2/\text{s}$ et $E = 177 \text{ kJ/mol}$ ou 237 kJ/mol , R la constante des gaz parfait et T la température en K. La zone grisée correspond à la gamme de températures pour laquelle l'olivine est stable de Fa_{10} ($\sim 1780^\circ\text{C}$) à Fa_{40} ($\sim 1500^\circ\text{C}$) dans le diagramme binaire forstérite-fayalite. Ce domaine de stabilité correspond à peu près à la gamme de fayalite présente dans les chondres de type II PO. b) Distances de diffusion de FeO dans l'olivine en fonction du temps, pour différentes températures de chauffe, i.e. différents coefficients de diffusion. Les courbes en traits pleins sont calculées avec la valeur d' E de Jurewicz et Watson (1988) et les courbes pointillées avec celle de Petry et al. (2004)

A l'aide de ces expériences, il est possible de quantifier des temps caractéristiques de formation de chondres de type II PO à partir de chondres de type I PO. On sait que les olivines des chondres de type II PO ont des compositions, en grande majorité, comprise entre $\sim \text{Fa}_{10}$ et $\sim \text{Fa}_{40}$. Or, pour cette gamme de composition, le diagramme binaire forstérite - fayalite indique des températures de cristallisation comprises entre $\sim 1780^\circ\text{C}$ et $\sim 1500^\circ\text{C}$. Si on considère que la formation des chondres de type II PO s'est faite entre ces deux températures, on constate que le D_{moy} de $0,0329 \mu\text{m}^2/\text{s}$ pour la diffusion de FeO dans l'olivine, déterminé au cours de nos expériences, est une borne basse et que la borne haute à 1780°C serait comprise entre $\sim 0,15 \mu\text{m}^2/\text{s}$ et $\sim 0,25 \mu\text{m}^2/\text{s}$ (Fig. 29a), suivant si on considère par exemple les valeurs d'énergie d'activation déterminées par Jurewicz et Watson (1988) ou Petry et al. (2004). De telles valeurs de coefficients de diffusion pourraient réduire le temps de nécessaire à la résorption des forstérites reliques, e. g. pour $D = 0,25 \mu\text{m}^2/\text{s}$ à 1780°C , le FeO diffuse de $50\mu\text{m}$ en $\sim 50 \text{ min}$ (Fig. 29b). Etant donné que la granulométrie moyenne des forstérites dans les chondres de type I PO est de l'ordre de $50 \mu\text{m}$, on peut supposer qu'à température constante comprise entre $\sim 1500^\circ\text{C}$ et $\sim 1800^\circ\text{C}$, le temps de formation d'un chondre de type II dans lequel ne subsiste aucune relique de forstérite est compris entre quelques dizaines de minutes et quelques heures (Fig. 10, 29).

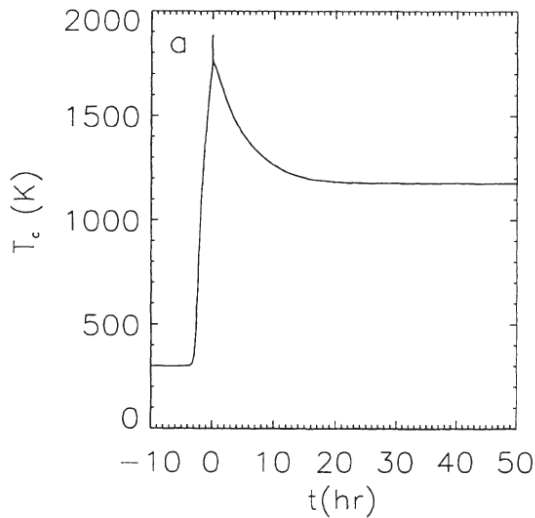
d. *Régimes thermiques lors de la formation des chondres*

Fig. 30 : Profil thermique d'un chondre après le passage d'une onde de choc. Les vitesses de refroidissement sont très rapides entre 1730-860 K car pour cette gamme de températures, la chauffe est due au passage de l'onde de choc et aux frottements avec le gaz. En revanche, pour les gammes de température plus basses, de 1400-1730 K, les vitesses de refroidissement sont plus lentes car la chauffe est due à l'absorption des radiations émises par la poussière et les échanges thermiques avec le gaz (Desch et Connolly, 2002).

La nature du mécanisme de chauffe responsable de la formation des chondres ainsi que la connaissance de l'environnement de formation, i.e. nébulaire ou planétaire, sont des données indispensables à la compréhension des processus de haute température dans le disque protoplanétaire. Une façon de répondre à ce problème est de chercher à caractériser les vitesses de refroidissements expérimentées par les chondres. Les modèles de «flash heating» des chondres par ondes de choc dans un environnement présentant un rapport chondre/gaz canonique, i.e. 0,005, montrent des profils thermiques dont les vitesses de refroidissement sont rapides pour les hautes températures au dessus du liquidus des chondres, i.e. $\sim 10^4$ K/h, et plus lentes ensuite dans la gamme des températures de cristallisation, i.e. 50 K/h (Fig. 30, Desch et Connolly, 2002).

L'approche expérimentale visant à reproduire à la fois les textures et les profils de compositions chimiques des olivines des chondres a donné lieu à des résultats controversés avec des gammes de refroidissement très larges, comprises entre $\sim 5^\circ\text{C/h}$ jusqu'à plus de 1000°C/h pour les chondres porphyriques (e.g. Hewins et al., 2005, Chap. 2).

Une autre approche prometteuse consiste à s'intéresser aux profils de diffusion des éléments entre les forstérites reliques et les surcroissances de fayalite cristallisées en équilibre avec la mésostase dans les chondres de type II PO (Greeney et Ruzicka, 2004, Hewins et al., 2009; Béjina et al., 2009). Dans le modèle classique de formation des chondres de type II PO, les textures et les zonations chimiques dans les minéraux sont interprétées comme étant la marque du refroidissement des chondres lors de leur formation (e.g. Hewins et al., 2005; Jones et al., 2005). En d'autres termes, cela signifie que les gradients de compositions chimiques entre les forstérites reliques et les surcroissances de fayalite sont dus à une diffusion des éléments lors du refroidissement des chondres et qu'à ce titre ils peuvent apporter des contraintes sur les vitesses de refroidissement.

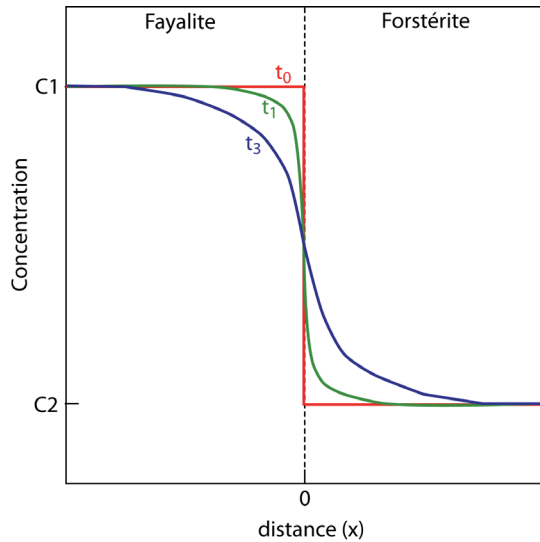


Fig. 31 : Profils de diffusion théorique d'un élément chimique tel que FeO entre deux sources semi infinies, e.g. la surcroissances d'olivine fayalitique et la relique de forstérite, pour différentes durées d'interaction.

Dans ce cas de figure, on peut considérer que la diffusion s'effectue entre deux sources semi infinies, i.e. la forstérite relique et la surcroissance de fayalite, dont les compositions initiales pour un élément donné sont C_1 et C_2 , respectivement (Fig. 31).

La distance de diffusion d'un élément à partir de l'interface à un moment t est définie par :

$$\Delta x = 2 \times \sqrt{D(T(t)) \times t} \quad (1)$$

avec $D(T(t))$, le coefficient de diffusion définie pour une température donnée et un temps t par la loi d'Arrhenius :

$$D(T(t)) = D_0 \times \exp\left(\frac{-E}{RT(t)}\right) \quad (2)$$

Avec D_0 le facteur pré-exponentiel et E l'énergie d'activation qui sont propre à chaque élément et sont déterminés expérimentalement, R la constante des gaz parfait et $T(t)$ la température au moment t .

La résolution de l'équation de diffusion d'un élément entre deux sources semi infinies de composition initiales C_1 et C_2 , nous permet de calculer la concentration de cet élément en fonction de la distance à l'interface, x , et du temps t :

$$C(x, t) = \frac{(C_1 + C_2)}{2} + \frac{(C_2 - C_1)}{2} \times \operatorname{erf}\left(\frac{x}{2\sqrt{D(T(t)) \times t}}\right) \quad (3)$$

Suivant le modèle de refroidissement adopté, i.e. linéaire ou non linéaire, les valeurs de $D(T(t))$ et de $C(x, t)$ ne seront pas les mêmes. L'évolution de la température dans un modèle avec une vitesse de refroidissement linéaire sera caractérisée par l'équation suivante :

$$T(t) = T_0 - S \times t \quad (4)$$

avec T_0 la température initiale et S la vitesse de refroidissement (Lasaga, 1983).

Une vitesse de refroidissement non linéaire pourra être modélisé par des changements de température suivant une loi asymptotique ou exponentielle :

$$1 / T = 1 / T_0 + \eta t \quad (5)$$

$$\text{ou } T = T_0 \times \exp(-\alpha t) \quad (6)$$

avec η et α des constantes, $S = \eta T^2$ dans le cas de la loi asymptotique et $S = \alpha T$ dans le cas de la loi exponentielle (Ganguly et al., 1994). Dans ce cas, la vitesse de refroidissement évolue donc en fonction de la température.

Puisque par principe dans ce modèle classique de formation des chondres, la diffusion des éléments est contrôlée par la vitesse de refroidissement du chondre, alors il devrait être possible de reproduire les profils de diffusion de plusieurs éléments, présentant des vitesses de diffusion variables (e.g. Fe, Ca, Cr ...), en appliquant différents modèles de refroidissement (équations 4, 5 et 6). Néanmoins, en s'appuyant sur des profils de diffusions de Fe, Ca et Mn dans des olivines reliques provenant de chondres des chondrites Sahara 97210 (LL3.2), Wells (LL3.3) et Chainpur (LL3.4), et en appliquant un modèle de refroidissement asymptotique compatible avec les modèles d'ondes de choc (Fig. 30), Greeney et Ruzicka (2004) obtiennent des résultats discordants avec par exemple des vitesses de refroidissement comprises entre 410 K/h et 1870 K/h pour Fe, entre 360 K/h et 3600 K/h pour Ca et entre 1650 K/h et 8380 K/h pour Mn, pour une température de 1950 K et à IW-2. En utilisant les même profils que Greeney et Ruzicka mais en supposant un modèle de refroidissement linéaire et en optimisant les erreurs sur D_0 et E avec une règle de compensation, Bějina et al. (2009) obtiennent des résultats un peu moins discordants avec des vitesses de refroidissement comprises entre 755 K/h et 1604 K/h pour Fe, entre 825 K/h et 881 K/h pour Mn et entre 22 K/h et 558 K/h pour Mn, dans Wells à IW-2.

Hewins et al. (2009) interprètent ces discordances comme étant dues (i) aux processus de métamorphisme dans les corps parents des chondrites étudiées et (ii) à l'anisotropie des vitesses de diffusion suivant les orientations du réseau cristallin. Afin de s'affranchir de ces deux sources d'erreurs, les auteurs ont travaillé à partir de profils de diffusion de Fe et Cr dans des olivines reliques de Semarkona (LL3.0), en tenant compte des effets de l'anisotropie de la diffusion (Hewins et al., 2009). Cependant, même en prenant ces précautions, les profils de température en fonction du temps calculés pour les modèles asymptotique et exponentiel montrent des disparités entre Fe et Cr, e.g. une vitesse de refroidissement initial de $\sim 300^\circ\text{C/h}$ pour Fe et $\sim 400^\circ\text{C/h}$ pour Cr ou des courbes de refroidissement qui divergent de plus en plus avec le temps. D'autre part, ces modèles de refroidissement asymptotique ou exponentiel impliquent un franchissement de la zone de température de transition

vitreuse de la mésostase des chondres (~ 950 – 1100 K) avec des vitesses de refroidissement lentes qui sont incompatibles avec la présence de mésostase vitreuse dans de nombreux chondres.

Indépendamment des incertitudes planant sur les valeurs de D_0 et E pour chaque élément et du modèle de refroidissement choisi, il n'est absolument pas logique d'arriver à des résultats impliquant des régimes thermiques (temps de chauffe, vitesses de refroidissement) radicalement différents d'un élément à un autre. Cela semble indiquer que le postulat de départ selon lequel les gradients de diffusion des éléments entre la forstérite relique et la surcroissance fayalitique sont uniquement le reflet du refroidissement subit par le chondre erroné.

Un des résultats de nos expériences est de montrer qu'il est possible de reproduire des gradients de diffusion entre la forstérite relique et la surcroissance fayalitique similaires à ceux des chondres, à partir d'un profil thermique isotherme suivi d'une trempe rapide ($>10^4$ °C/h) n'affectant pas la diffusion des éléments. En effet, dans ce modèle de formation des chondres de type II PO à partir des chondres de type I PO, le moteur de la diffusion entre la forstérite et la fayalite n'est pas un gradient de température imposé par une vitesse de refroidissement, mais un gradient chimique imposé par l'arrivée de FeO dans la mésostase suite à l'oxydation du Fe métal et à la cristallisation de fayalite. Cela implique d'une part, que l'étude de ces profils de diffusion ne renseigne pas nécessairement directement sur le refroidissement des chondres et d'autre part, qu'il est possible de raisonner différemment pour expliquer ces profils de diffusion. Ainsi, nous nous sommes livrés à quelques simulations de profils de diffusion de Fe, Ca, Mn et Cr, appliquées aux profils mesurés dans Wells par Greeney et Ruzicka (2004) et dans Semarkona par Hewins et al. (2008) afin de déterminer quels sont les profils thermiques permettant de reproduire au mieux ces données.

Tableau 4 : Energie d'activation, facteur pré-exponentiel et coefficient de diffusion de Fe, Ca, Mn et Cr pour une $fO_2 = 10^{-8}$ à $T_0 = 1634$ °C.

Elément	Référence	E (kJ/mol)	D_0 (cm ² /s)	$D(T_0)$ (cm ² /s) [‡]
Fe	Jurewicz et Watson (1988)	209	1×10^{-4}	$1,89 \times 10^{-10}$
Fe[†]	Petry et al. (2004)	237 ± 12	$9,27 (+16,85/-5,98) \times 10^{-4}$	$2,99 (+5,43/-1,93) \times 10^{-10}$
Fe[†]	Dohmen et Chakraborty (2007)	201	$6,57 \times 10^{-5}$	$2,05 \times 10^{-10}$
Ca	Jurewicz et Watson (1988)	175	7×10^{-6}	$1,13 \times 10^{-10}$
Ca[†]	Coogan et al. (2005)	201 ± 10	$6,03 (+8,11/-3,46) \times 10^{-6}$	$1,88 (+2,53/-1,08) \times 10^{-11}$
Mn	Petry et al. (2004)	230 ± 26	$4,34 (+7,86/-2,8) \times 10^{-4}$	$2,18 (+3,95/-1,41) \times 10^{-10}$
Cr	Ito et Ganguly (2006)	299 ± 14	$2,24 (+6,47/-1,66) \times 10^{-3}$	$1,45 (+4,18/-1,08) \times 10^{-11}$

[†] Facteurs pré-exponentiels recalculés pour une $fO_2 = 10^{-8}$ à partir des valeurs connues pour une $fO_2 = 10^{-12}$, selon l'équation : $\text{Log}(D_0^{10^{-8}}) = \text{Log}(D_0^{10^{-12}}) + a \times (\text{Log}(10^{-8}) - \text{Log}(10^{-12}))$, avec $a = 0,31$ pour Ca (Coogan et al., 2005) et $1/5.5$ pour Fe (Béjina et al., 2009). [‡] $D(T_0)$ calculés à 1634 °C selon l'équation (2). Les erreurs propagées correspondent aux erreurs sur D_0 . Celles sur E ne sont pas prises en compte.

En utilisant les données de D_0 et E de la littérature pour Fe (Jurewicz et Watson, 1988; Petry et al., 2004; Dohmen et Chakraborty, 2007), Ca (Jurewicz et Watson, 1988; Coogan et al., 2005), Mn (Petry et al., 2004) et Cr (Ito et Ganguly, 2006), pour une température de 1634 °C (Hewins et al., 2009) et une fO_2 de 10^{-8} atm (Tableau 4), les temps nécessaires pour reproduire les profils de diffusion de ces éléments ont été modélisés pour différentes vitesses de refroidissement linéaire, comprises entre 0 °C/h et 1000 °C/h (Tableau 5).

Tableau 5 : Temps nécessaire pour ajuster les profils de diffusion de Fe, Cr, Mn et Ca en fonction de la vitesse de refroidissement.

Semarkona 13-66A (Hewins et al., 2009)						
S (K/h)	T_{Fe} (s) ¹	T_{Cr} (s) ²				
0	303	1332				
10	-	1382				
20	-	1441				
50	311	1682				
70	-	1958				
90	-	2625				
100	321	3310				
150	332	<i>NV</i>				
200	344	<i>NV</i>				
300	374	<i>NV</i>				
400	414	<i>NV</i>				
500	480	<i>NV</i>				
600	800	<i>NV</i>				
Wells 4 (Trav 1) (Greeney et Ruzicka, 2004)						
S (K/h)	T_{Fe} (s) ¹	T_{Fe} (s) ³	T_{Fe} (s) ⁴	T_{Ca} (s) ⁵	T_{Ca} (s) ⁶	T_{Mn} (s) ⁷
0	767	526	835	1240	207	698
5	772	-	-	1250	-	703
10	778	-	-	1270	-	709
20	790	-	-	1310	-	720
50	828	560	912	1425	210	757
100	909	600	1018	1770	-	835
120	950	-	-	2100	-	874
150	1026	-	-	3410	-	952
200	1228	728	1570	<i>NV</i>	225	1160
220	-	-	2060	<i>NV</i>	-	-
230	1501	-	-	<i>NV</i>	-	1525
240	1769	-	-	<i>NV</i>	-	1740
300	<i>NV</i>	1230	<i>NV</i>	<i>NV</i>	-	<i>NV</i>
310	<i>NV</i>	1315	<i>NV</i>	<i>NV</i>	-	<i>NV</i>
1000	<i>NV</i>	<i>NV</i>	<i>NV</i>	<i>NV</i>	580	<i>NV</i>

Le modèle de refroidissement est le modèle linéaire de l'équation (4). La température et le coefficient de diffusion sont calculés pour chaque couple vitesse de refroidissement – temps avec les équations (2) et (4). ¹ C_0 et E de Dohmen et Chakraborty (2007). ^{2,4,6}Jurewicz et Watson (1988). ^{3,7}Petry et al. (2004). ⁵Coogan et al. (2005). *NV* valeurs de vitesse de refroidissement au delà desquelles il n'est plus possible d'établir un modèle de diffusion permettant d'ajuster convenablement les données.

La figure 32, présente quelques exemples de profils de concentration modélisés pour des vitesses de refroidissement nulles à partir de l'équation (3). Pour les profils de Fe et Cr dans Semarkona 13-66A et en utilisant les paramètres de D_0 et E de Dohmen et Chakraborty (2007) et Ito et Ganguly (2006), le meilleur modèle est obtenu pour $t = 303$ s avec Fe et pour $t = 1332$ s avec Cr (Fig. 32a, b). Pour les profils de Fe, Ca et Mn dans Wells 4 (Trav 1) et en utilisant les paramètres de D_0 et E de

Dohmen et Chakraborty (2007), Coogan et al. (2005) et Petry et al. (2004), le meilleur modèle est obtenu pour $t = 767$ s avec Fe, $t = 1240$ s avec Ca et $t = 698$ s avec Mn (Fig. 32b, c). Ces résultats montrent qu'il existe une assez bonne concordance entre les durées de diffusion de Fe, Ca et Mn dans le cas de Wells 4 mais qu'en revanche, ça n'est pas le cas pour les durées de diffusion de Fe et Cr dans l'échantillon Semarkona 13-66A. Il est toutefois important de noter que ces modèles de diffusion sont très dépendants de la précision avec laquelle sont connus les paramètres D_0 et E.

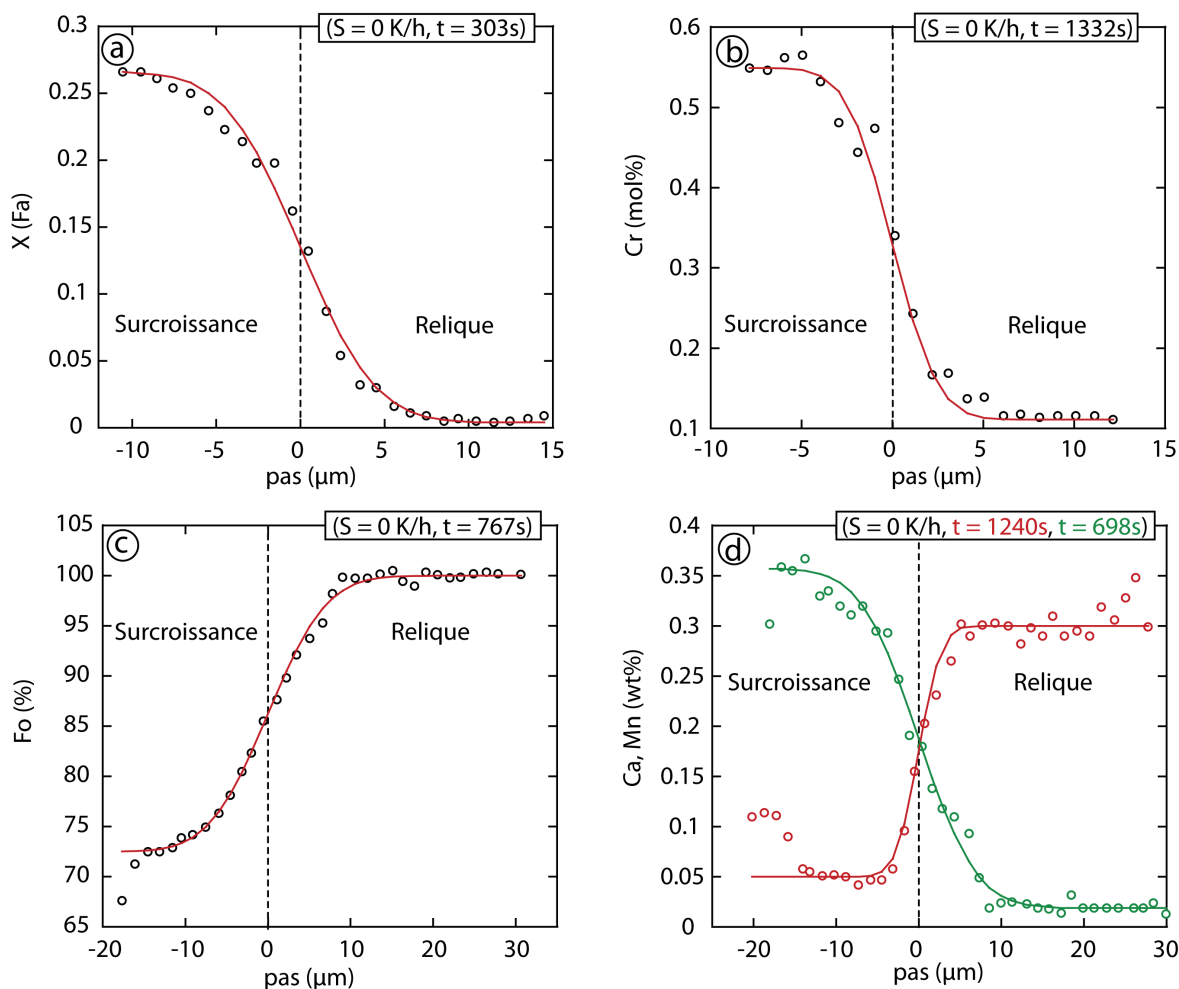


Fig. 32 : Profils de concentrations mesurés (ronds) et modélisés (courbes). a, b) Profils de concentration en Fa et Cr mesurés (Hewins et al., 2009) et modélisés pour une vitesse de diffusion de 0 K/h avec les paramètres D_0 et E de Dohmen et Chakraborty (2007) et Ito et Ganguly (2006) respectivement, dans Semarkona 13-66A. Profils de concentration en Fo, Ca (rouge) et Mn (vert) mesurés (Greeney et Ruzicka, 2004) et modélisé pour une vitesse de diffusion de 0 K/h avec les paramètres D_0 et E de Dohmen et Chakraborty (2007), Coogan et al. (2005) et Petry et al. (2004) respectivement, dans Wells 4 (Trav 1).

Si l'on s'intéresse maintenant aux profils d'évolution du temps nécessaire pour ajuster les profils de concentration modélisés avec les profils mesurés, en fonction de la vitesse de refroidissement on constate, qu'indépendamment des paramètres de D_0 et E choisis, les écarts de temps constatés pour $S = 0$ K/h tendent à augmenter systématiquement avec la vitesse de refroidissement (Fig. 33, 34). Ce constat est d'autant plus flagrant que les différences de coefficients de diffusion en-

tre Fe et les autres éléments sont importantes, e.g. Fe et Mn ont des coefficients de diffusion proches (Tableau 4) ce qui se traduit par des écarts de temps qui restent constants en fonction de la vitesse de refroidissement alors que Fe et Cr dont les coefficients de diffusion sont très différents, divergent très rapidement (Fig. 34).

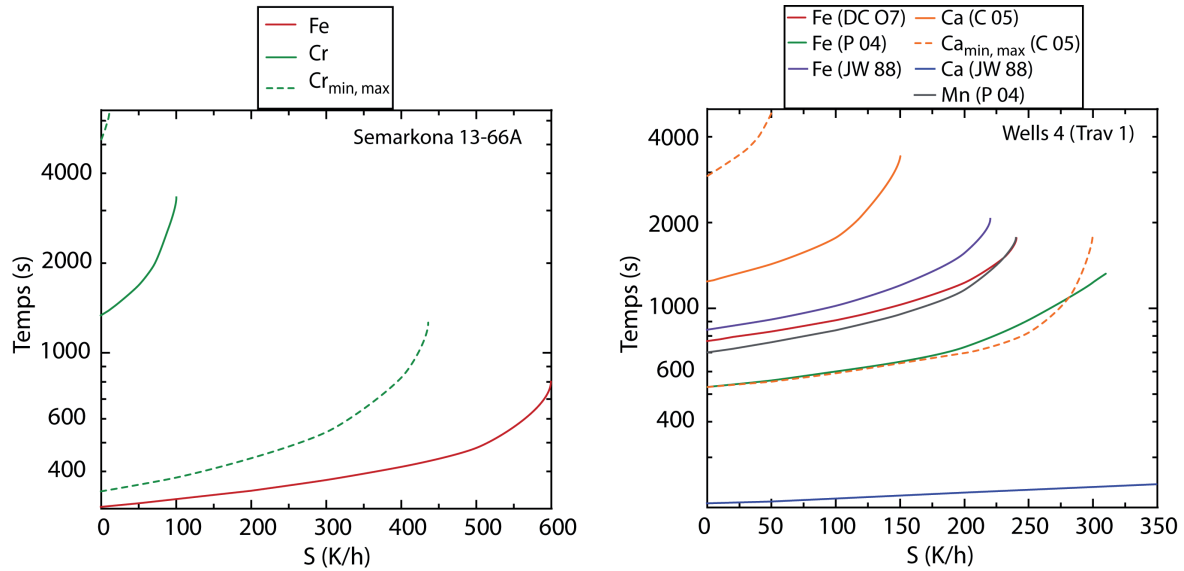


Fig. 33 : Profils du temps nécessaire à l'ajustement des profils de diffusion de Fe et Cr dans Semarkona 13-66A et de Fe, Mn et Ca dans Wells 4 en fonction de la vitesse de refroidissement (Tableau 5). Les droites en pointillées correspondent aux profils calculés en tenant compte des erreurs sur les coefficients de diffusion. DC 07 = Dohmen et Chakraborty (2007), P 04 = Petry et al. (2004), JW 88 = Jurewicz et Watson (1988) et C 05 = Coogan et al. (2005).

Indépendamment de l'élément considéré, ces résultats montrent une convergence vers des

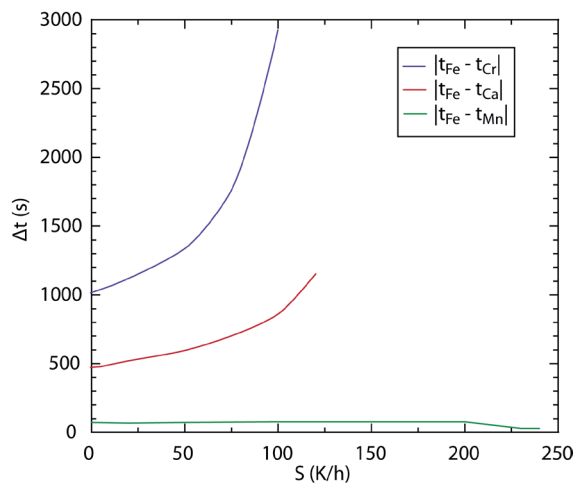


Fig. 34 : Valeurs absolues des différences entre temps modélisés pour Fe et Cr (Semarkona 13-66A), Fe, Ca et Mn (Wells 4) en fonction de la vitesse de refroidissement. Les paramètres de D_0 et E utilisés sont ceux de Dohmen et Chakraborty (2007) pour Fe, Ito et Ganguly (2006) pour Cr, Coogan et al. (2005) pour Ca et Petry et al. (2004) pour Mn.

temps de formation des chondres très courts comparativement aux modèles avec des vitesses de refroidissement asymptotique ou exponentiel puisqu'il faut entre ~ 300 et ~ 1500 s pour Semarkona 13-66A et entre ~ 500 et ~ 1300 s pour Wells 4 à une fO_2 de 10^{-8} à 1634 °C et $S = 0$ K/h (Fig. 31).

D'autre part, ces résultats confirment toute l'importance qu'il peut y avoir à bien contraindre les paramètres d'énergie d'activation et de facteur pré-exponentiel. En effet, on peut voir que suivant le couple $D_0 - E$ utilisé les profils de temps de diffusion seront radicalement différents (Fig. 33). Compte tenu de la très gran-

de divergence entre les données disponibles dans la littérature (e.g. Tableau 4), il n'est pas possible dans l'état actuel des choses de tester plus en détail le modèle présenté ici.

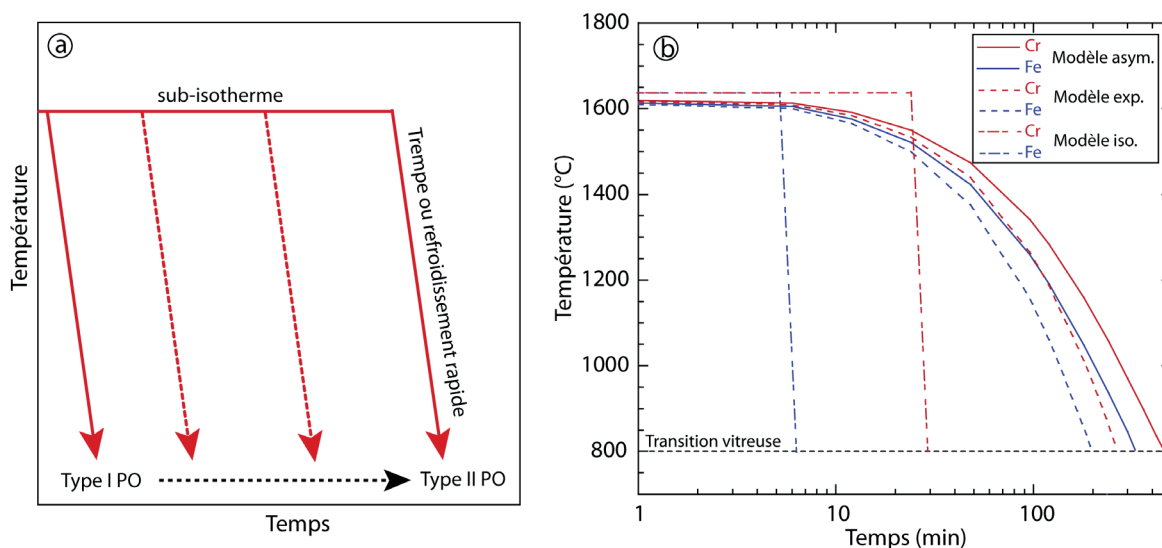


Fig. 35 : a) Modèle de profil thermique pour la formation des chondres de type II PO à partir des chondres de type I PO. En fonction de la durée de l'étape isotherme ou sub-isotherme, les reliques de forstérite seront plus ou moins bien préservées. Un trempé immédiat sans palier à haute température permet la formation des chondres de type I PO. b) Profils thermiques et en fonction du temps nécessaire à la formation du chondre 13-66A de Semarkona selon les modèles asymptotique, exponentiel et isotherme (d'après les données de Hewins et al., 2009). Le temps de formation est compris entre ~ 5 et ~ 25 min pour le modèle isotherme, entre ~ 200 et ~ 270 min pour le modèle exponentiel et entre ~ 350 et ~ 470 min pour le modèle asymptotique.

Néanmoins, à la vue de ces résultats, il semblerait que les profils de diffusion des éléments entre les forstérites reliques et les surcroissances de fayalite dans les chondres ne puissent être obtenus qu'avec des temps de refroidissement très lents voir nuls. Dans un tel modèle, le paramètre de contrôle de la diffusion serait uniquement le gradient de composition chimique créée par l'oxydation du Fe métal permettant de cristalliser une olivine riche en FeO. Pour reproduire toute la variabilité de textures et de compositions chimiques des chondres de type I PO vers les chondres de type II PO (e.g. quantité de billes de Fe métal, degré de résorption des reliques, profils et distance de diffusion des éléments ...), il faut combiner à ce profil thermique isotherme ou sub-isotherme, un profil de trempé permettant de figer les chondres dans l'en-cours de la transition de type I PO vers type II PO (Fig. 35a). Ainsi, ce qui déterminera les textures et les compositions chimiques des chondres sera (i) le temps passé dans la partie sub-isotherme du profil thermique avant la trempé et (ii) la vitesse de diffusion de chaque élément, e.g. des éléments tels que P et Al qui ont des vitesses de diffusion très lentes ne diffuseront pas ou peu dans la relique à l'inverse d'éléments tel que Fe qui a une vitesse de diffusion plus élevée (Fig. 18, 36, Hewins, 2009). Par rapport aux profils thermiques asymptotique et exponentiel, ce profil thermique (à deux régimes) conduit à une formation des chondres qui est très rapide, i.e. de l'ordre de quelques dizaines de minutes au maximum pour Semarkona 13-66A (Fig.

35b, Hewins et al., 2009). Même si plus de tests doivent être conduits sur d'autres objets, il n'en reste pas moins vrai que les temps de formation documentés ici donnent des ordres de grandeur radicalement plus courts que ceux prédit jusqu'alors.

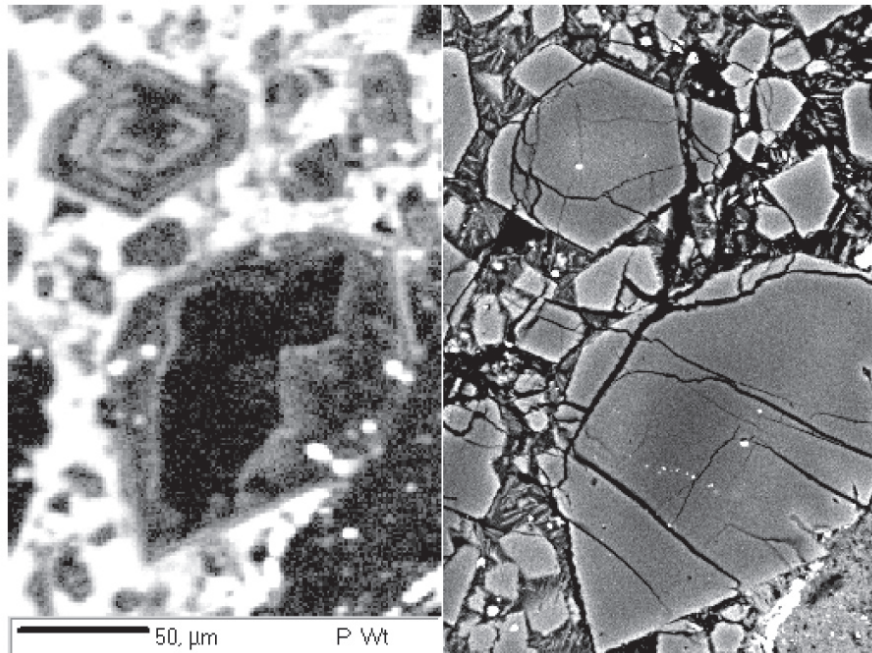


Fig. 36 : Image chimique du P et en électrons retro-diffusés d'une olivine forstéritique avec un cœur relique dans un chondre de type II PO de Semarkona (Hewins, 2009). Le contour de la relique est très bien marqué par le phosphore qui est un élément très peu diffusif alors que Fe qui lui diffuse plus vite a pénétré jusqu'au cœur de la relique.

Un profil thermique bipartite tel que celui-ci permet également d'expliquer certains profils de concentration en FeO au niveau des bordures des surcroissances de fayalite et qui nécessitent des vitesses de refroidissement très rapides (e.g. Miyamoto et al., 2008). En effet on peut supposer qu'il s'agit d'une cristallisation très rapide survenue lors de la phase de trempe. Cela expliquerait également la présence d'une mésostase vitreuse dans de nombreux chondres et qui ne peut être expliquée que par une trempe ($>10^4\text{K/h}$).

3. Modèle de formation des chondres : filiations et chronologie

3.1. Introduction

L'existence d'un lien de filiation entre les chondres de type I PO et de type II PO est suggérée par le fait que ces deux types de chondres présentent des forstérites reliques qui partagent des caractéristiques chimiques (Klerner et al., 2000; Weinbruch et al., 2000; Pack et al., 2004, 2005) et isotopiques (Weinbruch et al., 1993; Leshin et al., 1997, 2000; Saxton et al., 1998; Sears et al., 1998; Ruzicka et al., 2000, 2007; Pack et al., 2004; Chaussidon et al., 2008, Connolly et al., 2010) similaires. D'autre part, les expériences présentées ci-dessus montrent que les chondres de type I PO

sont des précurseurs potentiels pour les chondres de type II PO. Les résultats de ces expériences sont cohérents avec le fait que les forstérites magnésiennes sont les minéraux majoritaires des chondres de type I PO alors qu'elles sont présentes uniquement sous forme de reliques dans des fayalites et des orthopyroxènes dans les chondres de type II PO

De nombreux arguments expérimentaux, pétrographiques, chimiques et isotopiques indiquent qu'au cours de leur formation, les chondres ont plus ou moins interagi avec une phase gazeuse riche en éléments volatils et modérément volatils (e. g. Matsunami, 1993; Hewins et al., 1998; Nagahara et al., 1999; Tissandier et al., 2002; Yu et al. 2003; Libourel et al., 2003; Krot et al., 2004; Chaussidon et al., 2008). De plus, l'enrichissement des chondres en éléments volatils et modérément volatils, à partir de la phase gazeuse, se traduit par une évolution des textures minéralogiques des PO vers les PP en passant par les POP (Tissandier et al., 2002; Libourel et al., 2003, 2006). En d'autres termes, cela signifie que les chondres PO sont plus primitifs que les POP et les PP, dans le sens où ils n'ont chimiquement peu ou pas interagi avec la phase gazeuse.

A partir de ce constat, il peut être émise l'hypothèse que les chondres de type I PO les plus réfractaires, i.e. riches en forstérite et ayant le moins interagi avec le gaz, sont les plus primitifs et que par oxydation et/ou interaction avec la phase gazeuse à haute température, ils permettent la formation de tous les autres types de chondres porphyriques. Ainsi, les chondres seraient le résultat de l'interaction plus ou moins importante entre une composante réfractaire héritée de leurs précurseurs (forstérite, liquide réfractaire et métal) et une composante volatile et oxydante acquise lors de leur formation, par l'interaction avec une phase gazeuse.

Dans ce chapitre est présenté un modèle de formation des chondres qui, par le mélange des trois phases réfractaires héritées des précurseurs, i.e. forstérite, liquide réfractaire et métal, et d'une phase gazeuse riche en éléments volatils, permet de reproduire les compositions chimiques en majeurs et en traces des différents types de chondres porphyriques des chondrites ordinaires Bishunpur et Semarkona (Grossman et Wasson, 1983, 1985; Jones et Scott, 1989; Jones 1990, 1994, 1996; Tachibana et al., 2003; Chap. 5, Tableau 1).

3.2. Présentation du modèle

3.2.1. Composition des produits de départ

Les compositions chimiques des éléments majeurs et de certains éléments traces et terres rares utilisées pour les trois phases réfractaires dans ce modèle sont compilées dans le tableau 6. La composition chimique de la forstérite provient des travaux de Pack et al. (2004, 2005) menés sur

des olivines réfractaires d'Allende (CV3), de Vigarano (CV3), Chainpur (LL3.4), Dar al Gani 369 et 378 (H/L3). Bien qu'il ne s'agisse pas directement de la composition des olivines réfractaires de Semarkona et Bishunpur, elle peut être considérée comme un bon analogue puisque toutes les olivines réfractaires ont des compositions similaires (Klerner et al., 2000; Weinbruch et al., 2000; Pack et al., 2004, 2005). La composition utilisée pour le liquide réfractaire et primitif provient à la fois des travaux de Varela et al. (2002) sur la chimie des inclusions vitreuses riches en Al des olivines des chondrites CR Renazzo, Acfer 182 et El Djouf 001, et de l'étude d'Alexander (1994) portant sur la distribution des éléments traces dans les chondres des chondrites ordinaires Bishunpur, Semarkona et Chainpur. La composition du métal provient des études de Kong et Ebihara (1996, 1997) sur la composition chimique de la phase métallique des chondrites ordinaires L et LL. Bien que ces deux études ne fassent pas la distinction entre le métal des chondres et celui de la matrice, les données sont utilisables pour notre modèle puisque ces deux types de métaux ont des compositions similaires (Affiatalab et Wasson, 1980; Rambaldi et Wasson, 1981). Les données présentées dans la suite sont normalisées à la composition chimique des CI (Tableau 6, Lodders, 2003)

Tableau 6 : Compositions chimiques en wt% et normalisées aux CI, des trois phases réfractaires utilisées dans le modèle (Pack et al., 2004, 2005; Varela et al., 2002; Kong et Ebihara, 1996, 1997).

Elément Majeurs	Olivine réfractaire		Liquide réfractaire		Métal		CI
	wt%	Normalisé aux CI	wt%	Normalisé aux CI	wt%	Normalisé aux CI	wt%
Al	0,15	0,18	14,5	17,08	0	0	0,85
Ca	0,45	0,48	16,3	17,49	0	0	0,93
Ti	0,05	1,09	0,7	15,28	0	0	0,05
Mg	33,7	3,51	2,5	0,26	0	0	9,61
Si	20	1,87	21	1,97	0	0	10,68
Cr	0,07	0,26	0,14	0,53	0,07	0,26	0,26
Mn	0,007	0,04	0,05	0,28	0,01	0,03	0,19
Na	0	0	0	0	0	0	0,50
K	0	0	0	0	0	0	0,05
Fe	0,2	0,01	0,2	0,01	80	4,34	18,43
Traces	ppm	Normalisé aux CI	ppm	Normalisé aux CI	ppm	Normalisé aux CI	ppm
Sc	16	2,71	70	11,86	0	0	5,9
La	0	0	4	16,33	0	0	0,25
Sm	0	0	2	12,99	0	0	0,15
Eu	0	0	1	17,24	0	0	0,06
Yb	0,15	0,91	2,5	15,15	0	0	0,17
Lu	0,025	0,98	0,4	15,75	0	0	0,03
V	100	1,84	100	1,84	10	0,18	54,3
Co	0,8	0,002	0	0	0,7 wt%	13,83	506
Ni	5	0,0005	0	0	18,5 wt%	17,18	1,08 wt%

Dans ce modèle, les trois composants réfractaires interagissent avec un liquide théorique, condensé à partir d'un gaz riche en volatils et modérément volatils (appelé liquide volatil dans la suite). La composition chimique de ce liquide volatil est ajustable suivant le type de chondre, e. g. le liquide théorique du modèle pour les chondres de type I PO n'a pas la même composition chimique que celui pour les chondres de type I POP. En revanche au sein d'un même type de chondre, la

composition du liquide volatil ne varie pas. Seule la proportion de liquide volatil intégré dans chaque chondre varie, en fonction de la concentration en volatils. En d'autres termes, cela revient à considérer que la diffusion des éléments à partir du gaz dans le chondre n'est fonction, pour chaque type de chondre, que de la durée de l'interaction.

3.2.2. Paramètres du modèle

L'idée générale de ce modèle est de reproduire les compositions chimiques en majeurs des chondres porphyriques de Semarkona et Bishunpur (Jones et Scott, 1989; Jones 1990, 1994, 1996; Tachibana et al., 2003; Chap. 5, Tableau 1) en mélangeant dans des proportions variables des composants réfractaires de compositions chimiques fixes (olivine réfractaire, liquide réfractaire et métal) et un liquide volatil dont la composition chimique est ajustable en fonction des besoins en volatils de chaque type de chondre.

Le liquide réfractaire est la phase porteuse des éléments les plus réfractaires, i. e. Ca, Al, Ti (Tableau 6). Leur concentration dans un chondre est donc proportionnelle à la quantité de liquide réfractaire par rapport aux autres composants. De même, si on considère, en première approximation, que le liquide volatil est exempt de Fe, alors la concentration en Fe est contrôlée par la quantité de métal. Un raisonnement similaire appliqué aux éléments les plus volatils, i. e. Cr, Mn mais surtout Na et K, implique que leur concentration soit proportionnelle à la quantité de liquide volatil. Mg et Si sont pour leur part ubiquistes puisqu'ils sont présent à la fois dans l'olivine réfractaire, le liquide réfractaire mais aussi pour Si dans le liquide volatil. Leurs concentrations ne permettent donc pas de contraindre les paramètres du modèle. La modélisation des compositions chimiques s'effectue en trois étapes :

- Etape 1 : Ajustement des proportions de forstérite et de liquide réfractaire d'une part et du métal d'autre part, pour retrouver les concentrations des éléments réfractaires (Ca, Al et Ti) et de Fe de chaque chondre. Les proportions de forstérite, de liquide et de métal sont optimales lorsque $\sum_i (C_{i_{mes}} - C_{i_{mod}}) Ch = 0$ (avec $i = Ca, Al$ et Ti , $C_{i_{mes}}$ la concentration mesurée de l'élément i dans le chondre et $C_{i_{mod}}$ la concentration modélisé de l'élément i pour le même chondre) et lorsque $Fe_{mes} - Fe_{mod} = 0$.

- Etape 2 : Ajustement de la quantité et de la composition du liquide volatil qu'il faut ajouter pour correspondre au mieux à la composition de chaque chondre et aux compositions d'un type de chondre. Ainsi, il la composition du liquide volatil est commune à chaque type de chondre mais la quantité à ajouter est propre à chaque chondre. De la même manière que pour l'étape 1, la quantité et de la composition du liquide volatil sont optimales pour chaque chondre lorsque

$A_k = \sum_j (C_{j_{mes}} - C_{j_{mod}}) Ch_k = 0$ (avec $j = Si, Cr, Mn, Na$ et K) et pour chaque type de chondre lorsque $\sum_k A_k = 0$.

• Etape 3 : Ajustement fin des proportions de forstérite, liquide réfractaire, métal et liquide volatil pour chaque chondre de telle sorte que $\sum_l (C_{l_{mes}} - C_{l_{mod}}) Ch = 0$ (avec $l = Ca, Al, Ti, Mg, Si, Cr, Mn, Na, K$ et Fe).

3.3. Résultats

3.3.1. Composition chimique globale des chondres modélisés

Ce modèle a été testé sur 12 chondres de type I PO, 9 de type I POP, 5 de type I PP, 15 de type II PO, 15 de type II POP et 12 de type II PP provenant des chondrites ordinaires Semarkona et Bishunpur et dont les composition globales en éléments majeurs proviennent de cette thèse (Chap. 5, Tableau 1) et des travaux de Jones et Scott (1989), Jones (1990, 1994, 1996) et Tachibana et al. (2003). Les compositions chimiques des chondres provenant de la littérature ainsi que celles calculées avec le modèle sont placées dans l'annexe 3.

Quelques exemples permettant de comparer les compositions chimiques calculées avec le modèle et les compositions mesurées pour les différents types de chondres sont présentés (Fig. 37-38). Parmi les 68 chondres testés, seules les compositions chimiques de 1 chondre de type II PO et de 3 chondres de type II PP n'ont pu être reproduites de façon satisfaisante avec ce modèle (Fig. 37-38, annexe 3). Ainsi, on peut voir que ce simple modèle de mélange permet de reproduire les compositions chimiques de la plupart des chondres porphyriques des chondrites ordinaires Bishunpur et Semarkona.

Les raisons possibles pour lesquelles certaines compositions chimiques ne peuvent être reproduites avec ce modèle sont multiples, e.g. un épisode de chauffe postérieur à la phase d'interaction avec la phase gazeuse ayant provoqué l'évaporation des volatils (chondre A31, Fig. 38). D'autre part, ce modèle, en ne considérant qu'une seule composition de liquide volatil condensé à partir de la phase gazeuse par type de chondre, simplifie considérablement la réalité des interactions pouvant se produire entre un liquide ou un solide et une phase gazeuse. En effet, cela revient à considérer que le coefficient de diffusion de chaque élément est constant au cours du temps et que seule la durée d'interaction avec la phase gazeuse joue sur la quantité de chaque élément qui diffuse dans le chondre. On néglige ainsi les paramètres pouvant affecter les coefficients de diffusion des éléments et donc les quantités entrantes de chaque élément, tels que l'évolution de la composition chimique du gaz, la

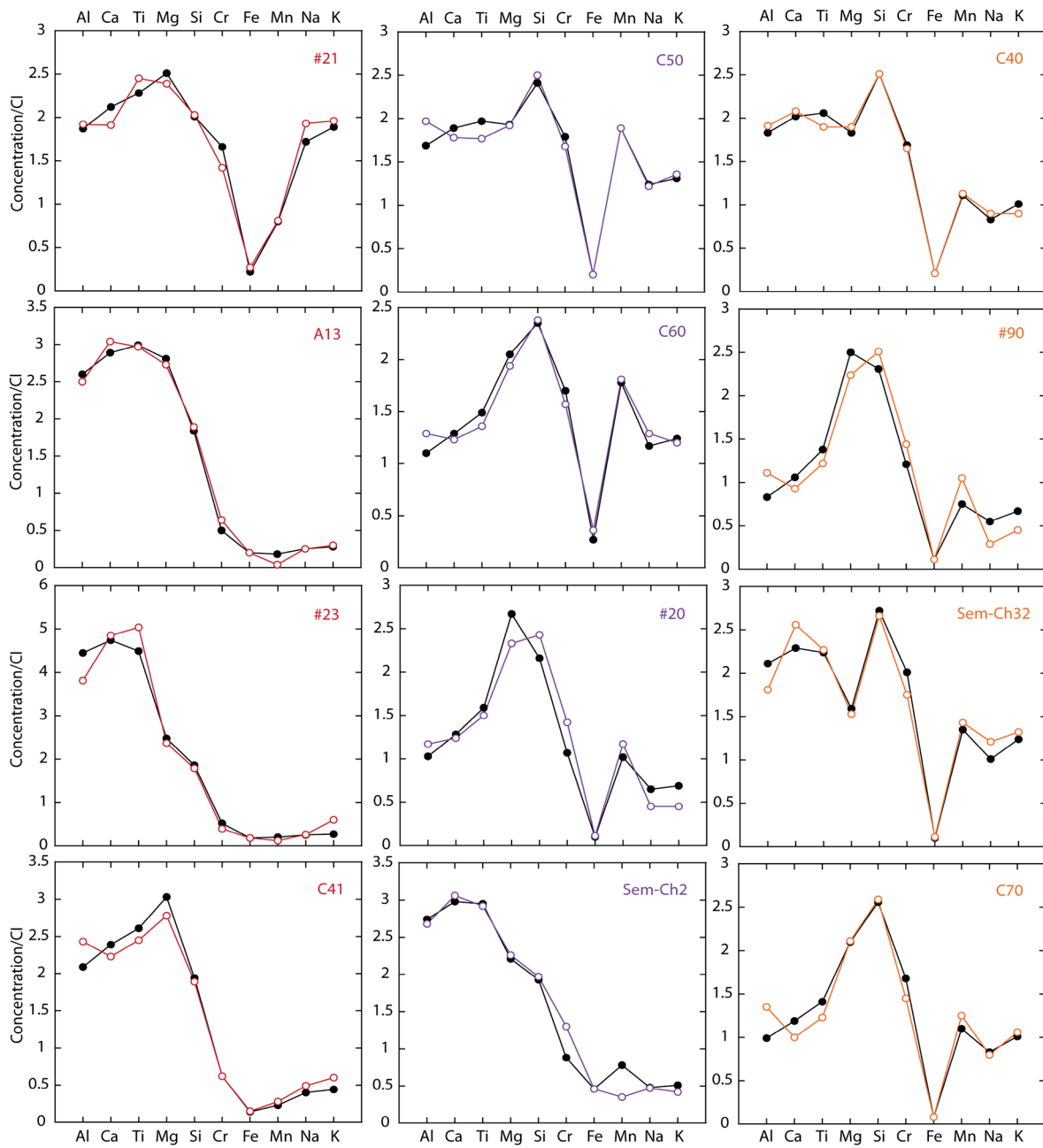


Fig. 37 : Exemples de compositions chimiques calculées avec le modèle (noir) à comparer avec les valeurs mesurées pour les chondres de type I PO (rouge), I POP (violet) et I PP (orange). Les compositions chimiques calculées pour tous les chondres sont données dans l'annexe 3.

composition chimique du chondre ou encore la température. Cela se traduit par une moins bonne correspondance entre les compositions chimiques mesurées et modélisées, notamment pour les volatils, lorsque la contribution de la phase gazeuse devient plus importante (Fig. 37-39).

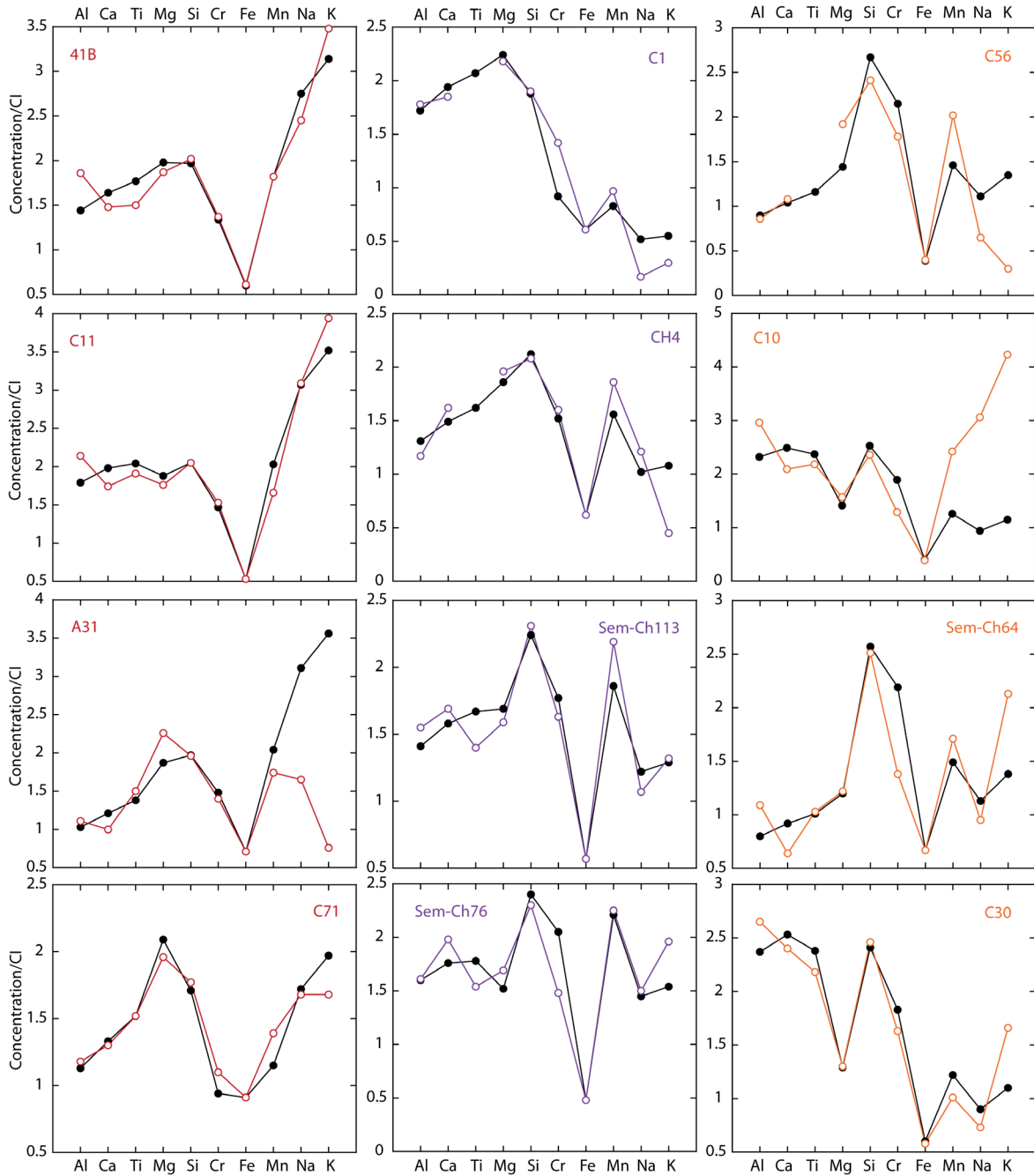


Fig. 38 : Exemples de compositions chimiques calculées avec le modèle (noir) à comparer avec les valeurs mesurées pour les chondres de type II PO (rouge), II POP (violet) et II PP (orange). Les compositions chimiques de tous les chondres mesurés et modélisés sont placées dans l'annexe 3.

3.3.2. Evolution des proportions modales des composants réfractaires et volatil

Les proportions modales d'olivine réfractaire, de métal et de liquide réfractaire nous renseignent sur la composition des précurseurs des chondres. Elles peuvent varier largement au sein d'un même type de chondre, e.g. pour les chondres de type I PO la proportion d'olivine réfractaire varie entre ~ 70% et ~ 98%, celle de liquide réfractaire entre ~ 1% et ~ 30% et celle de métal entre ~ 1% et ~ 10% (Fig. 39). Les gammes de proportions d'olivine réfractaire, de liquide réfractaire et

de métal sont similaires dans chacune des deux grands types de chondres, I et II. En revanche, entre les chondres de type I et les chondres de type II, il existe une dichotomie des proportions de métal et d'olivine réfractaire. En effet, les chondres de type II sont caractérisés par de plus importantes proportions de métal que les chondres de type I, i. e. de $\sim 10\%$ à $\sim 30\%$ contre $\sim 1\%$ à $\sim 10\%$, et à l'inverse des proportions plus faibles d'olivine réfractaire, i.e. de $\sim 50\%$ à $\sim 80\%$ contre $\sim 70\%$ à $\sim 98\%$ (Fig. 39). Cette dichotomie traduit bien le biais introduit par le critère de classification des chondres entre type I et type II. Ce biais, également mis en évidence par nos expériences d'oxydation de chondres de type I PO, est qu'il existe des chondres dit de type I qui ont été oxydés de la même manière que les chondres de type II mais ne contenant pas ou peu de Fe (voir discussion). Par contre, les gammes de proportions de liquide réfractaire (qui caractérisent les concentrations en éléments réfractaires) sont strictement identiques pour les chondres de type I et de type II, i. e. entre $\sim 1\%$ et $\sim 30\%$ (Fig. 39).

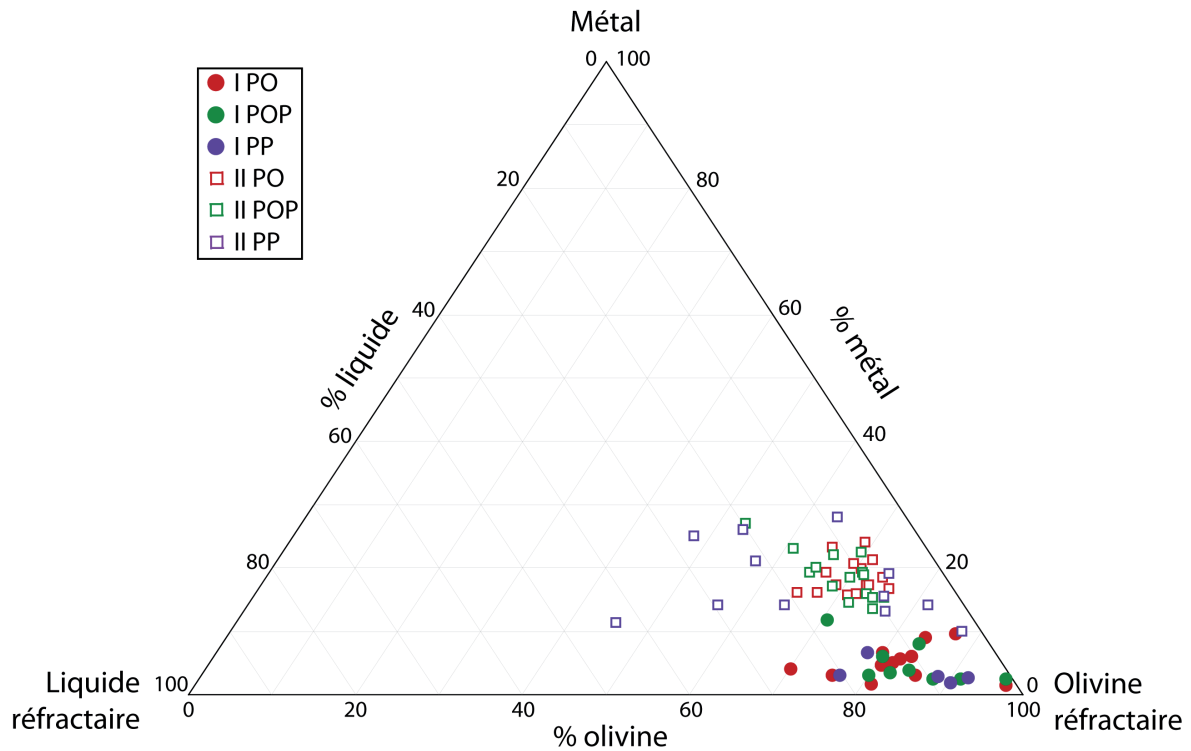


Fig. 39 : Proportions modales normalisées à 100% des composants réfractaires, i.e. proportions recalculées à partir du modèle, sans le liquide volatil.

Bien que les compositions des liquides volatils varient d'un type de chondre à un autre (cf. partie suivante), leurs proportions dans les chondres renseignent sur le degré d'interaction avec la phase gazeuse lors de la formation des chondres et traduit l'entrée d'éléments volatils dans les chondres. Au sein des chondres de type I, les proportions de liquide volatil suivent une progression très nette qui va en augmentant sensiblement des chondres de type I PO vers les chondres de type I POP et I PP, i.e. de $\sim 0,01$ à $\sim 0,15$ pour I PO, de $\sim 0,1$ à $\sim 0,3$ pour I POP et de $\sim 0,2$ à $\sim 0,4$ pour I PP

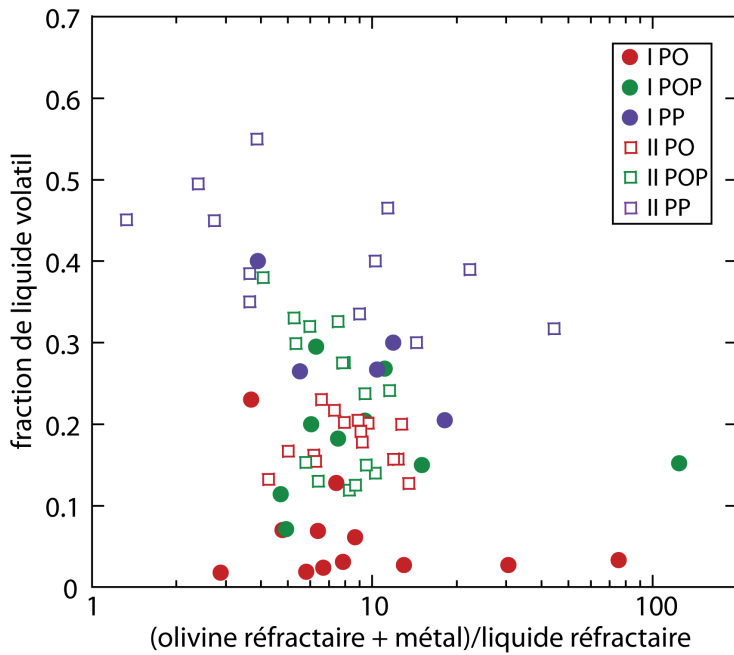


Fig. 40 : Fraction provenant d'un liquide volatil en fonction d'un rapport des proportions des composants réfractaires déterminées à partir du modèle pour chaque chondre. Les proportions modales d'olivine réfractaire, de métal, de liquide réfractaire et de liquide volatil pour chaque chondre sont disponibles en annexe.

3.3.3. Composition du liquide volatil

Les compositions chimiques moyennes des différents types de chondres des chondrites ordinaires (Jones et Scott, 1989; Jones 1990, 1994, 1996; Tachibana et al., 2003; Chap. 5, Tableau 1) montrent que les abondances relatives des éléments réfractaires (Ca, Al, Ti) et du Mg entre eux sont assez similaires, ce qui renforce l'hypothèse de l'existence d'une filiation entre les différents types de chondres (Fig. 41). Ce qui varie en revanche, c'est la concentration de ces réfractaires par rapport aux autres éléments chimiques. Ces éléments réfractaires et le Mg sont de moins en moins abondants lorsque l'on se déplace des types I PO vers les types II PO puis vers et les types I POP, II POP et enfin vers les types I PP et II PP (Fig. 41). A l'inverse, les éléments modérément volatils (Si, Cr et dans une moindre mesure Mn) sont de plus

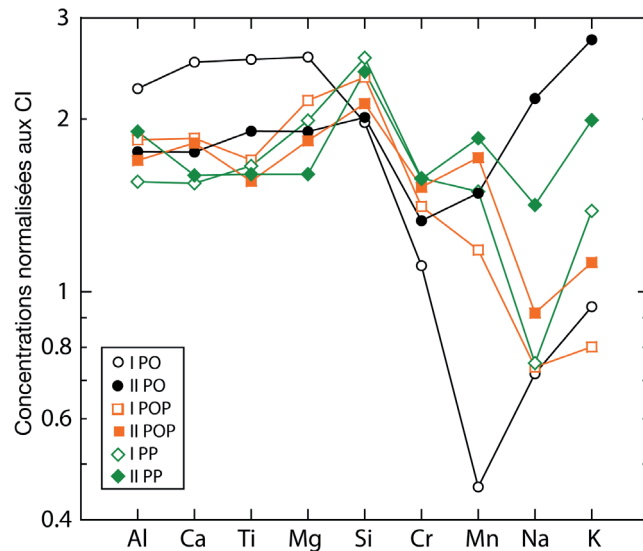


Fig. 41 : Profils de compositions chimiques moyennes des chondres de Semarkona et Bishunpur sans le Fe (Jones et Scott, 1989; Jones 1990, 1994, 1996; Tachibana et al., 2003; Chap. 5, Tableau 1).

(Fig. 40). La même progression très nette est observée au sein des chondres de type II, i.e. de $\sim 0,1$ à $\sim 0,25$ pour II PO, de $\sim 0,1$ à $\sim 0,4$ pour II POP et de $\sim 0,3$ à $\sim 0,5$ pour I PP (Fig. 40). D'autre part, les proportions de liquide volatil augmentent également des types I vers les types II, e.g. de $\sim 0,01$ à $\sim 0,15$ pour I PO et de $\sim 0,1$ à $\sim 0,25$ pour II PO (Fig. 41).

en plus abondants des type I PO vers les type II PP. Le comportement des éléments volatils est plus erratique mais il suit tout de même une évolution similaire (Fig. 41). Cette évolution des profils de concentrations des éléments entre les différents types de chondres est en adéquation parfait avec le modèle de formation des chondres présenté ici et qui prédit une interaction avec une phase gazeuse riche en volatils, de plus en plus importante des chondres de type I PO vers les chondres de type II PP (Fig. 40).

Si on observe dans le détail les profils de concentration de Mn, Na et K des différents types de chondres, on s'aperçoit qu'ils sont différents entre les types I PO et les types II PO mais qu'ils sont semblables entre les types I POP et II POP d'une part et les types I PP et II PP d'autre part (Fig. 41). Cela implique que (i) soit les différents types de chondres n'ont pas tous été en contact avec la même phase gazeuse, i. e. qu'il existe plusieurs phases gazeuses avec des compositions chimiques différentes, (ii) soit que les vitesses de diffusion des éléments n'étaient pas les mêmes d'un chondre à l'autre, en raison par exemple de différences de compositions chimiques, (iii) soit les deux. Dans tout les cas, pour le modèle présenté ici, cela implique que la composition du liquide volatil sera éventuellement différente d'un type de chondre à un autre.

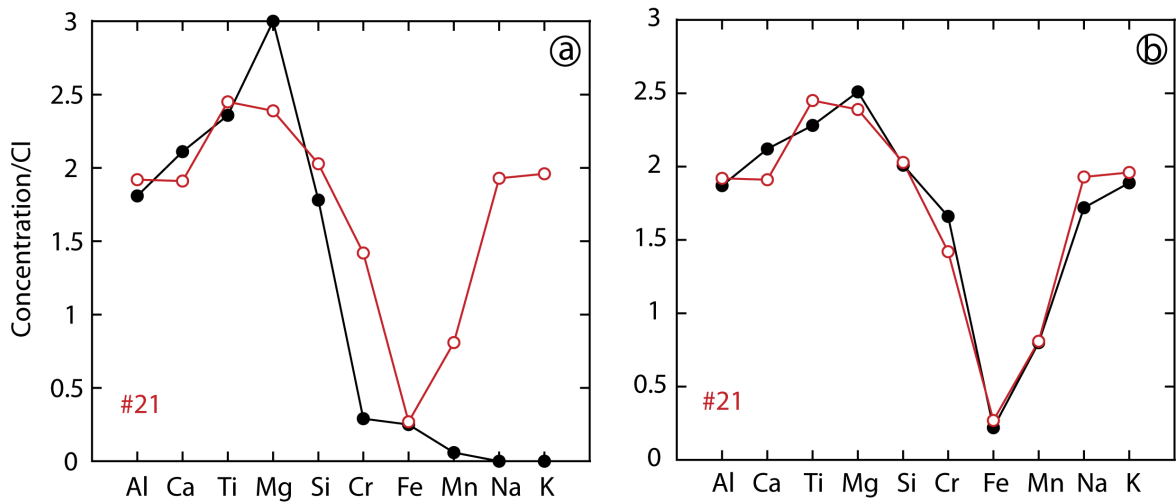


Fig. 42 : Exemple de profil de composition chimique calculée avec le modèle (noir) pour le chondre de type I PO, #21 (rouge), a) avant et b) après l'addition de la composante liquide volatil.

Les compositions chimiques ajustées pour les composants réfractaires et le métal, sont systématiquement appauvries en volatils et modérément volatils (Si, Cr, Mn, Na et K) et enrichies en Mg (Fig. 42a). Cela implique donc nécessairement que ces composants réfractaires et métalliques, hérités des précurseurs des chondres, ont interagi avec un composant, vraisemblablement une phase gazeuse, riche en volatils. Dans le cas de l'exemple de la figure 42, l'ajout d'environ 13% de liquide volatil adapté aux chondres de type IA (Tableau 7) permet de reproduire assez fidèlement le profil de composition chimique du chondre.

Tableau 7 : Composition chimique des liquides volatils en wt% et normalisée aux CI pour chaque type de chondre.

Elément	Liquide volatil I PO		Liquide volatil II PO		Liquide volatil I POP – II POP		Liquide volatil I PP – II PP	
	% wt	Normalisé aux CI	% wt	Normalisé aux CI	% wt	Normalisé aux CI	% wt	Normalisé aux CI
Al	0	0	0	0	0	0	0	0
Ca	0	0	0	0	0	0	0	0
Ti	0	0	0	0	0	0	0	0
Mg	0	0	0	0	0	0	0	0
Si	39,5	3,7	40,1	3,75	43,6	4,08	44,6	4,18
Cr	2,9	10,79	1,45	5,47	1,4	5,36	1,2	4,62
Fe	0	0	0	0	0	0	0	0
Mn	1,1	5,68	1,7	8,64	1,2	6,2	0,64	3,3
Na	8,9	13,23	6,7	13,41	2,1	4,16	1,3	2,56
K	0,8	14,54	0,8	15,35	0,24	4,41	0,17	3,13

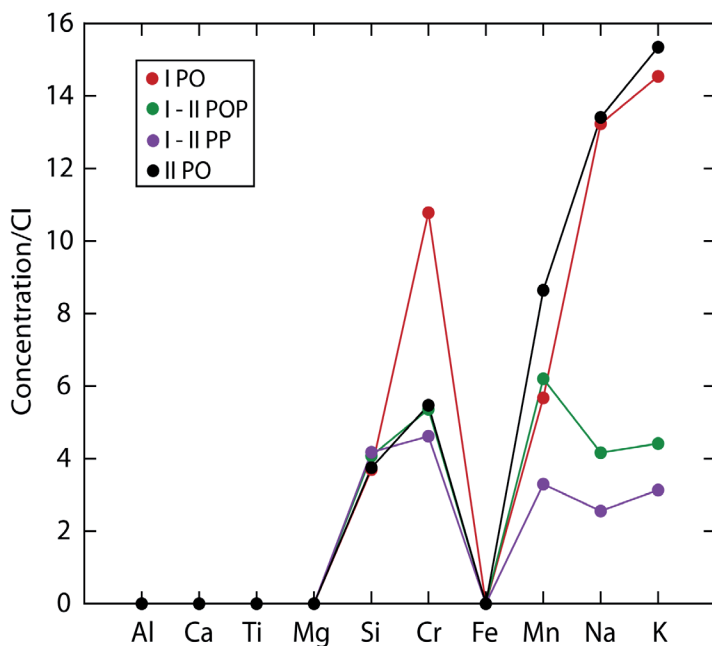


Fig. 43 : Profils de composition chimique des liquides volatils condensés à partir de la phase gazeuse pour les différents types de chondres.

Les résultats du modèle indiquent que 4 liquides volatils (1 pour les types I PO, 1 pour les types II PO, 1 pour les types I POP et II POP et le dernier pour les types I PP et II PP) de compositions chimiques différentes sont nécessaires pour expliquer les profils de composition des chondres (Tableau 7). Les liquides volatils des types I PO et II PO sont caractérisés par de fortes concentrations en Na et K et de plus faibles concentrations en Si (Tableau 7, Fig. 43). En outre, celui des types I PO est très enrichi en Cr. Le liquide volatil des types I POP et II POP ainsi que celui des types I PP et II PP sont pour leur part caractérisés par de plus faibles concentrations en Na et K et à l'inverse de plus fortes concentrations en Si (Tableau 5, Fig. 43). De façon générale, la concentration en Si augmente progressivement du liquide des types I PO vers le liquide des types I PP et II PP (Tableau 7).

3.4. Discussion

3.4.1. Profils de composition des traces et des terres rares

Afin de tester *a posteriori* la validité du modèle, les profils de composition de certains éléments traces réfractaires ou sidérophiles et de terres rares ont été calculés à partir des compositions des précurseurs réfractaires (Tableau 6) et de leurs différentes proportions dans les chondres du modèle, puis comparés aux données mesurées dans des chondres de Semarkona (Fig. 44, Grossman et Wasson, 1983, 1984). Cette comparaison montre qu'en moyenne les concentrations en traces réfractaires et en terres rares calculées à partir du modèle et mesurées dans les chondres sont semblables (Fig. 44). Ce résultat positif valide vraisemblablement l'approche générale qui est faite de la formation des chondres porphyriques au travers du modèle proposé. Néanmoins, si on s'intéresse aux concentrations des éléments traces sidérophiles (Co et Ni) qui sont portés par le métal, on s'aperçoit le modèle prédit des concentrations plus élevées en moyenne d'un facteur $\sim 5-7$, notamment pour les chondres riches en Fe (type II) par rapport aux valeurs mesurées (Fig. 44). Or dans le modèle, il

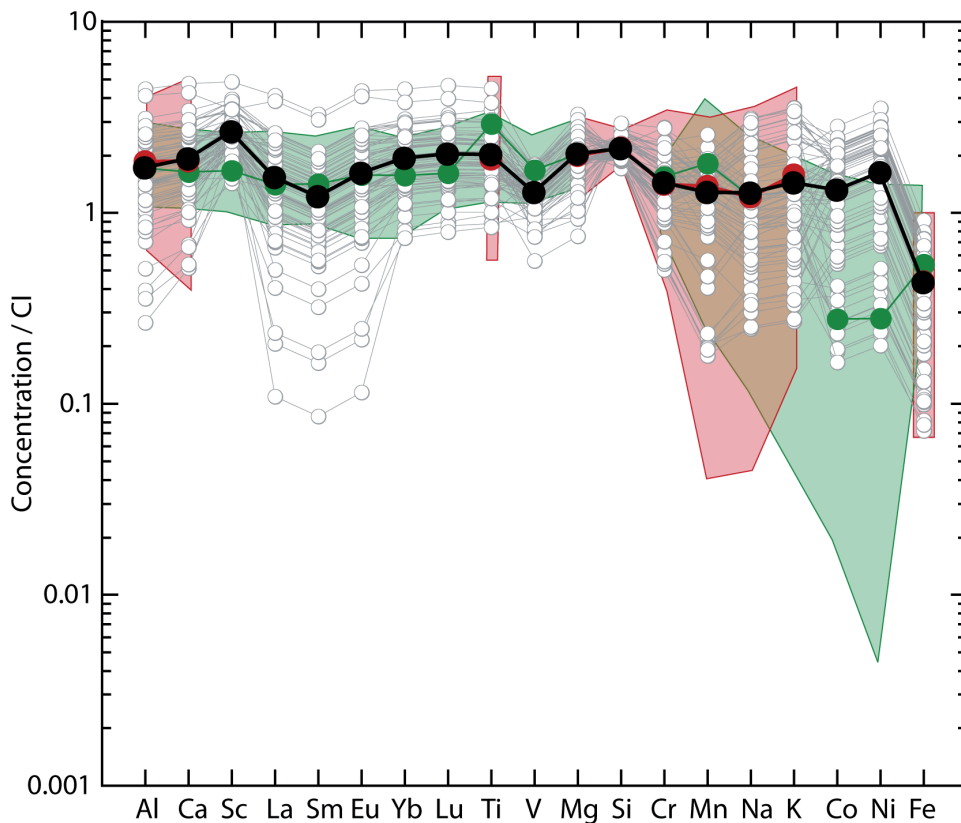


Fig. 44 : Profils de concentration des éléments majeurs, traces et terres rares déterminés soit à partir du modèle, soit mesurés pour les chondres. Les ronds gris correspondent aux profils individuels modélisés pour chaque chondre et les ronds noirs à la moyenne de tous les chondres du modèle. En rouge, la gamme et la moyenne des concentrations en éléments majeurs mesurées dans les chondres utilisés pour le modèle (Jones et Scott, 1989; Jones 1990, 1994, 1996; Tachibana et al., 2003; Chap. 5, Tableau 1) et en vert, la gamme et la moyenne des concentrations en éléments majeurs, traces et terres rares mesurées dans des chondres de Semarkona (Grossman et Wasson, 1983, 1985).

est considéré que tout le fer d'un chondre provient du métal hérité des précurseur. Cependant étant donnée que Fe est un élément modérément volatil, il est tout à fait concevable qu'une partie du fer des chondres (notamment des types II) soit apportée lors de l'interaction avec la phase gazeuse. De ce fait, la contribution réelle du métal pourrait être moindre.

3.4.2. A propos de la composition chimique de la phase gazeuse

Dans le modèle de formation des chondres, les paramètres de l'interaction avec la phase gazeuse (e.g. les constantes de réaction, les compositions chimiques du ou des gaz et des chondres, les vitesses de diffusion des éléments, la durée de l'interaction ...) sont modélisés sous la forme d'un ajout d'une quantité plus ou moins importante, selon les chondres, de liquide volatil de composition chimique variable selon les types de chondres. La différence de quantité de liquide volatil ajoutée entre deux chondres traduit la différence de la durée d'interaction entre la phase gazeuse et les mésostases des deux chondres, tous les autres paramètres étant par ailleurs constants.

La quantité d'un élément pouvant entrer dans la mésostase d'un chondre par interaction avec une phase gazeuse est contrôlée par un paramètre cinétique correspondant à la vitesse de diffusion de l'élément (qui dépend entre autre de la composition du gaz et de la mésostase) et par la constante d'équilibre de la réaction chimique associée. Par exemple pour Si, la réaction chimique et la constante d'équilibre sont les suivantes :



avec P_{SiO} et P_{O_2} les pressions partielles de SiO et O_2 dans le gaz, X_{SiO_2} la concentration de SiO_2 dans la mésostase et γ_{SiO_2} le coefficient d'activité de SiO_2 dans la mésostase. On voit bien au travers de cet exemple que la constante d'équilibre est sensible à la fois à la composition du gaz et à celle de la mésostase. D'autre part, la vitesse de diffusion et la constante d'équilibre dépendent également d'un paramètre physique très important qui est la température. Connaissant X_{SiO_2} et K et pour certaines gammes de compositions de liquide, γ_{SiO_2} , il est possible d'inverser l'équation ci-dessus pour calculer la P_{SiO} en fonction des autres paramètres. De la même manière, il est théoriquement possible de calculer la P_{Na} , la P_{K} , (etc...) dans la phase gazeuse.

Ainsi, les 4 compositions différentes de liquides volatils utilisées dans le modèle peuvent être, quant à elles, expliquées selon deux scénarios extrêmes :

- Soit les chondres ont tous été en interaction avec le même gaz auquel cas les différences de composition des liquides volatils sont contrôlées par la variabilité de composition chimique des

précurseurs des chondres. Cependant, le nombre limité de compositions de liquides volatils différentes semble assez peu compatible avec la diversité de composition des précurseurs des chondres (e.g. Fig. 39). D'autre part, les résultats du modèle montrent que, par exemple, les précurseurs des types I POP et II POP ont des compositions très différentes (notamment en ce qui concerne la quantité de métal), ce qui est incompatible avec le fait qu'ils aient le même liquide volatil.

- Soit les chondres ont initialement tous la même composition ce qui signifie qu'ils ont été en interaction avec 4 gaz de compositions différentes. Dans ce cas de figure, les compositions des liquides volatils renseigneraient directement sur les compositions des gaz. Néanmoins, les résultats du modèle montrent qu'il existe une grande variabilité de composition pour les précurseurs des chondres (Fig. 39).

Vraisemblablement, les différences de textures et de compositions des chondres porphyriques sont le résultat à la fois de la variabilité de composition des précurseurs des chondres, de la composition de la phase gazeuse avec laquelle ils interagissent et de la durée de cette interaction.

3.4.3. Une filiation entre les différents types de chondres?

La distribution des concentrations globales en Fe mesurées dans les chondres des chondrites ordinaires Bishunpur et Semarkona montre que ~ 70% des chondres de type I ont moins de 4% de Fe tandis que ~ 70% des chondres de type II ont plus de 10% de Fe (Fig. 45). Les résultats du modèle qui montrent que la formation des chondres de type II nécessite systématiquement plus de fer métal que celle des types I, sont en parfait accord avec cette distribution des concentrations en Fe. Si cette classification des chondres sépareit uniquement les chondres en fonction du degré d'oxydation du Fe, i.e. Fe⁰ ou Fe²⁺, alors statistiquement de telles différences de distribution ne devrait pas exister. Les expériences d'oxydation d'analogues de chondres de type I PO ont clairement montré que suivant la quantité initiale de Fer métal, un chondre pouvait présenter une texture finale soit de type I soit de type II. Ainsi, si la classe des chondres de type II n'est constituée effectivement que de chondres oxydés, la classe des chondres de type I est constituée de chondres réduits mais aussi de chondres oxydés contenant initialement peu ou pas de fer métal. D'autre part, en suivant la même logique, il n'est pas surprenant de constater que les seuls chondres de type I qui contiennent parfois d'importantes quantités de fer métal, i.e. qui sont réellement réduits, sont systématiquement des PO. En revanche, les type I POP et surtout PP contiennent peu ou pas de fer métal et leurs olivines et leurs pyroxènes sont en règle générale plus riches en FeO que les olivines des types I PO. Cela laisse penser que les chondres de type I POP et I PP sont plus oxydés que les chondres de type I PO.

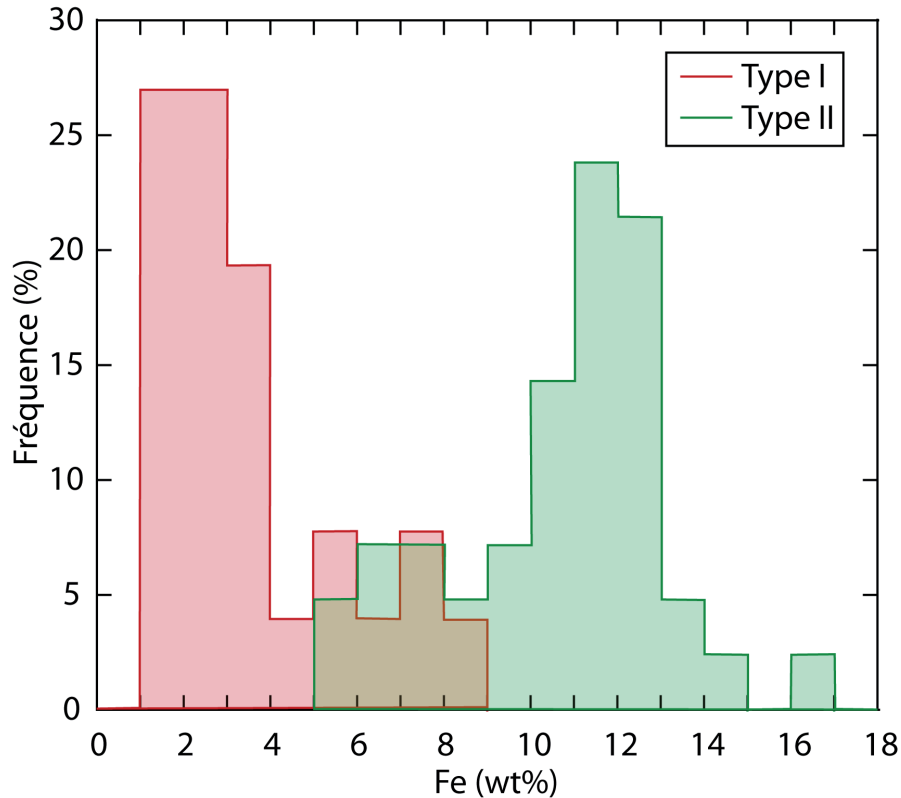


Fig. 45 : Distribution des concentrations globales de Fe dans les chondres de type I (n = 26) et de type II (n = 42) de Semarkona et Bishunpur (Jones et Scott, 1989; Jones 1990, 1994, 1996; Tachibana et al., 2003; Chap. 5, Tableau 1).

Toutes ces observations montrent encore une fois que la barrière entre les chondres de type I et les chondres de type II est très ténue et qu'il existe très vraisemblablement des liens génétiques entre ces deux types de chondres. De plus, ces observations sont cohérentes avec les résultats des expériences d'oxydation et du modèle de formation des chondres qui montrent qu'à partir de chondres réduits et plus ou moins riches en Fe^0 , de type I PO, il est possible d'obtenir par oxydation et interaction plus ou moins poussée avec une phase gazeuse riche en volatils tous les autres types de chondres.

Dans le modèle de formation des chondres, les chondres de type II sont ceux qui, de façon générale, ont le plus interagi avec la phase gazeuse (Fig. 40). Ainsi, le fait que ces chondres soient systématiquement plus enrichis en Fe peut provenir pour partie d'une contribution plus importante de la phase gazeuse dans le budget global de Fe (Fig. 45).

Une représentation graphique des rapports Mg/Si en fonction des rapports Al/Si permet de visualiser très facilement les compositions des composantes réfractaires (forstérite et liquide réfractaire) et volatils (liquide volatil ou phase gazeuse) du modèle de formation des chondres (Fig. 46). Cela permet de tester différents mélanges de ces composantes et de les comparer aux valeurs réelles mesurées dans les chondres porphyriques des chondrites ordinaires Semarkona et Bishunpur. Ainsi,

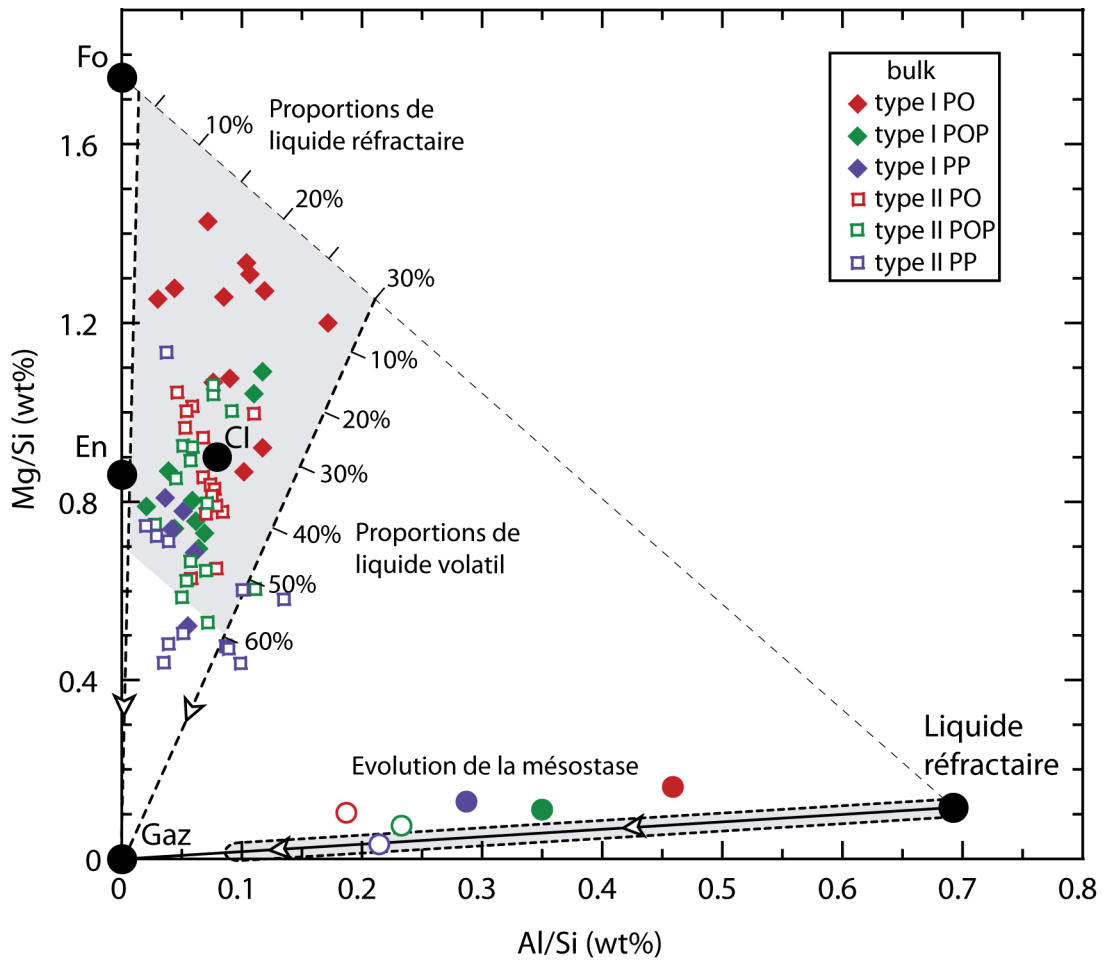


Fig. 46 : Evolution du rapport Mg/Si en fonction du rapport Al/Si mesuré dans les chondres de Semarkona et de Bishunpur. Les compositions moyennes des mésostases des différents types de chondres de Semarkona et de Bishunpur sont représentées par les figurés ronds, colorés, selon la même logique que pour les figurés des compositions globales. Les compositions de la forstérite (Fo), du liquide volatil (i. e. le gaz) et du liquide réfractaires utilisés dans le modèle sont représentées par les ronds noirs. Les compositions des Cl et de l'ensatite (En) sont également représentées. Les enveloppes grisées représentent la gamme des proportions de liquides réfractaires héritées des précurseurs et de liquides volatils provenant du gaz, calculées à partir du modèle (cf. Fig. 39) et la gamme des compositions de la mésostase (i. e. liquide réfractaire + liquide volatil) des chondres calculées à partir du modèle (cf. Fig. 39, 40). Les droites pointillées et fléchées représentent les trajets d'évolution théoriques des compositions globales des chondres par l'interaction avec la phase gazeuse, en fonction des proportions initiales de forstérite et de liquide réfractaire. La droite continue et fléchée représente quant à elle le trajet d'évolution théorique des compositions des mésostases des chondres au cours de l'interaction avec la phase gazeuse. Les compositions globales des chondres proviennent de Jones et Scott (1989), Jones (1990, 1994, 1996), Tachibana et al. (2003) et de cette thèse (Chap. 5, Tableau 1). Les compositions moyennes des mésostases des différents types de chondre ont été calculées à partir des données de Jones et Scott (1989), Jones (1990, 1994, 1996), Alexander (1994) et de cette thèse.

les compositions chimiques des différents types de chondres s'expliquent très bien par des mélanges entre les trois pôles forstérite, liquide réfractaire et gaz, et cela dans les gammes de proportions prévues par le modèle, i.e. avec des proportions de liquide réfractaire variant entre $\sim 1\%$ et $\sim 30\%$ et des proportions de liquide volatil variant entre $\sim 0\%$ et $\sim 60\%$ (Fig. 46). La droite de mélange entre la forstérite et le liquide réfractaire marque la limite au delà de laquelle il n'est pas possible de trouver de composition de chondre car celles-ci seraient trop réfractaires. D'autre part, cette visualisation

montre que même les chondres de type I PO les plus réfractaires ont interagi avec la phase gazeuse.

L'augmentation de l'interaction avec la phase gazeuse lorsque l'on passe des PO vers les POP est bien visible et se traduit par une augmentation en Si de la composition globale des chondres. Cette augmentation de l'interaction avec la phase gazeuse se traduit également d'un point de vue pétrographique avec la cristallisation d'orthopyroxène dans les chondres POP et PP.

Les compositions moyennes des mésostases des différents types de chondres sont également cohérentes avec un modèle de mélange entre le liquide réfractaire et la phase gazeuse et traduisent également l'augmentation générale de l'interaction avec la phase gazeuse lorsque l'on passe des PO vers les POP et les PP et des types I vers les types II (Fig. 46).

Finalement, la très bonne concordance entre les résultats du modèle de formation des chondres et les mesures de compositions chimiques des chondres laisse supposer que l'hypothèse émise initialement concernant l'existence d'une filiation entre les différents types de chondres est valide.

4. Conclusion

Au regard :

- De l'ensemble des résultats d'expérimentation présentés dans ce chapitre qui montrent que la formation des chondres de type II PO par l'oxydation des chondres de type I PO est un processus tout à fait envisageable.
- Des résultats du modèle de formation des chondres qui indiquent que l'ensemble des compositions chimiques des chondres peuvent être reproduite par l'interaction de précurseurs réfractaires proches des chondres de type I PO avec une phase gazeuse riche en éléments volatils.
- Des résultats de la littérature montrant l'existence de similitudes chimiques et isotopiques entre les forstérites reliques des chondres de type I et de type II (e.g. Weinbruch et al., 1993; Pack et al., 2004, 2005; Libourel et Krot., 2007, Ruzicka et al., 2007; Chaussidon et al., 2008; Connolly et Huss, 2010), ainsi que l'existence d'interaction entre les chondres et la phase gazeuse lors de leur formation (e.g. Matsunami, 1993; Hewins et al., 1998; Nagahara et al., 1999; Tissandier et al., 2002; Yu et al. 2003; Libourel et al., 2003; Krot et al., 2004; Chaussidon et al., 2008).

Il nous est possible de proposer que le schéma de filiation des chondres suivant :

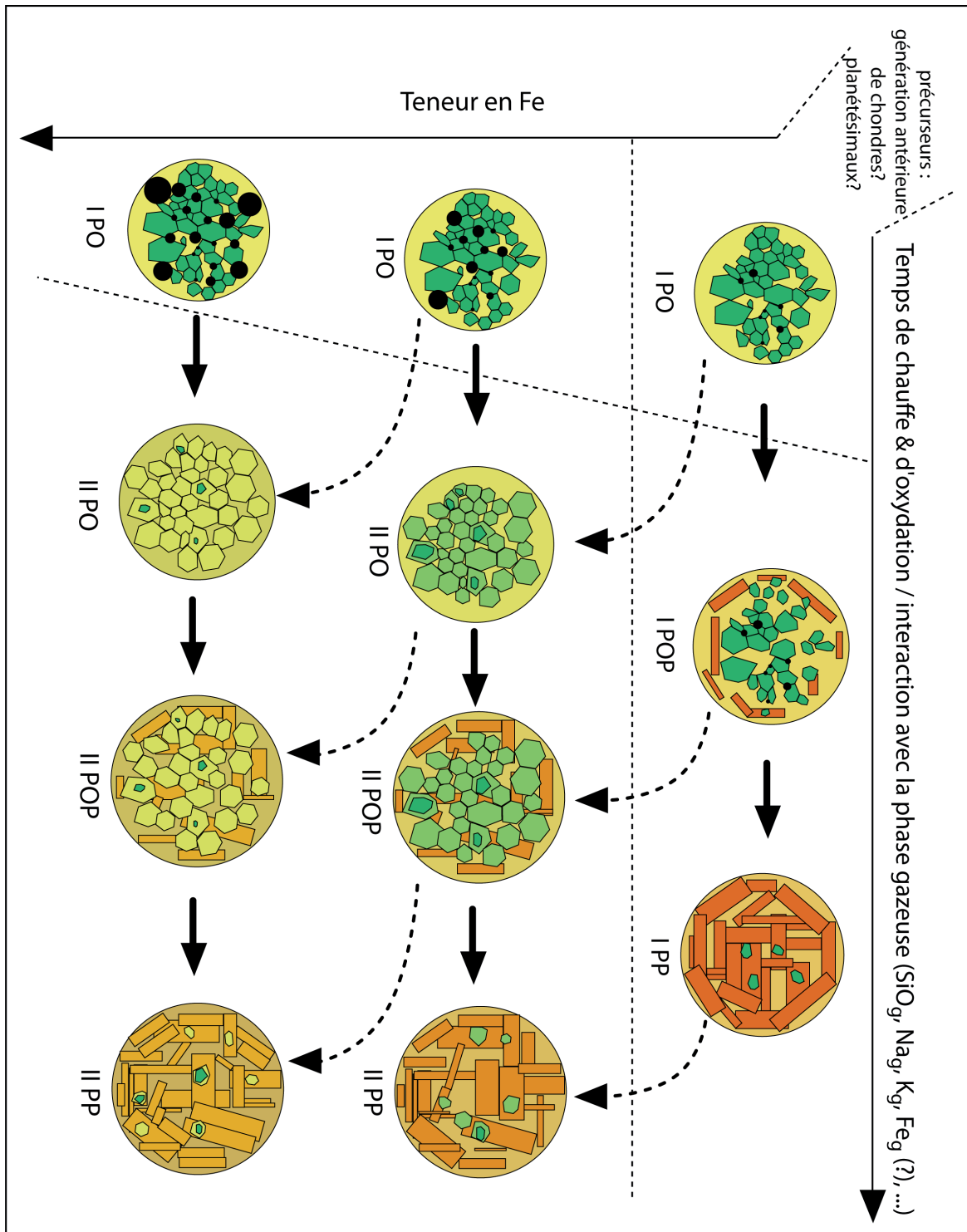


Fig. 47 : Schéma récapitulatif de la filiation entre les différents types de chondres lors de leur formation. Les flèches horizontales indiquent la filiation de PO vers PP en fonction de la teneur en Fe métal des précurseurs et du degré d'interaction avec la phase gazeuse tandis que les flèches pointillées indiquent la filiation qu'il est possible de faire si les chondres s'enrichissent en FeO au cours de leur interaction avec la phase vapeur. Les droites pointillées marquent la transition entre les types I et les types II.

S'il est exact, ce modèle de filiation présente plusieurs implications de premier ordre :

- Les chondres porphyriques montrent un continuum de compositions chimiques et de textures qui va d'une part des chondres réduits, plus ou moins riches en Fe métal, vers les chondres oxydés, enrichis en FeO, et d'autre part des textures PO vers les textures PP. Ce nouveau modèle rend caduque la classification arbitraire entre types I et type II car celle-ci n'a au final pas de réel fondement scientifique. A ce titre, la classification texturale qui est révélatrice du degré d'interaction avec le gaz semble plus pertinente que la classification chimique basée sur l'abondance de FeO.

- A l'inverse des modèles classiques de formation des chondres qui prévoient une formation des chondres de type I et de type II dans des régions distinctes du disque d'accrétion, présentant des environnements soit réducteurs soit oxydants, ce nouveau modèle implique une unicité de lieu de formation pour les chondres de type I et les chondres de type II dans un même environnement oxydant puisque la nature «réduite» des chondres de type I PO est héritée des précurseurs.

- Ce modèle nécessite des régimes thermiques qui se maintiennent suffisamment longtemps à haute température, e.g. au maximum quelques dizaines de minutes à 1650°C, pour permettre l'oxydation et l'interaction avec le gaz, avant une trempe rapide permettant de figer la composition et la texture du chondre. Le corollaire est (i) qu'il ne peut pas s'agir de processus thermique de type «flash heating» et (ii) que la formation des chondres s'effectue nécessairement dans un environnement suffisamment dense en gaz et en poussière afin d'éviter les fractionnements isotopiques liés à l'évaporation et de permettre le maintien d'une température élevée et sub-isotherme pendant le temps nécessaire à leur formation.

- L'absence de corrélation entre les âges ^{26}Al de formation des chondres et leur composition chimique s'explique parfaitement avec ce processus puisque le temps de formation des différents types de chondres à partir des précurseurs réfractaires est instantané (i.e. quelques dizaines de minutes) à l'échelle du chronomètre ^{26}Al dont la précision maximale est de l'ordre de 50 000 ans. D'autre part, ce modèle est parfaitement compatible avec les pics de formation des chondres mis en évidence avec les âges ^{26}Al (Villeneuve et al., 2009).

Conclusions et Perspectives

Après un rappel des principaux résultats et enseignements sur la formation des chondres, cette conclusion générale s'appliquera à souligner les perspectives de recherche ouvertes par cette thèse.

Au cours de la première partie de cette thèse, un protocole de mesure isotopique *in situ* par sonde ionique des isotopes du Mg et de l'Al a été développé. La très grande précision analytique apportée par ce protocole a, pour la première fois, permis une utilisation dans des phases minérales de chondres pauvres en Al (e.g. avec une précision de l'ordre de $\pm 0,05$ ‰ dans l'olivine) et ainsi de caractériser avec exactitude à la fois la pente de l'isochrone, i.e. le rapport $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ initial lors de la formation du chondre, mais aussi l'ordonnée à l'origine, i.e. la composition isotopique initiale du Mg ($\delta^{26}\text{Mg}^*_0$) lors de la formation du chondre.

L'application de cette méthodologie aux chondres de la chondrite ordinaire Semarkona a permis, entre autres choses, (i) de démontrer que l' ^{26}Al et les isotopes du Mg étaient répartis de façon homogène à $\pm 10\%$ dans le système solaire interne lors de la formation des CAIs d'Allende, et ce faisant, de valider l'utilisation du système isotopique ^{26}Al - ^{26}Mg en tant que géochronomètre, (ii) de révéler l'existence de pics de formation des chondres débutant $\sim 1,2$ Ma après les CAIs et se prolongeant pendant ~ 3 Ma, impliquant un mécanisme de fusion des chondres cyclique et persistant sur plusieurs Ma, et dont les variations d'intensité reflètent soit des fluctuations de l'efficacité du mécanisme de formation des chondres, soit la mauvaise préservation des chondres dans le disque avant leur accréation aux corps parents et (iii) de prouver qu'il n'existe pas de corrélation évidente entre les

âges ^{26}Al de formation des chondres et leurs textures ou leurs compositions chimiques.

Dans un deuxième temps, afin de mieux comprendre l'origine des olivines magnésiennes reliques des chondres ferromagnésiens, nous nous sommes attachés à mesurer précisément leurs compositions isotopiques en Mg. Les résultats montrent des âges modèles de formation pour les olivines reliques des chondres de type I d'Allende aussi vieux que $\sim 0,15$ Ma après la formation des CAIs d'Allende, ce qui d'une part, indique que ces olivines ont bien été formées avant leurs chondres hôtes et qu'à ce titre il s'agit bien de reliques héritées des précurseurs des chondres, et d'autre part, dans le cas d'une origine planétaire de ces olivines, implique l'existence de planétésimaux différenciés ou en cours de différenciation concomitamment à la formation des CAIs. La mesure des compositions isotopiques du Mg des olivines de la pallasite San Carlos confirme l'existence de planétésimaux différenciés très tôt dans l'histoire du Système Solaire, i.e. $\sim 0,18$ Ma après les CAIs d'Allende. Finalement cette étude suggère que l'accrétion et la différenciation de certains planétésimaux précède la formation de la majorité des chondres et est contemporaine voire antérieure à la formation des CAIs de type B d'Allende.

Dans la seconde partie de cette thèse, nous nous sommes intéressés aux relations de filiations et de chronologie entre les différents types de chondres porphyriques. Au moyen d'une série d'expériences nous montrons qu'il est aisé de former des analogues de chondres de type II PO par l'oxydation à haute température d'analogues de chondres de type I PO. Les résultats indiquent qu'en fonction du temps de chauffe et de l'abondance initiale en fer métal, il est possible de reproduire tous les intermédiaires texturaux entre les chondres de type I PO, riches en olivines magnésiennes, et les chondres de type II PO, présentant parfois des reliques d'olivines magnésiennes au cœur des surcroissances de fayalite. Le processus de formation des chondres de type II PO semble assez rapide puisque suivant la température de chauffe (de 1780°C à 1500°C), la résorption complète d'une olivine magnésienne relique de $100\ \mu\text{m}$ par diffusion de FeO se produit entre quelques dizaines de minutes et quelques heures. D'autre part, ces résultats permettent de montrer que les profils de diffusion des éléments entre les olivines reliques et les surcroissances de fayalite peuvent être expliqués par des régime thermiques sub-isothermes suivi d'une trempe rapide. Un tel processus de formation s'avère donc incompatible avec des mécanismes de chauffe de type «flash heating» et de refroidissement rapide des chondres mais suggère au contraire des régimes thermiques avec des taux de refroidissement lents, le tout dans un environnement suffisamment riche en gaz pour éviter l'évaporation des éléments les moins réfractaires.

Dans un second temps, à partir d'un modèle de formation des chondres nous montrons que

les compositions chimiques en majeurs et en traces des différents types de chondres porphyriques peuvent être reproduites par le mélange de trois phases réfractaires solides, héritées des précurseurs des chondres, i.e. olivine réfractaire, liquide réfractaire et métal, et d'une phase gazeuse riche en éléments volatils (SiO(g), Na(g), K(g), Fe(g)?). Les résultats de ce modèle montrent (i) que les gammes d'abondances des phases réfractaires sont similaires d'un type de chondre à un autre, (ii) que les chondres de type II sont systématiquement plus enrichis en Fe que les chondres de type I et (iii) que l'interaction avec la phase gazeuse augmente des chondres PO vers les chondres PP d'une part et des chondres de type I vers les chondres de type II d'autre part. Ces résultats nous ont conduit à proposer un modèle de filiation entre les chondres selon lequel en fonction de la quantité initiale de fer métal et de l'interaction avec la phase gazeuse oxydante et riche en volatils (et donc de la durée de chauffe), il est possible de former tous les types de chondres porphyriques à partir de précurseurs réfractaires et métalliques, proches des chondres de type I PO. Ainsi, il existe une chronologie «pétrographique» des chondres avec les chondres de type I PO qui sont les plus «primitifs», dans le sens où la signature des précurseurs y est la mieux préservée, et les chondres de type II PP qui de par leur interaction plus poussée avec la phase gazeuse, sont les plus «évolués».

Les résultats de cette thèse nous apportent plusieurs enseignements majeurs sur la formation des chondres, mais ils soulignent également toute la complexité de ces petites sphérules ferro-silicatées dont l'histoire est bien loin d'être complètement écrite :

- La plupart des chondres porphyriques ont un héritage commun de précurseurs réfractaires (olivine magnésienne + liquide riche en éléments réfractaires) et métalliques (Fe-Ni métal) de compositions chimiques similaires mais dont les proportions sont variables d'un chondre à un autre. L'origine nébulaire ou planétaire de ces précurseurs demeurent controversée, mais on peut néanmoins souligner que plusieurs études pétrographiques, chimiques et isotopiques indiquent plus volontiers une origine planétaire de ces précurseurs. Si cette origine était d'aventure confirmée, elle devrait nous amener à reconsidérer la nature des liens entre les chondres et les planétésimaux.

- Ces assemblages de précurseurs réfractaires et métalliques peuvent, à la faveur d'un événement thermique, interagir avec un gaz riche en éléments volatils et ainsi former des chondres. De ce fait, toute la variabilité de compositions chimiques et de textures existante dans les chondres porphyriques résulte à la fois de la variabilité des proportions initiales des différents précurseurs et du degré d'interaction avec la phase gazeuse. Ce processus induit un rapport de filiation entre tous les types de chondres porphyriques. Le corollaire de ce résultat est qu'il y a unicité de lieu de formation pour les chondres réduits et oxydés dans un même environnement oxydant.

• D'un point de vue plus factuel, la classification chimique type I / type II n'a plus de réelle signification puisque les chondres porphyriques montrent un continuum de compositions chimiques et de textures allant des chondres réduits aux chondres oxydés et des PO vers les PP. En revanche, la classification texturale garde toute sa signification puisqu'elle est révélatrice du degré d'interaction avec la phase gazeuse.

• Un régime thermique bipartite, d'abord isotherme ou sub-isotherme et ensuite de trempe, est le plus cohérent avec le modèle de filiation des chondres porphyriques. Ce régime induit des cinétiques de formation des chondres bien plus rapides que les régimes thermiques classiques inhérents au modèle de «flash heating», i.e. au maximum quelques dizaines de minutes à 1650°C. Néanmoins, cela pose la question de l'environnement de formation des chondres puisque celui-ci devra nécessairement présenter des densités de gaz et de poussières supérieures aux valeurs canoniques pour empêcher une dissipation trop rapide de la chaleur et permettre un tel régime thermique.

• Etant donné leur complexité, la datation isotopique des chondres est un exercice difficile mais pas impossible. Ainsi, la chronologie de formation des chondres fondée sur l'utilisation du radioisotope ^{26}Al montre que celle-ci débute $\sim 1,2$ Ma après les CAIs et se prolonge sur ~ 3 Ma et présente des pics d'intensités d'âges de formation, tandis que les âges de formation des olivines magnésiennes reliques héritées des précurseurs sont, pour certains, concomitants des âges de formation des CAIs. Ces âges de formation des chondres et des olivines reliques soulèvent plusieurs questions cruciales comme par exemple : (i) Quelle est la nature des processus de préservation des chondres dans le disque protoplanétaire avant leur accréation aux corps parents des chondrites? (ii) Quelle est la signification des pics d'intensité d'âges de formation des chondres? (iii) Ou encore, quelle est la nature des liens entre les chondres, les olivines reliques et les planétésimaux différenciés?

Au travers d'une approche à la fois géochimique et expérimentale, les résultats de cette thèse ont permis de répondre à un certain nombre de questions concernant la chronologie de formation des chondres et la nature et l'origine de leurs précurseurs. A la lumière des conclusions de cette thèse, il est possible de dégager plusieurs axes de recherche susceptibles d'améliorer notre compréhension des processus de formation des premiers solides et du Système Solaire.

Ainsi, l'application du protocole analytique de mesure des isotopes du Mg et de l'Al aux chondres d'autres classes de météorites ainsi qu'aux CAIs permettrait d'affiner considérablement la chronologie de formation de ces objets et par là même de préciser leurs processus de formation, e.g. en déterminant la fréquence et l'intensité des pics de formation des chondres et la durée de forma-

tion de tel ou tel type de CAI. Ensuite, il me paraît essentiel de coupler les mesures de compositions isotopiques du Mg des olivines réfractaires des chondres porphyriques avec celle des compositions isotopiques de l'oxygène car cette double caractérisation isotopique est susceptible d'apporter des renseignements cruciaux à la fois sur l'âge et sur l'origine de ces précurseurs reliques des chondres.

Enfin, la démonstration de l'homogénéité de la distribution de l' ^{26}Al dans le système solaire va permettre de faire progresser les modèles sur l'origine des radioactivités éteintes, i.e. par irradiation du jeune Soleil ou par injection à partir d'une ou plusieurs supernovae, et sur les mécanismes d'homogénéisation de la matière dans le disque d'accrétion. En effet, ce résultat implique (i) une homogénéisation rapide et efficace dans le système solaire interne, (ii) une production suffisamment efficace ou une injection suffisamment importante pour produire un rapport $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ de $\sim 5 \times 10^{-5}$ dans l'ensemble du Système Solaire interne et (iii) l'absence de production ou une d'injection significative d' ^{26}Al après le temps «zéro» défini par l'isochrone en roche totale des CAIs.

Le développement de protocoles expérimentaux sous atmosphère oxydante et riche en éléments volatils et modérément volatils, avec le nébulotron, serait souhaitable afin de mieux encadrer les paramètres physiques (temps, température) et chimiques (redox, composition du gaz) présidant à la formation des chondres à partir de précurseurs réfractaires et volatils. Cela devrait permettre l'amélioration du modèle de filiation et de chronologie entre les différents types de chondres ainsi qu'une meilleure compréhension des processus et des environnements de formation des chondres.

Bibliographie

- Agee, C.B., Walker, D., 1990. Aluminium partitioning between olivine and ultrabasic silicate liquid to 6GPa, *Contributions to Mineralogy and Petrology* 105, 243-254.
- Albarède, F., 2003. *Geochemistry: An Introduction*, Cambridge University Press, Cambridge
- Alexander, C.M.O.D., 1994. Trace Element Distributions within Ordinary Chondrite Chondrules: Implications for Chondrule Formation Conditions and Precursors, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 58, 3451-3467.
- Alexander, C.M.O.D., 1996. Recycling and volatile loss in chondrule formation, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), *International conferences: Chondrules and the Protoplanetary Disk*, Cambridge University Press, pp. 233-241
- Alexander, C.M.O.D., Grossman, J.N., Ebel, D.S., Ciesla, F.J., 2008. The Formation Conditions of Chondrules and Chondrites, *Science* 320, 1617-1619.
- Alexander, C.M.O.D., Grossman, J.N., Wang, J., Zanda, B., Bourot-Denise, M., Hewins, R.H., 2000. The Lack of Potassium-Isotopic Fractionation in Bishunpur Chondrules, *Meteoritics and Planetary Science* 35, 859-868.
- Alexander, C.M.O.D., Hutchison, R., Barber, D.J., 1989. Origin of Chondrule Rims and Interchondrule Matrices in Unequilibrated Ordinary Chondrites, *Earth and Planetary Science Letters* 95, 187-207.
- Alexander, C.M.O.D., Wang, J., 2001. Iron Isotopes in Chondrules: Implications for the Role of Evaporation during Chondrule Formation, *Meteoritics and Planetary Science* 36, 419-428.
- Allende Prieto, C., Lambert, D.L., Asplund, M., 2002. A reappraisal of the solar photospheric C/O ratio, *Astrophysical Journal* 573, 137.
- Amelin, Y., 2008. U-Pb ages of angrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 72, 221-232.
- Amelin, Y., Krot, A., 2007. Pb isotopic age of the Allende chondrules, *Meteoritics & Planetary Science* 42, 1321-1335.
- Amelin, Y., Krot, A.N., Hutcheon, I.D., Ulyanov, A.A., 2002. Lead isotopic ages of chondrules and calcium-aluminum-rich inclusions, *Science* 297, 1678-1683.
- Amelin, Y., Wadhwa, M., Lugmair, G.W., 2006. Pb-isotopic dating of meteorites using ^{202}Pb - ^{205}Pb double spike: comparison with other high-resolution chronometers, *LPSC XXXVII # 1970*.
- Aschwanden, M.J., 2007. The Sun, in: L.-A. McFadden, P.R. Weissman, T.V. Johnson (Eds.), *Encyclopedia of the Solar System*, Academic Press, pp. 71-98
- Baker, J., Bizzarro, M., Wittig, N., Connelly, J., Haack, H., 2005. Early planetesimal melting from an age of 4.5662 Gyr for differentiated meteorites, *Nature* 436, 1127-1131.
- Begemann, F., Ludwig, K.R., Lugmair, G.W., Min, K.W., Nyquist, L.E., Patchett, P.J., Renne, P.R., Shih, C.Y., Villa, I.M., Walker, R.J., 2001. Call for an Improved Set of Decay

- Constants for Geochemical Use, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 65, 111-121.
- Bejina, F., Sautter, V., Jaoul, O., 2009. Cooling rate of chondrules in ordinary chondrites revisited by a new geospeedometer based on the compensation rule, *Physics of the Earth and Planetary Interiors* 172, 5-12.
- Birck, J.L., Allègre, C.J., 1985. Evidence for the Presence of ^{53}Mn in the Early Solar System, *Geophysical Research Letters* 12, 745-748.
- Birck, J.L., Allègre, C.J., 1988. Manganese-chromium isotope systematics and the development of the early solar system, *Nature* 331, 579-584.
- Birck, J.L., Lugmair, G.W., 1988. Nickel and Chromium Isotopes in Allende Inclusions, *Earth and Planetary Science Letters* 90, 131-143.
- Bizzarro, M., Baker, J.A., Haack, H., 2004. Mg isotope evidence for contemporaneous formation of chondrules and refractory inclusions, *Nature* 431, 275-278.
- Bizzarro, M., Baker, J.A., Haack, H., 2005. Mg isotope evidence for contemporaneous formation of chondrules and refractory inclusions (vol 431, pg 275, 2004), *Nature* 435, 1280-1280.
- Bizzarro, M., Baker, J.A., Haack, H., Lundgaard, K.L., 2005. Rapid timescales for accretion and melting of differentiated planetesimals inferred from Al-26-Mg-26 chronometry, *Astrophysical Journal* 632, L41-L44.
- Bizzarro, M., Ulfbeck, D., Trinquier, A., Thrane, K., Connelly, J.N., Meyer, B.S., 2007. Evidence for a Late Supernova Injection of ^{60}Fe into the Protoplanetary Disk, *Science* 316, 1178-1181.
- Blander, M., Pelton, A., Jung, I.-H., Weber, R., 2004. Non-equilibrium Concepts Lead to a Unified Explanation of the Formation of Chondrules and Chondrites, *Meteoritics and Planetary Science* 39, 1897-1910.
- Blander, M., Unger, L., Pelton, A., Ericksson, G., 2001. Nucleation Constraints Lead to Molten Chondrule Precursors in the Early Solar System, *The Journal of Physical Chemistry B* 105, 11823-11827.
- Bockelee-Morvan, D., Gautier, D., Hersant, F., Hure, J.M., Robert, F., 2002. Turbulent radial mixing in the solar nebula as the source of crystalline silicates in comets, *Astronomy & Astrophysics* 384, 1107-1118.
- Boss, A.P., 1996. A concise guide to chondrule formation models, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), *International conference: Chondrules and the protoplanetary disk*, Cambridge University Press, pp. 257-263
- Boss, A.P., 2004. Evolution of the solar nebula. VI. Mixing and transport of isotopic heterogeneity, *Astrophysical Journal* 616, 1265-1277.
- Boss, A.P., 2007. Evolution of the solar nebula. VIII. Spatial and temporal heterogeneity of short-lived radioisotopes and stable oxygen isotopes, *Astrophysical Journal* 660, 1707-1714.
- Boss, A.P., Durisen, R.H., 2005. Sources of Shock Waves in the Protoplanetary Disk, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series pp. 821-838
- Boss, A.P., Graham, J.A., 1993. Clumpy Disk accretion and Chondrule Formation, *Icarus* 106, 168-178.
- Bouvier, A., Blichert-Toft, J., Moynier, F., Vervoort, J.D., Albarede, F., 2007. Pb-Pb dating constraints on the accretion and cooling history of chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 71, 1583-1604.
- Bouvier, A., Wadhwa, M., 2007. An appraisal of ^{207}Pb - ^{206}Pb and ^{26}Al - ^{26}Mg chondrologies in CAIs from chondrules, in: (Eds.), *Workshop on the chronology of meteorites and the early solar system*, pp. 36-37
- Bouvier, A., Wadhwa, M., Janney, P.E., 2008. ^{26}Al - ^{26}Mg and ^{207}Pb - ^{208}Pb systematics in an Allende inclusion, *Meteoritics and Planetary Science* 43 (suppl.), A28.
- Bowen, N.L., Schairer, J.F., 1932. The system FeO-SiO₂, *Am. J. Sci.* 5th ser 24, 177-213.
- Brearley, A.J., Jones, R.H., 1998. Chondritic Meteorites, *Reviews in Mineralogy and Geochemistry* 36,
- Brennecka, G.A., Weyer, S., Wadhwa, M., Janney, P.E., Zipfel, J., Anbar, A.D., 2010. $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ Variations in meteorites: Extant ^{247}Cm and implications for Pb-Pb dating,

- Brownlee, D., et al., 2006. Comet 81P/Wild 2 under a microscope, *Science* 314, 1711-1716.
- Burbidge, E.M., Burbidge, G.R., Fowler, W.A., Hoyle, F., 1957. Synthesis of the Elements in Stars, *Reviews Mod. Phys.* 29, 547-650.
- Busso, M., Gallino, R., Wasserburg, G.J., 2003. Short-lived nuclei in the early solar system: a low mass stellar source, *Astron. Soc. Australia* 20, 356-370.
- Cameron, A.G.W., 1995. The first ten million years in the solar nebula, *Meteoritics* 30, 133-161.
- Cameron, A.G.W., Truran, J.W., Jr., 1977. The supernova trigger for formation of the solar system, *Icarus* 30, 447-461.
- Cassen, P., 2001. Nebular thermal evolution and the properties of primitive planetary materials, *Meteoritics and Planetary Science* 36, 671-700.
- Chambers, J.E., Halliday, A.N., 2007. The Origin of the Solar System, in: L.-A. McFadden, P.R. Weissman, T.V. Johnson (Eds.), *Encyclopedia of the Solar System*, Academic Press, pp. 29-52
- Chambers, J.E., Wetherill, G.W., 1998. Making the Terrestrial Planets: N-Body Integrations of Planetary Embryos in Three Dimensions, *Icarus* 136, 304-327.
- Chaussidon, M., 1988. *Geochimie du soufre dans le manteau et la croûte océanique : apports de l'analyse isotopique in situ par sonde ionique*, Thèse INPL.
- Chaussidon, M., 2006. Formation of the Solar System: A Chronology Based on Meteorites, in: M.e.a. Gargaud (Eds.), *Lecture in Astrobiology*, vol. II, Springer Berlin, pp. 45-74
- Chaussidon, M., Gounelle, M., 2006. Irradiation Processes in the Early Solar System, in: D.S. Lauer, H.Y. McSween (Eds.), *Meteorites and the early solar system II*, The University of Arizona Press, pp. 323-339
- Chaussidon, M., Gounelle, M., 2007. Short-lived radioactive nuclides in meteorites and early solar system processes, *Comptes Rendus Geoscience* 339, 872-884.
- Chaussidon, M., Libourel, G., Krot, A.N., 2008. Oxygen isotopic constraints on the origin of magnesian chondrules and on the gaseous reservoirs in the early Solar System, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 72, 1924-1938.
- Chaussidon, M., Robert, F., 1995. Nucleosynthesis of ^{11}B -rich boron in the pre-solar cloud recorded in meteoritic chondrules, *Nature* 374, 337-339.
- Chaussidon, M., Robert, F., 1998. $^7\text{Li}/^6\text{Li}$ and $^{11}\text{B}/^{10}\text{B}$ variations in chondrules from the Semarkona unequilibrated chondrite, *Earth and Planetary Science Letters* 164, 577-589.
- Chaussidon, M., Robert, F., McKeegan, K.D., 2006. Li and B Isotopic Variations in an Allende CAI: Evidence for the In Situ Decay of Short-lived ^{10}Be and for the Possible Presence of the Short-lived Nuclide ^7Be in the Early Solar System, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 70, 224-245.
- Chen, J.H., Tilton, G.R., 1976. Isotopic Lead Investigations on the Allende Carbonaceous Chondrite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 40, 635-643.
- Chmeleff, J., Von Blanckenburg, F., Kossert, K., Jakob, D., 2010. Determination of the ^{10}Be half-life by multicollector ICP-MS and liquid scintillation counting, *Nuclear Instruments and Methods in Physical Research B* 268, 192-199.
- Chou, C.-L., Baedeker, P.A., Wasson, J.T., 1976. Allende Inclusions: Volatile-element Distribution and Evidence for Incomplete Volatilization of Presolar Solids, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 40, 85-94.
- Ciesla, F.J., 2007. Outward transport of high-temperature materials around the midplane of the solar nebula, *Science* 318, 613-615.
- Ciesla, F.J., Cuzzi, J.N., 2006. The evolution of the water distribution in a viscous protoplanetary disk, *Icarus* 181, 178-204.
- Ciesla, F.J., Hood, L.L., 2002. The nebular shock wave model for chondrule formation: Shock processing in a particle-gas suspension, *Icarus* 158, 281-293.
- Clayton, R.N., 2002. Solar System: Self-shielding in the Solar Nebula, *Nature* 415, 860-861.
- Clayton, R.N., 2003. Oxygen Isotopes in the Solar System, *Space Science Reviews* 106, 19-32.
- Clayton, R.N., 2004. The Origin of Oxygen Isotope Variations in the Early Solar System, *LPSC XXXV # 1682*.

- Clayton, R.N., Grossman, L., Mayeda, T.K., 1973. A Component of Primitive Nuclear Composition in Carbonaceous Meteorites, *Science* 182, 485-488.
- Clayton, R.N., Hinton, R.W., Davis, A.M., 1988. Isotopic Variations in the Rock-forming Elements in Meteorites, *Phil. Trans. R. Soc. Lond.* 325, 483-501.
- Clayton, R.N., Mayeda, T.K., 1977. Correlated Oxygen and Magnesium Isotope Anomalies in Allende Inclusions, I: Oxygen, *Geophysical Research Letters* 4, 295-298.
- Clayton, R.N., Mayeda, T.K., 1996. Oxygen isotope studies of achondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 60, 1999-2017.
- Clayton, R.N., Mayeda, T.K., 1999. Oxygen Isotope Studies of Carbonaceous Chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 63, 2089-2104.
- Clayton, R.N., Mayeda, T.K., Goswami, J.N., Olsen, E.J., 1991. Oxygen Isotope Studies of Ordinary Chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 55, 2317-2337.
- Clayton, R.N., Mayeda, T.K., Hutcheon, I.D., Molini-Velsko, C., Onuma, N., Ikeda, Y., Olsen, E.J., 1983. Oxygen Isotopic Compositions of Chondrules on Allende and Ordinary Chondrites, in: (Eds.), *Chondrules and Their Origins*, Houston, TX, Lunar and Planetary Institute, pp. 37-43
- Collectif, 2007. Encyclopedia of the Solar System, in: L.-A. McFadden, P.R. Weissman, T.V. Johnson (Eds.), Academic Press, pp. 1025
- Connelly, J., Amelin, Y., Krot, A.N., Bizzarro, M., 2008. Chronology of the solar system's oldest solids, *Astrophysical Journal* 675, 121-124.
- Connolly, H.C., Huss, G.R., 2010. Compositional evolution of the protoplanetary disk: Oxygen isotopes of type II chondrules from CR2 chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 74, 2473-2483.
- Connolly, H.C., Jones, R.H., Hewins, R.H., 1998. The Flash Melting of Chondrules: An Experimental Investigation into the Melting History and Physical Nature of Chondrule Precursors, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 62, 2725-2735.
- Coogan, L.A., Hain, A., Stahl, S., Chakraborty, S., 2005. Experimental determination of the diffusion coefficient for calcium in olivine between 900°C and 1500°C, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 69, 3683-3694.
- Cosarinsky, M., Taylor, D.J., Liu, M.C., McKeegan, K.D., Krot, A.N., 2007. Distribution of aluminium-26 in refractory inclusions from CV chondrites, in: (Eds.), *Workshop on the chronology of meteorites and the early solar system*, pp. 48-49
- Cuzzi, J.N., Ciesla, F.J., Petaev, M.I., Krot, A.N., Scott, E.R.D., Weidenschilling, S.J., 2005. Nebular Evolution of Thermally Processed Solids: Reconciling Models and Meteorites, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *ASP Conference Series*, pp. 732-773
- Cuzzi, J.N., Zahnle, K.J., 2004. Material Enhancement in Protoplanetary Nebulae by Particle Drift through Evaporation Fronts, *Astrophysical Journal* 614, 490-496.
- Davis, A.M., Clayton, R.N., Mayeda, T.K., Hashimoto, A., 1990. Isotope Mass Fractionation during Evaporation of Mg₂SiO₄, *Nature* 347, 655-658.
- Davis, A.M., Richter, F.M., 2003. Condensation and Evaporation of Solar System Materials, in: H.D. Holland, K.K. Turekian (Eds.), *Treatise on Geochemistry, Vol. 1, Meteorites, Comets, and Planets*, A.M. Davis (Ed.), Elsevier, pp.
- Davis, A.M., Richter, F.M., Mendybaev, R.A., Janney, P.E., Wadhwa, M., McKeegan, K.D., 2005. Isotopic mass fractionation laws and the initial solar system ²⁶Al/²⁷Al ratio, *LPSC XXXVI*
- Delsanti, A., Jewitt, D., 2006. The Solar System beyond the Planets, in: P. Blondel, J.W. Mason (Eds.), *Solar System Update*, Springer-Verlag, pp. 329
- Desch, S.J., Ciesla, F.J., Hood, L.L., Nakamoto, T., 2005. Heating of Chondritic Materials in Solar Nebula Shocks, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, *ASP Conference Series*, pp. 849-872
- Desch, S.J., Connolly, H.C., 2002. A model of the thermal processing of particles in solar nebula shocks: Application to the cooling rates of chondrules, *Meteoritics & Planetary Science* 37, 183-207.
- Dohmen, R., Chakraborty, S., 2007. Fe-Mg diffusion in olivine II: point defect chemistry, change

- of diffusion mechanisms and a model for calculation of diffusion coefficient in natural olivine, *Phys. Chem. Miner.* 6,
- Duprat, J., Tatischeff, V., 2007. Energetic constraints on in situ production of short-lived radionuclides in the early solar system, *Astrophysical Journal* 671, 69-72.
- Ebel, D.S., Grossman, L., 2000. Condensation in Dust-enriched Systems, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 64, 339-366.
- Faure, F., 2001. Les textures de croissance rapide dans les roches magmatiques basiques et ultrabasi-ques : Etude expérimentale et nanoscopique, Thèse, Université Blaise Pascal,
- Faure, F., Trolliard, G., Nicollet, C., Montel, J.-M., 2003. A Developmental Model of Olivine Morphology as a Function of the Cooling Rate and the Degree of Undercooling, *Contributions to Mineralogy and Petrology* 145, 251-263.
- Faure, G., 1986. *Principle of Isotope Geology*, Wiley, New York
- Federman, S.R., Lambert, D.L., Sheffer, Y., Cardelli, J.A., Andersson, B.-G., Van Dishoeck, E.F., Zsargo, J., 2003. Further Evidence for Chemical Fractionation from Ultraviolet Observations of Carbon Monoxide, *Astrophysical Journal* 591, 986.
- Feigelson, E.D., Montmerle, T., 1999. High-Energy Processes in Young Stellar Objects, *Annual Review of Astronomy and Astrophysics* 37, 363-408.
- Fitoussi, C., Duprat, J., Tatischeff, V., Kiener, J., Naulin, F., Raisbeck, G., Assuncao, M., Coc, A., Enggrand, C., Gounelle, M., Lefebvre, A., Porquet, M.-G., Thibaud, J.-P., Yiou, F., Bourgeois, C., Chabot, M., Hammache, F., Scarpaci, J.-A., De Sereville, N., 2008. Measurements of the $^{24}\text{Mg}(\text{}^3\text{He,p})^{26}\text{Al}$ cross section: Implication for ^{26}Al production in the early solar system, *Physical Review C. Nuclear Physics* 78,
- Floss, C., ElGoresy, A., Zinner, E., Kransel, G., Rammensee, W., Palme, H., 1996. Elemental and isotopic fractionations produced through evaporation of the Allende CV chondrite: Implications for the origin of HAL-type hibonite inclusions, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 60, 1975-1997.
- Ford, C.E., 1978. Platinum-iron alloy sample containers for melting experiments on iron-bearing rocks, mineral and related systems, *Mineral Mag.* 42, 271-275.
- Fuchs, L.H., Olsen, E.J., Jensen, K.J., 1973. Mineralogy, mineral-chemistry and composition of the Murchison (C2) meteorite, *Smith. Contrib. Earth Sc.* 10, 1-39.
- Galy, A., Young, E.D., Ash, R.D., O'Nions, R.K., 2000. The formation of chondrules at high gas pressures in the solar nebula, *Science* 290, 1751-1753.
- Ganguly, J., Yang, H., Ghose, S., 1994. Thermal history of mesosiderites: Quantitative constraints from compositional zoning and Fe-Mg ordering in orthopyroxènes, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 58, 2711-2723.
- Ghosh, A., McSween, H.Y., 1998. A thermal model for the differentiation of Asteroid 4 Vesta, based on radiogenic heating, *Icarus* 134, 187-206.
- Glassgold, A.E., Feigelson, E.D., Montmerle, T., Wolk, S., 2005. X-ray flares of Sun-like young stellar objects and their effects on protoplanetary disk, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 165-181
- Gomes, R., Levison, H.F., Tsiganis, K., Morbidelli, A., 2005. Origin of the Cataclysmic Late Heavy Bombardment Period of the Terrestrial Planets, *Nature* 435, 466-469.
- Gooding, J.L., Keil, K., 1981. Relative Abundances of Chondrule Primary Textural Types in Ordinary Chondrites and their Bearing on Conditions of Chondrule Formation, *Meteoritics* 16, 17-43.
- Gooding, J.L., Mayeda, T.K., Clayton, R.N., Fukuoka, T., 1983. Oxygen Isotopic Heterogeneities, their Petrological Correlations, and Implications for Melt Origins of Chondrules in Unequilibrated Ordinary Chondrites, *Earth and Planetary Science Letters* 65, 209-224.
- Goswami, J.N., Marhas, K.K., Chaussidon, M., Gounelle, M., Meyer, B.S., 2005. Origin of Short-lived Radionuclides in the Early Solar System, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 485-514
- Goswami, J.N., Vanhala, H.A.T., 2000. Extinct Radionuclides and The Origin of the Solar System, in: (Eds.), *Protostars and Planets IV*, University of Arizona Press, pp. 963-994

- Gounelle, M., Chaussidon, M., Montmerle, T., 2007. Irradiation in the early solar system and the origin of short-lived radionuclides, *Comptes Rendus Geoscience* 339, 885-894.
- Gounelle, M., Meibom, A., Hennebelle, P., Inutsuka, S.-I., 2009. Supernova propagation and clud enrichment: A new model for the origin of ^{60}Fe in the early solar system, *Astrophysical Journal* 694, 1.
- Gounelle, M., Russell, S.S., 2005. On early solar system chronology: implications of an heterogeneous spatial distribution of ^{26}Al and ^{53}Mn , *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 69, 3129-3144.
- Gounelle, M., Shu, F.H., Shang, H., Glassgold, A.E., Rhem, K.E., 2001. Extinct radioactivities and protosolar cosmic-rays: self-shielding and light elements, *Astrophysical Journal* 548, 1051-1070.
- Gounelle, M., Shu, F.H., Shang, H., Glassgold, A.E., Rhem, K.E., Lee, T., 2006. The irradiation origin of beryllium radioisotopes and other short-lived radionuclides, *Astrophysical Journal* 640, 1163-1170.
- Grady, M.M., 2000. Catalogue of Meteorites, in: (Eds.), Cambridge University Presse, pp.
- Greeney, S., Ruzicka, A., 2004. Relict forsterite in chondrules: Implications for cooling rates, *LPSC XXXV # 1426*.
- Grossman, J.N., 1988. Formation of Chondrules, in: J.F. Kerridge, M.S. Matthews (Eds.), *Meteorites and the Early Solar System*, University of Arizona Press, pp. 680-696
- Grossman, J.N., Wasson, J.T., 1983. The Compositions of Chondrules in Unequilibrated Chondrites: An Evaluation of Models for the Formation of Chondrules and their Precursor Materials, in: (Eds.), *Chondrules and their Origins*, Houston, TX, Lunar and Planetary Institute, pp. 88-121
- Grossman, J.N., Wasson, J.T., 1983. Refractory Precursor Components of Semarkona Chondrules and the Fractionation of Refractory Elements among Chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 47, 759-771.
- Grossman, J.N., Wasson, J.T., 1985. The Origin and History of the Metal and Sulfide Components of Chondrules, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 49, 925-939.
- Grossman, L., 1972. Condensation in the Primitive Solar Nebula, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 36, 597-619.
- Grossman, L., 1975. Petrography and Mineral Chemistry of Ca-rich Inclusions in the Allende Meteorite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 39, 433-454.
- Grossman, L., 1980. Refractory Inclusions in the Allende Meteorite, *Annual Review of Earth and Planetary Sciences* 8, 559-608.
- Grossman, L., Beckett, J.R., Fedkin, A.V., Simon, S.B., Ciesla, F.J., 2008. Redox Conditions in the Solar Nebula: Observational, Experimental, and Theoretical constraints, *Reviews in Mineralogy and Geochemistry* vol. 68, 93-140.
- Grossman, L., Ebel, D.S., Simon, J.I., 2002. Formation of Refractory Inclusions by Evaporation of Condensate Precursors, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 66, 145-161.
- Grossman, L., Ebel, D.S., Simon, S.B., Davis, A.M., Richter, F.M., Parsad, N.M., 2000. Major Element Chemical and Isotopic Compositions of Refractory Inclusions in C3 Chondrites: the Separate Roles of Condensation and Evaporation, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 64, 2879-2894.
- Grossman, L., Larimer, J.W., 1974. Early Chemical History of the Solar System, *Reviews Geophys. Space Phys.* 12, 71-101.
- Grossman, L., Olsen, E.J., 1974. Origin of the high-temperature fraction of C2 chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 38, 173-187.
- Hartmann, L., Kenyon, S., Hartigan, P., 1993. Young Stars: Episodic Phenomena, Activity and Variability, in: E.H. Levy, J.I. Lunine (Eds.), *Protostars and Planets III*, University of Arizona Press, pp. 497-518
- Hashimoto, A., Kumazawa, M., Onuma, N., 1979. Evaporation Metamorphism of Primitive Dust Material in the Early Solar Nebula, *Earth and Planetary Science Letters* 43, 13-21.
- Hashizume, K., Chaussidon, M., 2005. A Non-terrestrial ^{16}O -rich Isotopic Composition

- for the Protosolar Nebula, *Nature* 434, 619-622.
- Hashizume, K., Chaussidon, M., 2009. Two Oxygen Isotopic Components with Extra-selenial Origins Observed among Lunar Metallic Grains - In Search for the Solar Wind Component, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 73, 3038-3054.
- Hester, J.J., Desch, S.J., 2005. Understanding our Origins: Star Formation in HII Region Environments in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 107-130
- Hester, J.J., Desch, S.J., Healy, K.R., Leshin, L., 2004. The Cradle of the Solar System, *Science* 304, 1116.
- Hewins, R.H., 1991. Retention of Sodium during Chondrule Melting, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 55, 935-942.
- Hewins, R.H., 2009. Minor element zoning of olivine in type IIA chondrules in Semarkona, LPSC XXXX # 1669.
- Hewins, R.H., Connolly, H.C., Lofgren, G.E., Libourel, G., 2005. Experimental Constraints on Chondrules Formation, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 286-316
- Hewins, R.H., Fox, G.E., 2004. Chondrule Textures and Precursors Grain Size: An Experimental Study, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 68, 917-926.
- Hewins, R.H., Ganguly, J., Mariani, E., 2009. Diffusion modeling of cooling rates of relict olivine in Semarkona chondrules, LPSC XXXX # 1513.
- Hewins, R.H., Radomsky, P.M., 1990. Temperature Conditions for Chondrule Formation, *Meteoritics* 25, 309-318.
- Hewins, R.H., Yu, Y., Zanda, B., Bourot-Denise, M., 1997. Do Nebular Fractionations, Evaporative Losses, or Both, Influence Chondrule Compositions?, *Antarctic Meteorites Research, 21th Symposium on Antarctic Meteorites* 275-298.
- Hewins, R.H., Zanda, B., Bourot-Denise, M., 1996. Evaporative Loss and Degree of Melting in Semarkona Type I Chondrules, LPSC XXVII 537-538.
- Hinton, R.W., 1995. Ion microprobe analysis in geology, in: P.J. Potts, J.F.W. Bowles, S.J.B. Reed, M.R. Cave (Eds.), *Microprobe techniques in the Earth sciences*, Chapman & Hall, London, pp.
- Hood, L.L., Horanyi, M., 1991. Gas Dynamic Heating of Chondrule Precursor Grains in the Solar Nebula, *Icarus* 93, 259-269.
- Hood, L.L., Horanyi, M., 1993. The Nebular Shock Wave Model for Chondrule Formation: One-dimensional Calculations, *Icarus* 106, 179-189.
- Hsu, W.B., Huss, G.R., Wasserburg, G.J., 2003. Al-Mg systematics of CAIs, POI, and ferromagnesian chondrules from Ningqiang, *Meteoritics & Planetary Science* 38, 35-48.
- Hsu, W.B., Wasserburg, G.J., Huss, G.R., 2000. High time resolution by use of the ²⁶Al chronometer in the multistage formation of a CAI, *Earth and Planetary Science Letters* 182, 15-29.
- Huss, G.R., Meyer, B.S., Srinivasan, G., Goswami, J.N., Sahijpal, S., 2009. Stellar sources of the short-lived radionuclides in the early solar system, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 73, 4922-4945.
- Hutcheon, I.D., Hutchison, R., 1989. Evidence from the Semarkona ordinary chondrite for Al-26 heating of small planets, *Nature* 337, 238-241.
- Hutcheon, I.D., Krot, A.N., Ulyanov, A.A., 2000. ²⁶Al in Anorthite-rich chondrules in primitive Carbonaceous Chondrites: Evidence chondrules postdate CAI, LPSC XXXI Abstract #1869,
- Hutchison, R., Bridges, J.C., Gilmour, J.D., 2005. Chondrules: Chemical, Petrographic and Chronologic clues to Their Origin by Impact, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 933-950
- Hutchison, R., Graham, A.L., 1975. Significance of Calcium-rich Differentiates in Chondritic Meteorites, *Nature* 255, 471-474.
- Hutchison, R., Williams, C.T., Din, V.K., Clayton, R.N., Kirschbaum, C., Lipschutz, M.E., 1988. A Planetary, H-group Pebble in the Barwell, L6, Unshocked, Chondritic Meteorite, *Earth and Planetary Science Letters* 90, 105-118.

- Ikeda, Y., 1982. Petrology of the ALH-77003 Chondrite (C3), Mem. Nat. Inst. Pol. Res. Spec. Is. 25, 34-77.
- Ireland, T.R., 1995. Ion microprobe mass spectrometry: Techniques and applications in cosmochemistry, geochemistry and geochronology, in: M. Hyman, M. Rowe (Eds.), Advances in analytical geochemistry, Greenwich, UK, JAI Press, pp. 1-118
- Ito, M., Ganguly, J., 2006. Diffusion kinetics of Cr in olivine and ^{53}Mn - ^{43}Cr thermochronology of early solar system objects, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 70, 799-809.
- Jacobsen, B., Yin, Q.Z., Moynier, F., Amelin, Y., Krot, A.N., Nagashima, K., Hutcheon, I.D., Palme, H., 2008. Al-26-Mg-26 and Pb-207-Pb-206 systematics of Allende CAIs: Canonical solar initial Al-26/Al-27 ratio reinstated, *Earth and Planetary Science Letters* 272, 353-364.
- Jeffery, P.M., Reynolds, J.H., 1961. Origin of Excess Xe^{129} in Stone Meteorites, *J. Geophys. Res.* 66, 3582-3583.
- Johannes, W., Bode, B., 1978. Loss of iron to the Pt-container in melting experiments with basalts and a method to reduce it, *Contributions to Mineralogy and Petrology* 67, 221-225.
- Jones, R.H., 1990. Petrology and mineralogy of type-II, FeO-rich chondrules in Semarkona (LL3.0) - Origin by closed-system fractional crystallization, with evidence for supercooling, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 54, 1785-1802.
- Jones, R.H., 1994. Petrology of FeO-poor, porphyritic pyroxene chondrules in the Semarkona chondrite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 58, 5325-5340.
- Jones, R.H., 1996. FeO-rich, porphyritic pyroxene chondrules in unequilibrated ordinary chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 60, 3115-3138.
- Jones, R.H., 1996. Relict grains in chondrules: Evidence for chondrule recycling, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), International conference: Chondrules and the protoplanetary disk, Cambridge University Press, pp. 163-172
- Jones, R.H., Grossman, J.N., Rubin, A.E., 2005. Chemical, Mineralogical and Isotopic Properties of Chondrules: Clues to their Origin, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), Chondrites and the Protoplanetary Disk, ASP Conference Series, pp. 251-285
- Jones, R.H., Lofgren, G.E., 1993. A Comparison of FeO-rich, Porphyritic Olivine Chondrules in Unequilibrated Chondrites and Experimental Analogues, *Meteoritics* 28, 213-221.
- Jones, R.H., Scott, E.R.D., 1989. Petrology and thermal history of type IA chondrules in Semarkona (LL3.0) chondrite, *Proceedings of the 19th Lunar and Planetary Science Conference* 523-536.
- Jurewicz, A.J.G., Watson, E.B., 1988. Cations in olivine, Part 2: Diffusion in olivine xenocrysts, with applications to petrology and mineral physics, *Contributions to Mineralogy and Petrology* 99, 186-201.
- Kallemeyn, G.W., 1989. Compositional studies of type-4-type-6 carbonaceous chondrites, *Meteoritics* 24, 283-283.
- Kallemeyn, G.W., Boynton, W.V., Willis, J., Wasson, J.T., 1978. Formation of the Bencubbin Polymict Meteoritic Breccia, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 42, 507-515.
- Kallemeyn, G.W., Rubin, A.E., Wang, D., Wasson, J.T., 1989. Ordinary chondrites - Bulk compositions, classification, lithophile-element fractionations, and composition-petrographic type relationships, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 53, 2747-2767.
- Kallemeyn, G.W., Rubin, A.E., Wasson, J.T., 1991. The compositional classification of chondrites .5. The Karoonda (CK) group of carbonaceous chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 55, 881-892.
- Kallemeyn, G.W., Rubin, A.E., Wasson, J.T., 1994. The compositional classification of chondrites .6. The CR carbonaceous chondrite group, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 58, 2873-2888.
- Kallemeyn, G.W., Rubin, A.E., Wasson, J.T., 1996. The compositional classification of chondrites .7. The R chondrite group, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 60, 2243-2256.
- Kallemeyn, G.W., Wasson, J.T., 1981. The compositional classification of chondrites .1. The carbonaceous chondrite groups, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 45, 1217-1230.

- Kallemeyn, G.W., Wasson, J.T., 1982. The compositional classification of chondrites .3. Ungrouped carbonaceous chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 46, 2217-2228.
- Kallemeyn, G.W., Wasson, J.T., 1984. The composition of Enstatite chondrites, *Meteoritics* 19, 250-250.
- Kallemeyn, G.W., Wasson, J.T., 1985. The compositional classification of chondrites .4. Ungrouped chondritic meteorites and clasts, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 49, 261-270.
- Kallemeyn, G.W., Wasson, J.T., 1986. Compositions of Enstatite (EH3, EH4,5 and EL6) chondrites - implications regarding their formation, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 50, 2153-2164.
- Kelly, W.R., Wasserburg, G.J., 1978. Evidence for the Existence of ¹⁰⁷Pd in the Early Solar System, *Geophysical Research Letters* 5, 1079-1082.
- Kennedy, A.K., Hutchison, R., Hutcheon, I.D., Agrell, S.O., 1992. A Unique High Mn/Fe Microgabbro in the Parnallee (LL3) Ordinary Chondrite: Nebula Mixture or Planetary Differentiate from a Previously Unrecognized Planetary Body?, *Earth and Planetary Science Letters* 113, 191-205.
- Kennedy, A.K., Lofgren, G.E., Wasserburg, G.J., 1993. An experimental study of trace element partitioning between olivine, orthopyroxene and melt in chondrules: equilibrium values and kinetic effects, *Earth and Planetary Science Letters* 115, 177-195.
- Kita, N.T., Huss, G.R., Tachibana, S., Amelin, Y., Nyquist, L.E., 2005. Constraints on the Origin of Chondrules and CAIs from Short-lived and Long-lived Radionuclides, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 558-587
- Kita, N.T., Nagahara, H., Togashi, S., Morshita, Y., 2000. A short duration of chondrule formation in the solar nebula: Evidence from Al-26 in Semarkona ferromagnesian chondrules, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 64, 3913-3922.
- Kita, N.T., Tomomura, S., Tachibana, S., Nagahara, H., Mostefaoui, S., Morishita, Y., 2005. Correlation Between Aluminium 26 Ages and bulk Si/Mg ratios for chondrules from LL3.0-3.1 chondrites, LPSC XXXVI abstract #1750,
- Kita, N.T., Ushikubo, T., Knight, K.B., Mendybaev, R.A., Davis, A.M., Richter, F.M., 2007. High precision Al-Mg internal isochron using zoned melilite in CAI, in: (Eds.), *Workshop on the chronology of meteorites and the early solar system*, pp. 92-93
- Kleine, T., Mezger, K., Palme, H., Scherer, E., Munker, C., 2005. Early core formation in asteroids and late accretion of chondrite parent bodies: Evidence from Hf-182-W-182 in CAIs, metal-rich chondrites, and iron meteorites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 69, 5805-5818.
- Kleine, T., Touboul, M., Bourdon, B., Nimmo, F., Mezger, K., Palme, H., Jacobsen, S.B., Yin, Q.Z., Halliday, A.N., 2009. Hf-W Chronology of the Accretion and Early Evolution of Asteroids and Terrestrial Planets, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 73, 5150-5188.
- Klerner, S., Jones, R.H., Palme, H., Shearer, C.K., 2000. Trace elements and cathodoluminescence in refractory forsterite from Allende and Kaba, LPSC XXXI # 1689.
- Kokubo, E., Ida, S., 2000. Formation of Protoplanets from Planetesimals in the Solar Nebula, *Icarus* 143, 15-27.
- Kong, P., Ebihara, M., 1996. Metal phases of L chondrites: Their formation and evolution in the nebula and in the parent body, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 60, 2667-2680.
- Kong, P., Ebihara, M., 1997. The origin and nebular history of the metal phase of ordinary chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 61, 2317-2329.
- Kong, P., Palme, H., 1999. Compositional and Genetic Relationship between Chondrules, Chondrule Rims, Metal and Matrix in the Renazzo Chondrite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 63, 3673-3682.
- Kracher, A., Willis, J., Wasson, J.T., 1980. Chemical classification of iron-meteorites .9. A new group (IIF), revision of IAB and IIICD, and data on 57 additional irons, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 44, 773-787.
- Krot, A.N., Amelin, Y., Bland, P., Ciesla, F.J., Connelly, J., Davis, A.M., Huss, G.R., Hutcheon, I.D., Makide, K., Nagashima, K., Nyquist, L.E., Russell, S.S., Scott, E.R.D., Thrane, K., Yuri-

- moto, H., Yin, Q.Z., 2009. Origin and Chronology of Chondritic Components: A Review, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 73, 4963-4997.
- Krot, A.N., Amelin, Y., Cassen, P., Meibom, A., 2005. Young chondrules in CB chondrites from a giant impact in the early Solar System, *Nature* 436, 989-992.
- Krot, A.N., Keil, K., Goodrich, C.A., Scott, E.R.D., Weisberg, M.K., 2003. Classification of Meteorites, in: H.D. Holland, K.K. Turekian (Eds.), *Treatise on Geochemistry*, Vol. 1, Meteorites, Comets, and Planets, A.M. Davis (Ed.), Elsevier, pp. 83-128
- Krot, A.N., Libourel, G., Goodrich, C.A., Petaev, M.I., 2004. Silica-rich igneous rims around magnesian chondrules in CR carbonaceous chondrites: Evidence for condensation origin from fractionated nebular gas, *Meteoritics & Planetary Science* 39, 1931-1955.
- Krot, A.N., Meibom, A., Russell, S.S., Alexander, C.M.O.D., Jeffries, T.E., Keil, K., 2001. A New Astrophysical Setting for Chondrule Formation, *Science* 291, 1776-1779.
- Krot, A.N., Yurimoto, H., McKeegan, K.D., Leshin, L., Chaussidon, M., Libourel, G., Yoshitake, M., Huss, G.R., Guan, Y.B., Zanda, B., 2006. Oxygen isotopic compositions of chondrules: Implications for evolution of oxygen isotopic reservoirs in the inner solar nebula, *Chemie Der Erde-Geochemistry* 66, 249-276.
- Kunihiro, T., Rubin, A.E., McKeegan, K.D., Wasson, J.T., 2004. Initial Al-26/Al-27 in carbonaceous-chondrite chondrules: Too little Al-26 to melt asteroids, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 68, 2947-2957.
- Kurahashi, E., Kita, N.T., Nagahara, H., Morishita, Y., 2008. Al-26-Mg-26 systematics of chondrules in a primitive CO chondrite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 72, 3865-3882.
- Kurat, G., 1970. Zur Genese der Ca-Al-reichen Einschlüssen in Chondriten von Lancé Earth and *Planetary Science Letters* 9, 225-231.
- Kurat, G., Pernicka, E., Herrwerth, I., El Goresy, A., 1983. Prechondritic Fractionation of Chainpur Constituents: Evidence for Strongly Reducing Conditions in the Early Solar System, *Meteoritics* 18, 330.
- Larimer, J.W., Anders, E., 1967. Chemical Fractionations in Meteorites - II. Abundance Patterns and their Interpretation, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 31, 1239-1270.
- Lasaga, A., 1983. Geospeedometry: an extension of geothermometry, in: S.K. Saxena (Eds.), *Advances in Physical Geochemistry*, Springer-Verlag, New-York, pp. 81-114
- Lauretta, D.S., Buseck, P.R., Zega, T.J., 2001. Opaque minerals in the matrix of the Bishunpur (LL3.1) chondrite: Constraints on the chondrule formation environment, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 65, 1337-1353.
- Lauretta, D.S., Nagahara, H., Alexander, C.M.O.D., 2006. Petrology and Origin of Ferromagnesian Silicate Chondrules, in: D.S. Lauretta, H.Y. McSween (Eds.), *Meteorites and the early solar system II*, The University of Arizona Press, pp.
- Lee, T., 1978. A local proton irradiation model for isotopic anomalies in the solar system, *Astrophysical Journal* 224, 217-226.
- Lee, T., Mayeda, T.K., Clayton, R.N., 1980. Oxygen Isotopic Anomalies in Allende Inclusion HAL, *Geophysical Research Letters* 7, 493-496.
- Lee, T., Papanastassiou, D.A., Wasserburg, G.J., 1976. Demonstration of Mg-26 excess in Allende and evidence for Al-26, *Geophysical Research Letters* 3, 109-112.
- Lee, T., Russell, W.A., Wasserburg, G.J., 1979. Calcium Isotopic Anomalies and the Lack of Aluminium-26 in an Unusual Allende Inclusion, *Astrophysical Journal Letters* 228, 93-98.
- Lee, T., Shu, F.H., Shang, H., Glassgold, A.E., Rhem, K.E., 1998. Protostellar cosmic rays and extinct radioactivities in meteorites, *Astrophysical Journal* 506, 898-912.
- Leshin, L.A., McKeegan, K.D., Bendix, G.K., 2000. Oxygen isotope geochemistry of olivine from carbonaceous chondrites, *LPSC XXXI # 1918*.
- Leshin, L.A., Rubin, A.E., McKeegan, K.D., 1997. The oxygen isotopic composition of olivine and pyroxene from C1 chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 61, 835-845.
- Leverington, D., 2007. A History of Solar System Study, in: L.-A. McFadden, P.R. Weissman, T.V. Johnson (Eds.), *Encyclopedia of the Solar System*, Academic Press, pp. 53-70
- Lewis, R.D., Lofgren, G.E., Franzen, H.F., Windom, K.E., 1993. The Effect of Na Vapor on the Na

- Content of Chondrules, *Meteoritics* 28, 622-628.
- Leya, I., Wieler, R., Halliday, A.N., 2003. The influence of cosmic-ray production on extinct nuclide systems, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 67, 529-541.
- Libourel, G., 1999. Systematics of calcium partitioning between olivine and silicate melt: implications for melt structure and calcium content of magmatic olivines, *Contributions to Mineralogy and Petrology* 136, 63-80.
- Libourel, G., Boivin, P., Biggar, G.M., 1989. the univariant curve liquid = forsterite + anorthite + diopside in the system CMAS at 1 bar: solid solution and melt structure, *Contributions to Mineralogy and Petrology* 102, 406-421.
- Libourel, G., Chaussidon, M., 2009. Origin of Mg-rich olivines in type I chondrules, *Meteoritics & Planetary Science* 44, A122-A122.
- Libourel, G., Krot, A.N., 2007. Evidence for the presence of planetesimal material among the precursors of magnesian chondrules of nebular origin, *Earth and Planetary Science Letters* 254, 1-8.
- Libourel, G., Krot, A.N., Tissandier, L., 2003. Evidence for High Temperature Condensation of Moderately-volatile Elements during Chondrule Formation, *LPSC XXXIV # 1558*,
- Libourel, G., Krot, A.N., Tissandier, L., 2006. Role of gas-melt interaction during chondrule formation, *Earth and Planetary Science Letters* 251, 232-240.
- Liu, M.C., McKeegan, K.D., Davis, A.M., Ireland, T.R., 2006. Oxygen isotopic compositions in CM hibonite: Implications for solar nebula heterogeneity, *Meteoritics & Planetary Science* 41, A107-A107.
- Lodders, K., 2003. Solar system abundances and condensation temperatures of the elements, *Astrophysical Journal* 591, 1220-1247.
- Lofgren, G.E., 1989. Dynamic Crystallization of Chondrule Melts of Porphyritic Olivine Composition: Texture Experimental and Natural, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 53, 461-470.
- Lofgren, G.E., 1996. A Dynamic Crystallization Model for Chondrule Melts, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), *International conference: Chondrules and the protoplanetary disk*, Cambridge University Press, pp.
- Lofgren, G.E., Grove, T.L., Brown, R.W., Smith, D.P., 1979. Comparison of dynamic crystallization techniques on Apollo 15 quartz normative basalts, *LPSC X* 423-438.
- Lofgren, G.E., Lanier, A.B., 1990. Dynamic Crystallization Study of Barred Olivine Chondrules, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 54, 3537-3551.
- Lofgren, G.E., Le, L., 2000. Experimental Evidence for a Partial Melting Origin for Most Porphyritic Chondrules, *LPSC XXXI #1809*.
- Lofgren, G.E., Le, L., Schatz, V., 1999. Partial Melting of WSG95300: A Type 3 UOC, *LPSC XXXI # 1742*.
- Ludwig, K.R., 2003. Berkeley Geochronology Center, Special Publication N°4
- Lugmair, G.W., Schukolyukov, A., 1998. Early solar system timescale according to ⁵³Mn-⁵³Cr systematics, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 62, 2863-2886.
- Lyons, J.R., Young, E.D., 2005. CO Self-Shielding as the Origin of Oxygen Isotope Anomalies in the Early Solar System, *Nature* 435, 317-320.
- Macpherson, G.J., 2003. Calcium-Aluminum-rich Inclusions in Chondritic Meteorites, in: K.K. Turekian, H.D. Holland (Eds.), *Treatise on Geochemistry, Vol. 1, Meteorites, Comets, and Planets*, A.M. Davis (Ed.), Elsevier, pp.
- Macpherson, G.J., Davis, A.M., 1993. A Petrologic and Ion Microprobe Study of a Vigarano Type B Refractory Inclusion: Evolution by Multiple Stages of Alteration and Melting, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 57, 231-243.
- Macpherson, G.J., Davis, A.M., Zinner, E.K., 1995. The distribution of Al-26 in the early solar-system - A reappraisal, *Meteoritics* 30, 365-386.
- Macpherson, G.J., Grossman, L., 1984. „Fluffy“ type A Ca-, Al-rich Inclusions in the Allende Meteorite *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 48, 29-46.
- Macpherson, G.J., Huss, G.R., Davis, A.M., 2003. Extinct ¹⁰Be in type A calcium-aluminium-rich inclusions from CV chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 67, 3165-3179.

- Macpherson, G.J., Wark, D.A., Armstrong, J.T., 1988. Primitive Material Surviving in Chondrites: Refractory Inclusions, in: J.F. Kerridge, M.S. Matthews (Eds.), *Meteorites and the Early Solar System*, University of Arizona Press, pp.
- Makide, K., Nagashima, K., Krot, A.N., Huss, G.R., Hutcheon, I.D., Bischoff, A., 2009. Oxygen- and magnesium-isotope compositions of calcium-aluminium-rich inclusions from CR carbonaceous chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 73, 5018-5050.
- Malvin, D.J., Wasson, J.T., Clayton, R.N., Mayeda, T.K., Curvello, W.D., 1985. Bocaiuva - A silicate-inclusion bearing iron meteorite related to the Eagle-Station pallasites, *Meteoritics* 20, 259-273.
- Markowski, A., Quitte, G., Halliday, A.N., Kleine, T., 2006. Tungsten isotopic compositions of iron meteorites: Chronological constraints vs. cosmogenic effects, *Earth and Planetary Science Letters* 242, 1-15.
- Markowski, A., Quitté, G., Kleine, T., Halliday, A.N., Bizzarro, M., Irving, A.J., 2007. Hafnium-tungsten chronometry of angrites and the earliest evolution of planetary objects, *Earth and Planetary Science Letters* 262, 214-229.
- Mathieu, R., 2009. Solubilité du sodium dans les silicates fondus, Thèse CRPG-INPL-Nancy Université,
- Matsunami, S., Ninagawa, K., Nishimura, S., Kubono, N., Yamamoto, I., Kohata, M., Wada, T., Yamashita, Y., Lu, J., Sears, D.W., Nishimura, H., 1993. Thermoluminescence and Compositional Zoning in the Mesostasis of a Semarkona Group A1 Chondrule and New Insights into Chondrule-forming Process, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 57, 2101-2110.
- McBride, N., Gilmour, I., 2003. An Introduction to the Solar System, in: N. McBride, I. Gilmour (Eds.), *The press syndicate of the University of Cambridge*, pp. 402
- McCoy, T.J., Mittlefehldt, D.W., Wilson, L., 2006. Asteroid differentiation, in: D.S. Lauretta, H.Y. McSween (Eds.), *Meteorites and the early solar system II*, The University of Arizona Press, pp. 733-745
- McCrea, W.H., 1960. The Origin of the Solar System, *Proc. R. Soc. Lond.* A250, 245.
- McDonough, W.F., Sun, S.S., 1995. The composition of the Earth, *Chemical Geology* 120, 223-253.
- McKeegan, K.D., Chaussidon, M., Robert, F., 2000. Incorporation of Short-lived ^{10}Be in a Calcium-Aluminium-Rich Inclusion from the Allende Meteorite, *Science* 289, 1334-1337.
- McKeegan, K.D., Davis, A.M., 2003. Early Solar System Chronology, in: H.D. Holland, K.K. Turekian (Eds.), *Treatise on Geochemistry, Vol. 1, Meteorites, Comets, and Planets*, A.M. Davis (Ed.), Elsevier, pp. 431-460
- McKeegan, K.D., et al., 2006. Isotopic compositions of cometary matter returned by Stardust, *Science* 314, 1724-1728.
- McKeegan, K.D., Kallio, A.P., Heber, V., Jarzebinski, G., Mao, P.H., Coath, C.D., Kunihiro, T., Wiens, R., Alton, J., Burnett, D.S., 2009. Oxygen Isotopes in a Genesis Concentrator Sample, LPSC XXXXI # 2494,
- McSween, H.Y., 1977. Carbonaceous Chondrites of the Ornans Type: A Metamorphic Sequence, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 41, 477-491.
- McSween, H.Y., 1977. On the nature and origin of isolated olivine grains in carbonaceous chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 41, 411-418.
- McSween, H.Y., 1977. Petrographic Variations among Carbonaceous Chondrites of the Vigarano Type, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 41, 1777-1790.
- Mendybaev, R.A., Richter, F.M., Davis, A.M., 2006. Crystallization of Melilite from CMAS-liquids and the Formation of the Melilite Mantle of Type B1 CAIs: Experimental Simulations, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 70, 2622-2642.
- Meneguzzi, M., Audouze, J., Reeves, H., 1971. The Production of the Elements Li, Be, B by Galactic Cosmic Rays in Space and its Relation with stellar Observations, *Astronomy & Astrophysics* 15, 337-359.
- Meyer, B.S., 1994. The r-, s- and p- Processes in Nucleosynthesis, *Annual Review of Astronomy and Astrophysics* 32, 153-190.

- Meyer, B.S., Clayton, D.D., 2000. Short-lived radioactivities and the birth of the Sun, *Space Science Reviews* 92, 133-152.
- Meyer, B.S., Clayton, D.D., The, L.-S., El Eid, M.F., 2003. Injection of ^{182}Hf into the early solar nebula, LPSC XXXIV # 2074.
- Minster, J.-F., Birck, J.L., Allègre, C.J., 1982. Absolute Age of Formation of Chondrites Studied by the ^{87}Rb - ^{87}Sr Method, *Nature* 300, 414-419.
- Mittlefehldt, D.W., McCoy, T.J., Goodrich, C.A., Kracher, A., 1998. Non-chondritic meteorites from asteroidal bodies, in: J.J. Papike (Eds.), *Reviews in Mineralogy*, Vol. 36 Planetary Materials., pp.
- Miyamoto, M., Koizumi, E., Mikouchi, T., 2008. A wide range of the cooling rate of type II porphyritic olivine chondrules in Semarkona (LL3.O), LPSC XXXIX # 1587.
- Montmerle, T., 2002. Irradiation phenomena in young solar-type stars and the early solar system: X-ray observations and gamma-ray constraints, *New Astronomy Reviews* 46, 573-583.
- Montmerle, T., Augereau, J.-C., Chaussidon, M., Gounelle, M., Marty, B., Morbidelli, A., 2006. Solar System Formation and Early Evolution: the First 100 Million Years, *Earth, Moon and Planets* 98, 39-95.
- Morbidelli, A., Levison, H.F., Tsiganis, K., Gomes, R., 2005. Chaotic Capture of Jupiter's Trojan Asteroids in the Early Solar System, *Nature* 435, 462-465.
- Mostefaoui, S., Kita, N.T., Togashi, S., Tachibana, S., Nagahara, H., Morishita, Y., 2002. The relative formation ages of ferromagnesian chondrules inferred from their initial aluminum-26/aluminum-27 ratios, *Meteoritics & Planetary Science* 37, 421-438.
- Mostefaoui, S., Lugmair, G.W., Hoppe, P., ElGoresy, A., 2004. Evidence for live ^{60}Fe in meteorites, *New Astronomy Reviews* 48, 155-159.
- Nagahara, H., 1981. Evidence for Secondary Origin of Chondrules, *Nature* 292, 135-136.
- Nagahara, H., 1983. Chondrules Formed Through Incomplete Melting of the Pre-existing Mineral Clusters and the Origin of Chondrules, in: (Eds.), *Chondrules and their Origins*, Houston, TX, Lunar and Planetary Institute, pp. 211-222
- Nagahara, H., Kita, N.T., Ozawa, K., Morishita, Y., 1999. Condensation during Chondrule Formation: Elemental and Mg Isotopic Evidence, LPSC XXXI # 1342.
- Nagahara, H., Kita, N.T., Ozawa, K., Morishita, Y., 2008. Condensation of major elements during chondrule formation and its implication to the origin of chondrules, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 72, 1442-1465.
- Nagashima, K., Krot, A.N., Chaussidon, M., 2007. Aluminum-magnesium isotope systematics of chondrules from CR chondrites, *Meteoritics & Planetary Science* 42, A115-A115.
- Nagashima, K., Krot, A.N., Hua, X., 2007. Common presence of ^{16}O -rich melilite in calcium-aluminum-rich inclusions from the least metamorphosed CV carbonaceous chondrite Kaba, LPSC XXXVIII # 2059.
- Nagashima, K., Krot, A.N., Huss, G.R., 2008. ^{26}Al in chondrules from CR Carbonaceous Chondrites, LPSC XXXIX abstract #2224,
- Nelson, L.S., Blander, M., Skaggs, S.R., Keil, K., 1972. Use of CO_2 Laser to Prepare Chondrule-like Spherules from Supercooled Molten Oxide and Silicate Droplets, *Earth and Planetary Science Letters* 14, 338-344.
- Ouellette, N., Desch, S.J., Hester, J.J., Leshin, L., 2005. A nearby supernova injected short-lived radionuclides into our protoplanetary disk, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 527
- Pack, A., Palme, H., 2003. Partitioning of Ca and Al between forsterite and silicate melt in dynamic systems with implications for the origin of Ca, Al-rich forsterites in primitive meteorites, *Meteoritics and Planetary Science* 38, 1263-1281.
- Pack, A., Palme, H., Shelley, M.G., 2005. Origin of Chondritic Forsterite Grains, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 69, 3159-3182.
- Pack, A., Yurimoto, H., Palme, H., 2004. Petrographic and Oxygen-isotopic Study of Refractory Forsterites from R-chondrite Dar al Gani 013 (R3.5-6), Unequilibrated Ordinary and Carbonaceous Chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 68, 1135-1157.

- Palme, H., Jones, R.H., 2003. Solar System Abundances of the Elements, in: H.D. Holland, K.K. Turekian (Eds.), *Treatise on Geochemistry*, Vol. 1, Meteorites, Comets, and Planets, A.M. Davis (Ed.), Elsevier, pp. 41-61
- Patterson, C., 1956. Age of Meteorites and the Earth, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 10, 230-237.
- Petry, C., Chakraborty, S., Palme, H., 2004. Experimental determination of Ni diffusion coefficients in olivine and their dependence on the temperature, composition, oxygen fugacity and crystallographic orientation, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 68, 4179-4188.
- Podosek, F.A., Swindle, T.D., 1988. Extinct Radionuclides, in: J.F. Kerridge, M.S. Matthews (Eds.), *Meteorites and the Early Solar System*, University of Arizona Press, pp. 1093-1113
- Prentice, A.J.R., 1978. The Origin of the Solar System, *Earth, Moon and Planets* 19, Number 3, 321-417.
- Presnall, D.C., Brenner, N.L., 1974. A method for studying iron silicate liquids under reducing conditions with negligible iron loss, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 38, 1785-1788.
- Qin, L., Dauphas, N., Wadhwa, M., Masarik, J., Janney, P.E., 2008. Rapid accretion and differentiation of iron meteorite parent bodies inferred from ^{182}Hf - ^{182}W and thermal modeling, *Earth and Planetary Science Letters* 273, 94-104.
- Quitte, G., Birck, J.L., 2004. Tungsten Isotopes in Eucrites revisited and the Initial $^{182}\text{Hf}/^{180}\text{Hf}$ of the Solar System based on Iron Meteorite Data, *Earth and Planetary Science Letters* 219, 201-207.
- Radomsky, P.M., Hewins, R.H., 1990. Formation Conditions of Pyroxene-Olivine and Magnesian Olivine Chondrules, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 54, 3475-3490.
- Rambaldi, E.R., 1981. Relict Grains in Chondrules, *Nature* 293, 558-561.
- Rambaldi, E.R., Wasson, J.T., 1981. Metal and associated phases in Bishunpur, a highly unequilibrium ordinary chondrite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 45, 1001-1015.
- Rasmussen, K.L., Haack, H., Uff-Moller, F., 2001. Metallographic cooling rates of group IIF iron meteorites, *Meteoritics & Planetary Science* 36, 883-896.
- Reed, S.J.B., 1984. Secondary-ion mass spectrometry/ion probe analysis for rare-earths, in: O. Johari (Eds.), *Scanning Electron Microscopy*, pp. 529-535
- Reid, A.M., Bass, M.N., Fujita, H., Kerridge, J.F., Frederiksson, K., 1970. Olivine and pyroxene in the Orgueil meteorite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 34, 1253-1255.
- Ricard, Y., Sramek, O., Dubuffet, F., 2009. A multi-phase model of runaway core-mantle segregation in planetary embryos, *Earth and Planetary Science Letters* 284, 144-150.
- Richter, F.M., Davis, A.M., DePaolo, D.J., Watson, E.B., 2003. Isotope Fractionation by Chemical Diffusion between Molten Basalt and Rhyolite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 67, 3905-3923.
- Richter, F.M., Davis, A.M., Ebel, D.S., Hashimoto, A., 2002. Elemental and Isotopic Fractionation of Type B Calcium-, Aluminium-rich Inclusions: Experiments, Theoretical Considerations, and Constraints on their Thermal Evolution, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 66, 521-540.
- Richter, F.M., Janney, P.E., Mendybaev, R.A., Davis, A.M., Wadhwa, M., 2007. Elemental and Isotopic Fractionation of Type B CAI-like Liquids by Evaporation, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 71, 5544-5564.
- Roeder, P.L., Emslie, R.F., 1970. Olivine-liquid equilibrium, *Contributions to Mineralogy and Petrology* 29, 275-289.
- Rollion-Bard, C., 2001. Variabilité des isotopes de l'oxygène dans les coraux Porites : Développement et implications des microanalyses d'isotopes stables (B, C et O) par sonde ionique, Thèse CRPG-INPL.
- Rubin, A.E., Krot, A.N., 1996. Multiple heating of chondrules, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), *International conference: Chondrules and the protoplanetary disk*, Cambridge University Press, pp. 173-180
- Rubin, A.E., Wasson, J.T., 1988. Chondrules and Matrix in the Ornans CO3 Meteorite: Possible Precursor Components, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 52, 425-432.

- Rudraswami, N.G., Goswami, J.N., 2007. Al-26 in chondrules from unequilibrated L chondrites: Onset and duration of chondrule formation in the early solar system, *Earth and Planetary Science Letters* 257, 231-244.
- Rudraswami, N.G., Goswami, J.N., Chattopadhyay, B., Sengupta, S.K., Thapliyal, A.P., 2008. Al-26 records in chondrules from unequilibrated ordinary chondrites: II. Duration of chondrule formation and parent body thermal metamorphism, *Earth and Planetary Science Letters* 274, 93-102.
- Rugel, G., Faestermann, T., Korschnek, G., Poutivtsev, M., Schumann, D., Kivel, N., Günther-Leopold, R., Weinreich, R., Wohlmuther, M., 2009. New Measurement of the ^{60}Fe Half-life, *Physical review Letters* 2009, 1-4.
- Russell, S., Huss, G.R., Macpherson, G.J., Wasserburg, G.J., 1997. Early and Late Chondrule Formation: New Constraints for Solar Nebula Chronology from $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ in Unequilibrated Ordinary Chondrites, LPSC XXVIII abstract #1468,
- Russell, S.S., Srinivasan, G., Huss, G.R., Wasserburg, G.J., MacPherson, G.J., 1996. Evidence for widespread Al-26 in the solar nebula and constraints for nebula time scales, *Science* 273, 757-762.
- Ruzicka, A., Hiyagon, H., Hutson, M., Floss, C., 2007. Relict Olivine, Chondrule Recycling, and the Evolution of Nebular Oxygen Reservoirs, *Earth and Planetary Science Letters* 257, 274-289.
- Ruzicka, A., Hiyagon, H., Prinz, M., Taylor, L.A., 2000. Forsteritic olivine grains in unequilibrated ordinary chondrites: Additional evidence for a link between ordinary and carbonaceous chondrites, LPSC XXXI # 1313.
- Safronov, V.S., 1972. Evolution of the Protoplanetary Cloud and Formation of the Earth and Planets, Translated from Russian: Israel Program for Scientific Translation 212.
- Sahijpal, S., Goswami, J.N., 1998. Refractory phases in primitive meteorites devoid ^{26}Al and ^{41}Ca : Representative samples of first Solar System solids?, *Astrophysical Journal* 509, 137-140.
- Sanders, I.S., Taylor, G.J., 2005. Implications of ^{26}Al in Nebular Dust: Formation of Chondrules by Disruption of Molten Planetesimals, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP Conference Series, pp. 915-932
- Saxton, J.M., Lyon, I.C., Turner, G., 1998. Oxygen isotopes in forsterite grains from Julesburg and Allende: Oxygen-16-rich material in an ordinary chondrite, *Meteoritics and Planetary Science* 33, 1017-1027.
- Schärsten, A., Elliott, T., Hawkesworth, C., Russell, S., Masarik, J., 2006. Hf-W evidence for rapid differentiation of iron meteorite parent bodies, *Earth and Planetary Science Letters* 241, 530-542.
- Schmidt, O.Y., 1944. Meteorite Theory of the Origin of the Earth and Planets, *Doklady AN USSR* 45,
- Scott, E.R.D., 1977. Pallasites - Metal composition, classification and relationships with iron-meteorites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 41, 349-360.
- Scott, E.R.D., Krot, A.N., 2003. Chondrites and their Components, in: H.D. Holland, K.K. Turekian (Eds.), *Treatise on Geochemistry*, Vol. 1, Meteorites, Comets, and Planets, A.M. Davis (Ed.), Elsevier, pp. 143-200
- Scott, E.R.D., Krot, A.N., 2005. Chondritic Meteorites and the High-Temperature Nebular Origins of Their Components, in: A.N. Krot, E.R.D. Scott, B. Reipurth (Eds.), *Chondrites and the Protoplanetary Disk*, ASP conference Series, pp. 15-53
- Scott, E.R.D., Taylor, G.J., 1983. Chondrules and Other Components in C, O, and E Chondrites: Similarities in their Properties and Origins, *Proceedings of the 14th Lunar and Planetary Science Conference*, *Journal of Geophysical Research* 88, 275-286.
- Scott, E.R.D., Wasson, J.T., 1975. Classification and Properties of Iron Meteorites, *Reviews Geophys. Space Phys.* 13, 527-546.
- Sears, D.W., Dodd, R.T., 1988. Overview and Classification of Meteorites, in: J.F. Kerridge, M.S. Matthews (Eds.), *Meteorites and the Early Solar System*, University of Arizona Press, pp.

10-91

- Sears, D.W., Huang, S., Benoit, P.H., 1996. Open-system Behaviour during Chondrule Formation, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), International conference: Chondrules and the protoplanetary disk, Cambridge University Press, pp. 221-231
- Sears, D.W., Kallemeyn, G.W., Wasson, J.T., 1982. The compositional classification of chondrites .2. The enstatite chondrite groups, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 46, 597-608.
- Sears, D.W., Lyon, I.C., Saxton, J.M., Turner, G., 1998. The oxygen isotope properties of olivines in the Semarkona ordinary chondrite, *Meteoritics and Planetary Science* 33, 1029-1032.
- Sheppard, S.S., 2009. <http://www.dtm.ciw.edu/users/sheppard>,
- Shi, P., 1993. low pressure phase relationship in the system Na₂O-CaO-FeO-MgO-Al₂O₃-SiO₂ at 1100°C with implications for the differentiation of basaltic magmas, *J. Petrology* 34, 743-762.
- Shi, P., Libourel, G., 1991. The effect of FeO on the system CMAS at low pressure and implications for basalt crystallization processes, *Contributions to Mineralogy and Petrology* 108, 129-145.
- Shimizu, N., Hart, S.R., 1982. Applications of the ion microprobe to geochemistry and cosmochemistry, *Annual Review of Earth and Planetary Sciences* 10, 483-526.
- Shimizu, N., Semet, M.P., Allègre, C.J., 1978. Geochemical applications of quantitative ion-microprobe analysis, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 42, 1321-1334.
- Shu, F.H., Shang, H., Glassgold, A.E., Lee, T., 1997. X-rays and Fluctuating X-winds from Protostars, *Science* 277, 1475-1479.
- Shu, F.H., Shang, H., Gounelle, M., Glassgold, A.E., Lee, T., 2001. The Origin of Chondrules and Refractory Inclusions in Chondritic Meteorites, *Astrophysical Journal* 548, 1029.
- Shu, F.H., Shang, H., Lee, T., 1996. Toward an Astrophysical Theory of Chondrites, *Science* 271, 1545-1552.
- Slodzian, G., 1980. Microanalyzers using secondary ion emission: Advanced in electronics and electron physics, supplement 13B, Academic Press 1-44.
- Srinivasan, G., Goswami, J.N., Bhandari, N., 1999. Al-26 in eucrite Piplia Kalan: Plausible heat source and formation chronology, *Science* 284, 1348-1350.
- Srinivasan, G., Ulyanov, A.A., Goswami, J.N., 1994. 41Ca in the Early Solar System, *Astrophysical Journal* 431, 67-70.
- Steele, I.M., 1985. Cathodoluminescence zoning and minor elements in forsterites from Murchison (CM2) and Allende (CV3) carbonaceous chondrites, *Nature* 313, 294-297.
- Steele, I.M., 1986. Compositions and textures of relict forsterite in carbonaceous and unequilibrated ordinary chondrites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 50, 1379-1395.
- Steele, I.M., 1995. Oscillatory zoning in meteorite forsterite, *American Mineralogist* 80, 823-832.
- Stolper, E., Paque, J.M., 1986. Crystallization Sequences of Ca-Al-rich Inclusions from Allende: The Effect of Cooling Rate and Maximum Temperature, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 50, 1785-1806.
- Storms, H.A., Brown, K.F., Stein, J.D., 1977. Evaluation of a cesium positive ion source for secondary ion mass spectrometry, *Anal. Chem.* 49, 2023-2030.
- Sugiura, N., Krot, A.N., 2007. 26Al-26Mg systematics of Ca-Al-rich inclusions, amoeboid olivine aggregates and chondrules from the ungrouped carbonaceous chondrite Acfer 094, *meteoritics & Planetary Science* 42, 1183-1195.
- Sugiura, N., Shuzou, Y., Ulyanov, A.A., 2001. Beryllium-boron and aluminium-magnesium chronology of calcium-aluminium-rich inclusions in CV chondrites, *Meteoritics and Planetary Science* 36, 1397-1408.
- Symes, S.J., Lofgren, G.E., 1999. Distribution of FeO and MgO between olivine and melt in natural and experimental chondrules, *LPSC XXXI* # 1869.
- Tachibana, S., Huss, G.R., 2003. The Initial abundance of 60Fe in the Solar System, *Astrophysical Journal* 588, 41-44.
- Tachibana, S., Nagahara, H., Mostefaoui, S., Kita, N.T., 2003. Correlation between Relative Ages Inferred from 26Al and Bulk Compositions of Ferromagnesian Chondrules in Least Equili-

- brated Ordinary Chondrites, *Meteoritics and Planetary Science* 38, 939-962.
- Tatsumoto, M., Knight, R.J., Allègre, C.J., 1973. Time Differences in the Formation of Meteorites as Determined from the Ratio of Lead-207 to Lead-206, *Science* 180, 1279-1283.
- Taylor, G.J., Scott, E.R.D., Keil, K., 1983. Cosmic Setting for Chondrule Formation, in: (Eds.), *Chondrules and their Origins*, TX, Lunar and Planetary Institute, pp. 262-278
- Teng, F.-Z., Ke, S., Marty, B., Dauphas, N., Huang, S., Pourmand, A., 2010. The Magnesium Isotopic Composition of the Earth and Chondrites, LPSC XXXXI abstract #2019,
- Thiemens, M.H., 1996. Mass-independent Isotopic Effects in Chondrites: The Role of Chemical Processes, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), *International conference: Chondrules and the protoplanetary disk*, Cambridge University Press, pp. 107-118
- Thrane, K., Bizzarro, M., Baker, J.A., 2006. Extremely brief formation interval for refractory inclusions and uniform distribution of Al-26 in the early solar system, *Astrophysical Journal* 646, L159-L162.
- Tilton, G.R., 1988. Age of the Solar System, in: J.F. Kerridge, M.S. Matthews (Eds.), *Meteorites and the Early Solar System*, University of Arizona Press, pp. 259-275
- Tissandier, L., Libourel, G., Robert, F., 2002. Gas-melt interactions and their bearing on chondrule formation, *meteoritics & Planetary Science* 37, 1377-1389.
- Tomiyaama, T., Bizzarro, M., Krot, A.N., Huss, G.R., Bunch, T.E., 2006. Timing of differentiation of pallasite parent bodies: evidence from Al-Mg system, *Meteoritics and Planetary Science* 41, 5086.
- Toppani, A., Libourel, G., Robert, F., Ghanbaja, J., 2006. Laboratory condensation of refractory dust in protosolar and circumstellar conditions, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 70,
- Truran, J.W., Jr., Heger, A., 2003. Origin of the Elements, in: H.D. Holland, K.K. Turekian (Eds.), *Treatise on Geochemistry*, Vol. 1, Meteorites, Comets, and Planets, A.M. Davis (Ed.) Elsevier, pp. 1-15
- Tsiganis, K., Gomes, R., Morbidelli, A., Levison, H.F., 2005. Origin of the Orbital Architecture of the Giant Planets of the Solar System, *Nature* 435, 459-461.
- Tsuchiyama, A., Osada, Y., Nakano, T., Uesugi, K., 2004. Experimental Reproduction of Classic Barred Olivine Chondrules: Open-system Behavior of Chondrule Formation, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 68, 653-672.
- Urey, H.C., 1955. The cosmic abundances of potassium, uranium, and thorium and the heat balances of the Earth, the Moon, and Mars, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 41, 127-144.
- Urey, H.C., 1956. Diamonds, Meteorites, and the Origin of the Solar System, *Astrophysical Journal* 124, 623-637.
- Urey, H.C., Craig, H., 1953. The Composition of the Stone Meteorites and the Origin of the Meteorites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 4, 36-82.
- Van Schmus, W.R., Wood, J.A., 1967. A Chemical-Petrologic Classification for the Chondritic Meteorites, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 31, 747-765.
- Varela, M.E., Kurat, G., Hoppe, P., Brandstätter, F., 2002. Chemistry of glass inclusions in olivines of the CR chondrites Renazzo, Acfer 182, and El Djouf 001, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 66, 1663-1679.
- Villeneuve, J., Chaussidon, M., Libourel, G., 2009. Homogeneous Distribution of Al-26 in the Solar System from the Mg Isotopic Composition of Chondrules, *Science* 325, 985-988.
- Von Ardenne, M., 1956. Tabellen der Elektronenphysik Ionen-physik und übermikroskopie 543-555.
- Wadhwa, M., Russell, S.S., 2000. Timescales of Accretion and Differentiation in the Early Solar System: The Meteoritic Evidence, in: (Eds.), *Protostars and Planets IV*, University of Arizona Press, pp. 995-1018
- Wang, J., Davis, A.M., Clayton, R.N., Mayeda, T.K., Hashimoto, A., 2001. Chemical and isotopic fractionation during the evaporation of the FeO-MgO-SiO₂-CaO-Al₂O₃-TiO₂ rare earth element melt system, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 65, 479-494.
- Wasserburg, G.J., 1987. Isotopic Abundances: Inferences on Solar System and Planetary Evolution,

- Earth and Planetary Science Letters 86, 129-173.
- Wasserburg, G.J., Busso, M., Gallino, R., Raiteri, C.M., 1994. Asymptotic giant branch stars as a source of short-lived radioactive nuclei in the solar nebula, *Astrophysical Journal* 424, 412-428.
- Wasserburg, G.J., Lee, T., Papanastassiou, D.A., 1977. Correlated O and Mg Isotopic Anomalies in allende Inclusions: II Magnésium, *Geophysical Research Letters* 4, 299-302.
- Wasson, J.T., Choi, B.-G., 2003. Main-group pallasites: chemical composition, relationship to IIIAB irons and origin, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 67, 3079-3096.
- Wasson, J.T., Chou, C.-L., 1974. Fractionation of Moderately Volatile Elements in Ordinary Chondrites, *Meteoritics* 9, 69-84.
- Wasson, J.T., Kallemeyn, G.W., Rubin, A.E., 1988. Group and type compositions of ordinary chondrites - Excepting volatiles, no relationship between type and composition, *Meteoritics* 23, 309-309.
- Weidenschilling, S.J., 2005. Formation of the Cores of the Outer Planets, *Space Science Reviews* 116, 53-66.
- Weidenschilling, S.J., Cuzzi, J.N., 1993. Formation of Planetesimals in the Solar Nebula, in: E.H. Levy, J.I. Lunine (Eds.), *Protostars and Planets III*, Arizona Press, pp. 1031-1060
- Weidenschilling, S.J., Marzari, F., Hood, L.L., 1998. The Origin of Chondrules at Jovian Resonances, *Science* 279, 681-684.
- Weinbruch, S., Büttner, H., Holzheid, A., Rosenhauer, M., Hewins, R.H., 1998. On the Lower Limit of Chondrule Cooling Rates: The Significance of Iron Loss in Dynamic Crystallization Experiments, *Meteoritics and Planetary Science* 33, 65-74.
- Weinbruch, S., Palme, H., Spettel, B., 2000. Refractory fosterite in primitive meteorites: condensates from the solar nebula?, *Meteoritics and Planetary Science* 35, 161-171.
- Weinbruch, S., Zinner, E., El Goresy, A., Steele, I.M., Palme, H., 1993. Oxygen isotopic composition of individual olivine grains from the Allende meteorite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 57, 2649-2661.
- Weisberg, M.K., McCoy, T.J., Krot, A.N., 2006. Systematics and Evaluation of Meteorite Classification, in: D.S. Lauretta, H.Y. McSween (Eds.), *Meteorites and the early solar system II*, The University of Arizona Press, pp. 19-52
- Weissman, P.R., 2007. The Solar System and its Place in the Galaxy, in: L.-A. McFadden, P.R. Weissman, T.V. Johnson (Eds.), *Encyclopedia of the Solar System*, Academic Press, pp. 1-28
- Wetherill, G.W., 1992. An alternative model for the formation of the asteroids, *Icarus* 100, 307-325.
- Whattam, S.A., Hewins, R.H., Cohen, B.A., Seaton, N.C., Prior, D.J., 2008. Granoblastic olivine aggregates in magnesian chondrules: planetesimal fragments or thermally annealed solar nebula condensates?, *Earth and Planetary Science Letters* 269, 200-211.
- Wood, J.A., 1984. On the Formation of Meteoritic Chondrules by Aerodynamic Drag Heating in the Solar Nebula, *Earth and Planetary Science Letters* 70, 11-26.
- Wood, J.A., 1996. Unresolved Issues in the Formation of Chondrules and Chondrites, in: R.H. Hewins, R.H. Jones, E.R.D. Scott (Eds.), *International conference: Chondrules and the protoplanetary disk*, Cambridge University Press, pp. 55-70
- Wood, J.A., Holmberg, B.B., 1994. Constraints Placed on the Chondrule-forming Process by Merrihueite in the Mezö-Madaras Chondrite, *Icarus* 108, 309-324.
- Wood, J.A., Morfill, G.E., 1988. A review of solar nebula models, in: J.F. Kerridge, M.S. Matthews (Eds.), *Meteorites and the Early Solar System*, University of Arizona Press, pp. 329-347
- Wolfson, M.M., 1964. A Capture Theory of the Origin of the Solar System, *Proc. R. Soc. Lond.* A282, 485.
- Wolfson, M.M., 1993. The Solar System - its Origin and Evolution, *Q. J. R. astr. Soc.* 34, 1-20.
- Wolfson, M.M., 2000. The Origin and the Evolution of the Solar System, in: M. Elvis, A. Natta (Eds.), *Institute of Physics Publishing, London*, pp. 429
- Yoneda, S., Grossman, L., 1995. Condensation of CaO-MgO-Al₂O₃-SiO₂ Liquids from Cosmic Gases, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 59, 3413-3444.
- Young, E.D., Galy, A., Nagahara, H., 2002. Kinetic and equilibrium mass-dependant isotope frac-

- tionation laws in nature and their geochemical and cosmochemical significance, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 66, 1095-1104.
- Young, E.D., Simon, J.I., Galy, A., Russell, S.S., Tonui, E., Lovera, O., 2005. Supra-canonical Al-26/Al-27 and the residence time of CAls in the solar protoplanetary disk, *Science* 308, 223-227.
- Yu, Y., Hewins, R.H., 1998. Transient Heating and Chondrule Formation: Evidence from Sodium Loss in Flash Heating Simulation Experiments, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 62, 159-172.
- Yu, Y., Hewins, R.H., Alexander, C.M.O.D., Wang, J., 2003. Experimental Study of Evaporation and Isotopic Mass Fractionation of Potassium in Silicae Melts, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 67, 773-786.
- Yurimoto, H., Kuramoto, K., 2004. Molecular Cloud Origin for the Oxygen Isotope Heterogeneity in the Solar System, *Science* 305, 1763-1766.
- Yurimoto, H., Wasson, J.T., 2002. Extremely rapid cooling of a carbonaceous-chondrite chondrule containing very O-16-rich olivine and a Mg-26-excess, *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 66, 4355-4363.
- Zanda, B., 2004. Chondrules, *Earth and Planetary Science Letters* 224, 1-17.
- Zanda, B., Bourot-Denise, M., Perron, C., Hewins, R.H., 1994. Origin and metamorphic redistribution of Silicon, Chromium, and Chromium, and Phosphorus in the metal of chondrites, *Science* 265, 1846-1849.
- Zinner, E., Crozaz, G., 1986. A method for the quantitative measurement of rare earth elements in the ion microprobe, *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* 69, 17-38.
- Zinner, E., Gopel, C., 1992. Evidence for Al-26 in feldspars from the H4 chondrite Ste-Marguerite, *Meteoritics* 27, 311-312.
- Zinner, E., Gopel, C., 2002. Aluminum-26 in H4 chondrites: Implications for its production and its usefulness as a fine-scale chronometer for early solar system events, *Meteoritics & Planetary Science* 37, 1001-1013.
- Zolensky, M.E., et al., 2006. Mineralogy and petrology of comet 81P/Wild 2 nucleus samples, *Science* 314, 1735-1739.

Annexes

Annexe 1 : Supporting Online Material for «Homogeneous Distribution of ^{26}Al in the Solar System from the Mg Isotopic Composition of Chondrules».

Annexe 2 : Supplementary Material for «Magnesium isotopes constraints on the origin of refractory olivines from the Allende chondrite: nebular versus planetary?»

Annexe 3 : Modèle de formation des chondres porphyriques. Compositions chimiques mesurées et modélisées des chondres de Semarkona et Bishunpur.

Annexe 1

Supporting Online Material

1. Materials and Methods

1.1 Materials

Sem-Ch2 is a round PO (Porphyritic with Olivine) type I (FeO-poor) chondrule which consists of forsteritic olivine (Fo₉₇), low-Ca pyroxene (En₉₀, Wo₆, Fs₄) and Fe, Ni-metal nodules surrounded by microcrystallized mesostasis. Mesostasis is an equilibrated mix of small dendritic high-Ca pyroxenes and glass. Olivine grains are corroded and contain Fe, Ni-metal and rare melt inclusions. In the chondrule periphery, low-Ca pyroxenes form elongated grains which sometime poikilitically enclosed olivine grains.

Sem-Ch121 is a POP (Porphyritic with Olivine and Pyroxene) type I chondrule and consists of forsteritic olivine grains (Fo₉₂) and large low-Ca pyroxenes (En₈₄, Wo₆, Fs₁₀) mostly on the edge. The core of the chondrule contains small corroded olivine surrounded by large patches of glassy mesostasis with dendritic high-Ca pyroxenes. The edges of corroded olivine are mostly enclosed in low-Ca pyroxene. Fe-Ni nodules are very small and rare.

Sem-Ch32 is a PP (Porphyritic with Pyroxene) type I chondrule and exclusively contains elongated and large low-Ca pyroxenes (En₉₀, Wo₁, Fs₉) enclosed in glassy mesostasis with numerous and small dendritic high-Ca pyroxenes. Fe-Ni nodules are small and rare.

Sem-Ch21 and Sem-Ch83 are both similar PO type II (FeO-rich) chondrules and consist of large iron-rich olivines (Fo₆₅ and Fo₇₀ respectively) zoned from the core to the edge (from ~Fo₈₀ to ~Fo₅₀) which sometime poikilitically enclose relict forsteritic olivine (~Fo₉₅). Olivine grains are surrounded by a glassy mesostasis with dendritic high-Ca pyroxenes.

Sem-Ch136 is another PO type II chondrule which is probably more a clast than an entire chondrule. It contains olivine grains (Fo₉₁) surrounded by large patches of glassy mesostasis with dendritic high-Ca pyroxene.

Sem-Ch62, Sem-Ch76, Sem-Ch113 and Sem-Ch114 are POP type II chondrules which consist of large olivine (Fo₆₆, Fo₇₂, Fo₇₀ and Fo₆₄ respectively) and low-Ca pyroxene (En₄₈, Wo₆, Fs₄₅; En₅₆, Wo₁₀, Fs₃₄; En₅₂, Wo₈, Fs₄₀ and En₄₈, Wo₁₀, Fs₄₂ respectively) in similar proportions surrounded by glassy mesostasis. Low-Ca pyroxenes formed elongated grains along the chondrule edge. These chondrules contain no or few high-Ca pyroxenes. Olivine shows a zonation in Fe content from the core to the edge (from ~Fo₄₅ to ~Fo₈₀). They sometimes contain small Fe, Ni-metal nodules.

Sem-Ch137 is a POP type II chondrule which consists of a fractured overlap of iron-rich olivine (Fo₅₇), low-Ca pyroxene (En₅₀, Wo₆, and Fs₄₄), glassy mesostasis and a few plagioclases.

Sem-Ch64, Sem-Ch81 and Sem-Ch138 are PP type II chondrules which contain large euhedral low-Ca pyroxenes (En₅₇, Wo_{<1}, Fs₄₃; En₆₄, Wo₄, Fs₃₂ and En₆₀, Wo_{<1}, Fs₃₉ respectively) surrounded by glassy mesostasis for Sem-Ch138 and glassy mesostasis with small dendritic high-Ca pyroxene for Sem-Ch64 and Sem-Ch81. Fe, Ni-metal nodules are minor. Sem-Ch81 contains rare highly-corroded forsteritic olivine grains, poikilitically enclosed by low-Ca pyroxene, surrounded by glassy mesostasis with small dendritic high-Ca pyroxenes.

Sem-Ch4 is an Al-rich chondrule which mainly contains large forsteritic olivines

(Fo₉₉) surrounded by large patches of mesostasis with dendritic high-Ca pyroxenes; spinel is rare. Small euhedral olivine crystals define a corona at the chondrule edge.

1.2 Methods

The Mg isotopic compositions and the Al/Mg ratios were measured at CRPG-CNRS (Nancy, France) with the Cameca ims 1270 ion microprobe. The samples were sputtered with a 30nA O⁻ primary beam of $\approx 25\mu\text{m}$ diameter. The positive secondary ions accelerated at 10kV were detected in multicollection mode using four Faraday cups (L'2 trolley for ²⁴Mg, C trolley for ²⁵Mg, H1 trolley for ²⁶Mg and H'2 trolley for ²⁷Al). One measurement consists of 40 cycles of 10 seconds counting for a total acquisition time of 400 seconds. To insure large flat top peaks, the mass resolution (M/ Δ M) was kept at the minimum possible value with the ims 1270 multicollection system, i.e. M/ Δ M = 2500 using slit number one. At this mass resolution, ²⁴MgH is not totally resolved from ²⁵Mg (M/ Δ M = 3559 between ²⁴MgH and ²⁵Mg) but high mass resolution analysis of our standards showed that with the current vacuum conditions in the sample chamber (P < 3 × 10⁻⁹ torr), the hydride contribution was kept negligible (< 5 × 10⁻⁶ of the ²⁵Mg peak intensity, i.e. corresponding to less than 0.005 ‰ on $\delta^{25}\text{Mg}$).

Stability of the backgrounds of the Faraday cups

One of the major limiting factors on the precision of the Mg isotope analyses was found to be the small variations of the backgrounds of the Faraday cups. The amplifiers were equipped with a 10¹⁰ ohm resistor for ²⁴Mg and with 10¹¹ Ohm resistors for ²⁵Mg, ²⁶Mg and ²⁷Al. The yields and the backgrounds of the four Faraday cups were determined during each analytical session with the built-in ims 1270 software. Long term variations of up to ± 5000 counts/sec (Fig. S1) for the backgrounds were observed over 10 hours. These variations, if not corrected for, would induce small but significant errors (< ± 0.04 ‰) on $\delta^{25}\text{Mg}$ measured in Mg-rich phases such as olivine (typical count rate of 1×10^9 counts/sec for ²⁴Mg) but much larger errors (< ± 1.3 ‰) in Mg-poor phases like chondrule mesostasis (typical count rate of 3×10^7 counts/sec on ²⁴Mg). Fortunately, detailed monitoring over one hour of background variations showed that short term variations, especially for ²⁵Mg and ²⁶Mg, were not random (Fig. S1) so that a precise correction could be applied for each analysis. The larger variations observed on L'2, due to the 10¹⁰ ohm resistor, were not limiting because ²⁴Mg is the most abundant isotope, i.e. the less sensitive to background variations. Thus the backgrounds on the four Faraday cups were systematically measured every 30 minutes. The values of backgrounds used to correct each analysis were determined from a linear interpolation with time made between the two nearest background measurements (2 analyses between each background analysis).

Instrumental mass fractionation

Five terrestrial standards (San Carlos olivine, Vitim olivine 313-3, Vitim orthopyroxene 313-3, CLDR01V MORB glass and BCR2-G glass) were used to calibrate instrumental mass fractionation of Mg isotopes during ion probe analysis. The instrumental mass fractionation (α) between two phases A and B can be written as an exponential law according to:

$$\alpha_{A/B}^{25/24} = (\alpha_{A/B}^{26/24})^\beta \text{ with } \alpha_{A/B}^{25/24} = ({}^{25}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg})_A / ({}^{25}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg})_B,$$

and β the exponential factor. The average Mg isotopic ratios determined on Vitim orthopyroxene during each session were taken as our reference ratios to calculate the value of α for each measurement. A value was determined for β during each analytical session from the analyses of the terrestrial standards (Fig. S2). The value of β was observed to vary from session to session from ≈ 0.505 to ≈ 0.515 , and being stable at $\approx \pm 0.002$ during one session. Many analytical parameters could explain these variations from session to session. The ${}^{26}\text{Mg}$ excesses (i.e. the deviation from the exponential mass fractionation law), noted $\Delta^{26}\text{Mg}$, are expressed in ‰ as:

$$\Delta^{26}\text{Mg} = (\alpha^{26/24} / ((\alpha^{25/24})^{1/\beta}) - 1) \times 1000$$

$$\text{or as: } \Delta^{26}\text{Mg} \approx \delta^{26}\text{Mg} - (1/\beta \times \delta^{25}\text{Mg} + \delta^{26}\text{Mg}_0)$$

In agreement with their terrestrial nature, the standards (olivine, pyroxene and glass taken together) showed no significant ${}^{26}\text{Mg}$ excesses with an average $\Delta^{26}\text{Mg}$ value of 0.001 ± 0.005 ‰ (2 sigma error on 62 analyses, Fig. S2). The ${}^{26}\text{Mg}$ excesses were calculated for the chondrules using the β value determined from the terrestrial standards. The two sigma internal errors on $\delta^{26}\text{Mg}^*$ (the $\Delta^{26}\text{Mg}$ due to radioactive decay of ${}^{26}\text{Al}$) were calculated from the counting statistics on ${}^{25}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg}$ and ${}^{26}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg}$ ratios according to:

$$2\sigma_{\delta^{26}\text{Mg}^*} = 2 \times (\sigma_{\delta^{26}\text{Mg}}^2 + (1/\beta \times \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}})^2 - 2 \times (1/\beta) \times \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}} \times \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}} \times \rho)^{0.5}$$

$$\text{with } \rho = \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}}^2 + \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}}^2 + \sigma_{\delta^{(26\text{Mg}/25\text{Mg})}}^2 / (2 \times \sigma_{\delta^{25}\text{Mg}} \times \sigma_{\delta^{26}\text{Mg}})$$

A typical value of 0.6 was obtained for ρ (correlation factor between $\delta^{25}\text{Mg}$ and $\delta^{26}\text{Mg}$), yielding two sigma internal errors for $\delta^{26}\text{Mg}^*$ in chondrules ranging from ± 0.015 ‰ to ± 1.983 ‰ (Table S1). Theoretically, the final two sigma error on $\delta^{26}\text{Mg}^*$ in chondrules is calculated by adding in quadratic way to the internal error due to counting statistics, the two sigma external error determined on the standards (± 0.005 ‰, Fig. S2), but this external error however is negligible in comparison to internal errors.

The non-radiogenic $\delta^{25}\text{Mg}$ variations in chondrules cannot be determined with the same high precision as that for $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values (i.e. ± 0.02 ‰ for olivine, see above). This is due to the fact that (i) instrumental mass fractionation varies by up to ± 0.5 ‰ (in Vitim olivine for instance) during a given analytical session and (ii) large matrix effects exist for Mg isotopes within silicates, e.g. ≈ 5 ‰ difference of instrumental mass fractionation in $\delta^{25}\text{Mg}$ between Vitim olivine and CLDR01 MORB glass (the five standards coming from fresh mantle rocks were assumed to have a $\delta^{25}\text{Mg}$ of 0‰). In addition, large matrix effects are also present in olivines depending on their Fe content (e.g. ≈ 4 ‰ difference of instrumental mass fractionation in $\delta^{25}\text{Mg}$ between a Fo_{100} and a Fo_{70}) and in glasses depending on their compositions. Because of the high precision of the measured ${}^{25}\text{Mg}/{}^{24}\text{Mg}$ ratios (typical 1 sigma counting statistics range from 0.006‰ to 0.6‰), a precise correction of instrumental mass fractionation in chondrules would require extremely precise calibration of matrix effects using a dedicated suite of standard minerals (olivines, pyroxenes, basaltic and synthetic glasses, ...) analyzed by MC-ICPMS. This task is in progress but is beyond the scope of the present work aimed at determining precisely ${}^{26}\text{Mg}$ excesses. Fig. S3 shows $\delta^{25}\text{Mg}$ values, corrected at first order instrumental mass fractionation, for all the data reported in Table S1. This is enough to show that none of the chondrules have significant mass fractionation effects

that could be attributed to another source of fractionation (evaporation for example).

Al and Mg ion yields

Because Al and Mg have slightly different ion yields during ion probe analysis, their relative yield [yield Al/Mg = $(^{27}\text{Al}^{+}/^{24}\text{Mg}^{+})_{\text{measured}} / (^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg})_{\text{true}}$] must be determined precisely before any $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratios can be calculated from experimental isochrons. There are no significant matrix effects on the Al/Mg yield within our analytical precision and compositional range as shown by detailed analysis of a set of olivines, pyroxenes and glasses with variable Al/Mg ratios, i.e. $\pm 1.5\%$ of variation between the different minerals. The yields calculated from the standards of glasses, which varied from 0.73 to 0.82 (± 0.005) from session to session, were used to correct the measured $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratios. The variations of Al/Mg yields are significant from session to session depending on the analytical settings and thus must be determined during each session. The 2 sigma errors for the $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratios given in Table S1 are $\pm 7\%$ relative, calculated from counting statistics and the external reproducibility on the Al/Mg yield determined on the standards.

2. Supporting figures

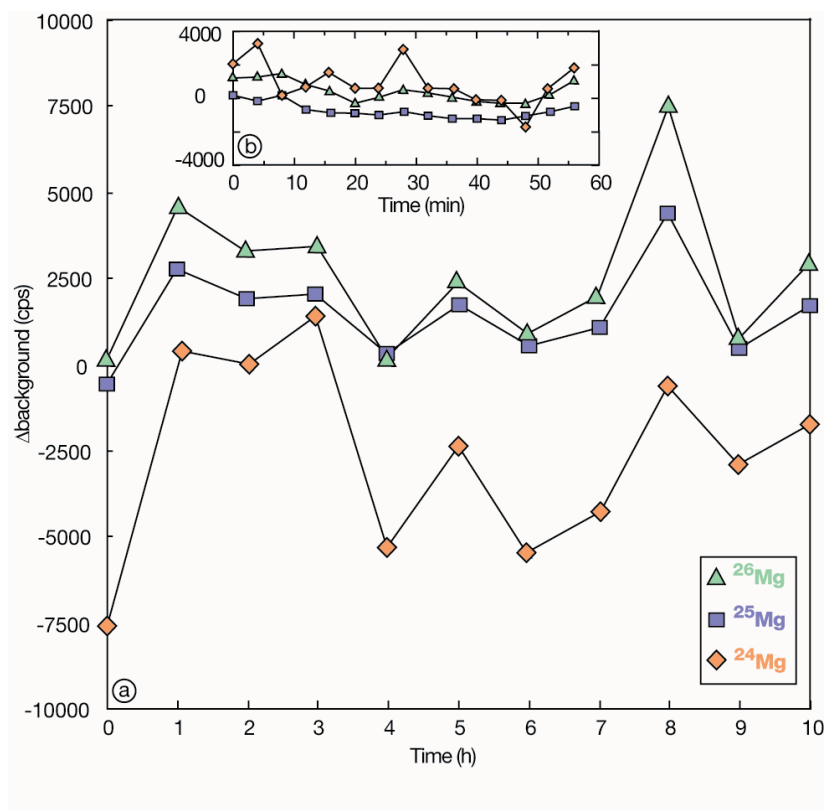


Fig. S1: a) Long term and b) short term background variations of Faraday cups L'2, C and H1 which are used for ^{24}Mg , ^{25}Mg and ^{26}Mg respectively. Each data is the difference between the measured background and the background reference value determined at the beginning of a session. The larger amplitude of the background variations on L'2 is due to the 10^{10} Ohm resistor.

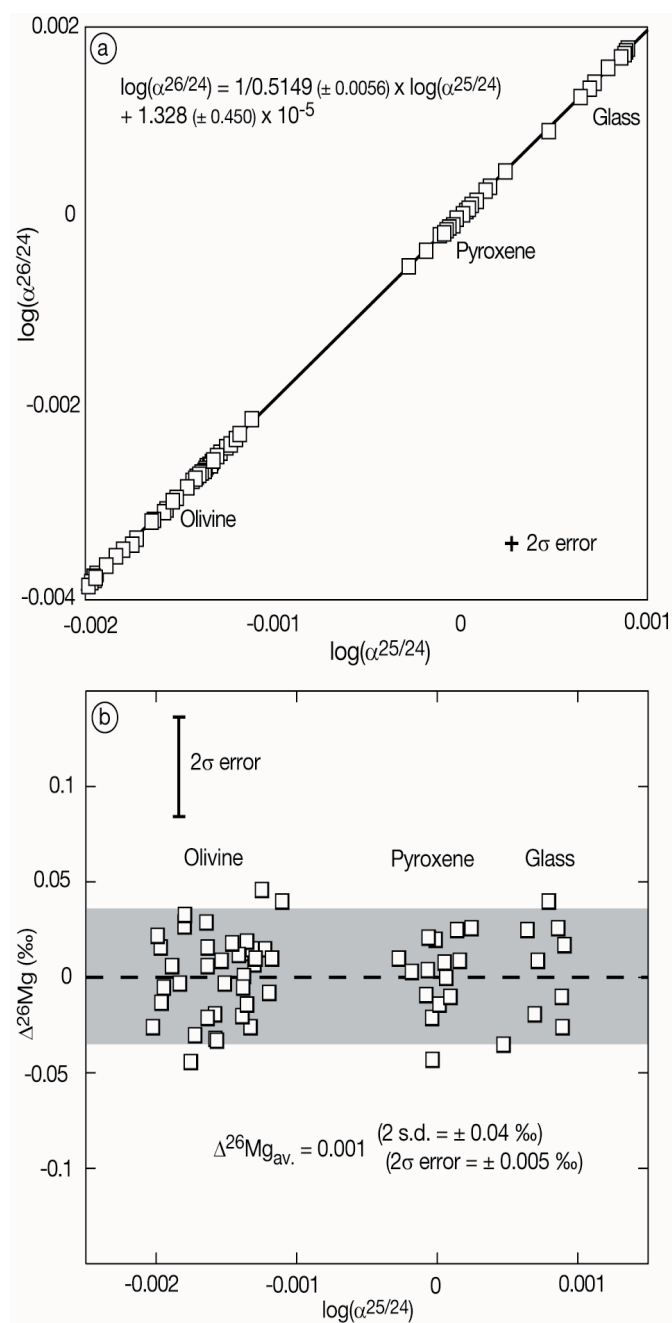


Fig. S2: **a)** An example of the instrumental mass fractionation law for the Mg isotopes obtained for a single analytical session. A very precise value of 0.5149 ± 0.0015 is calculated for β by linear regression, using Isoplot 3.0 software (S17). **b)** ^{26}Mg excesses in olivine, pyroxene and glass standards for one session, expressed as $\Delta^{26}\text{Mg} = (10^{\log \alpha^{26/24}} - (1/0.5149 \times \log \alpha^{25/24} + 0.00001328) - 1) \times 1000$. The 2σ error is calculated by dividing the standard deviation (s.d.) by the square root of the number of standards analyses during the session.

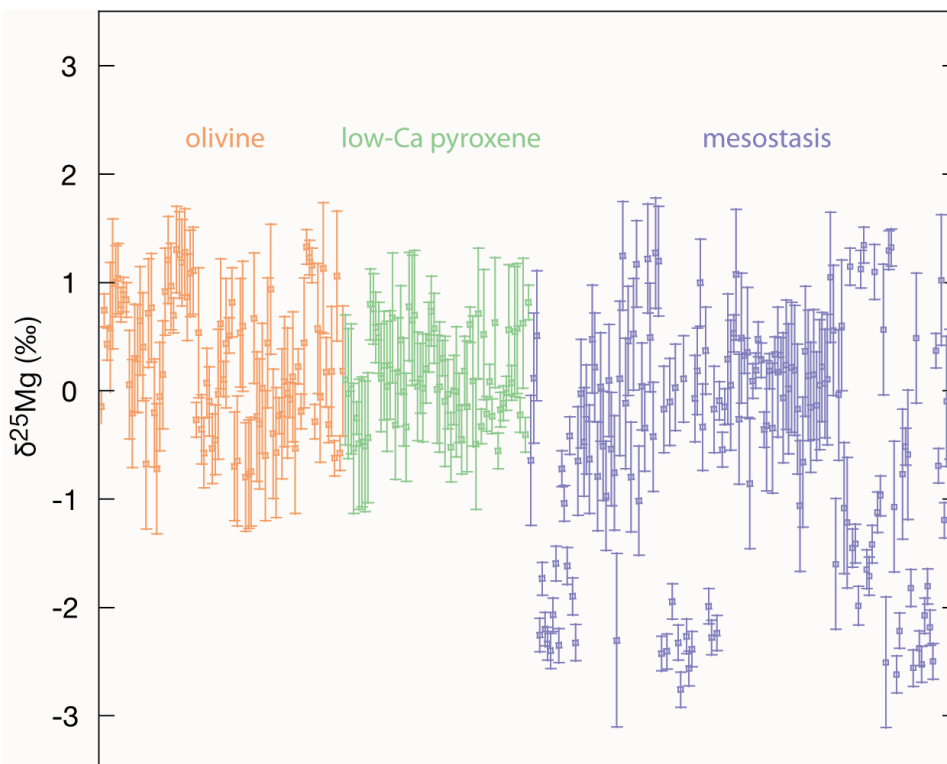
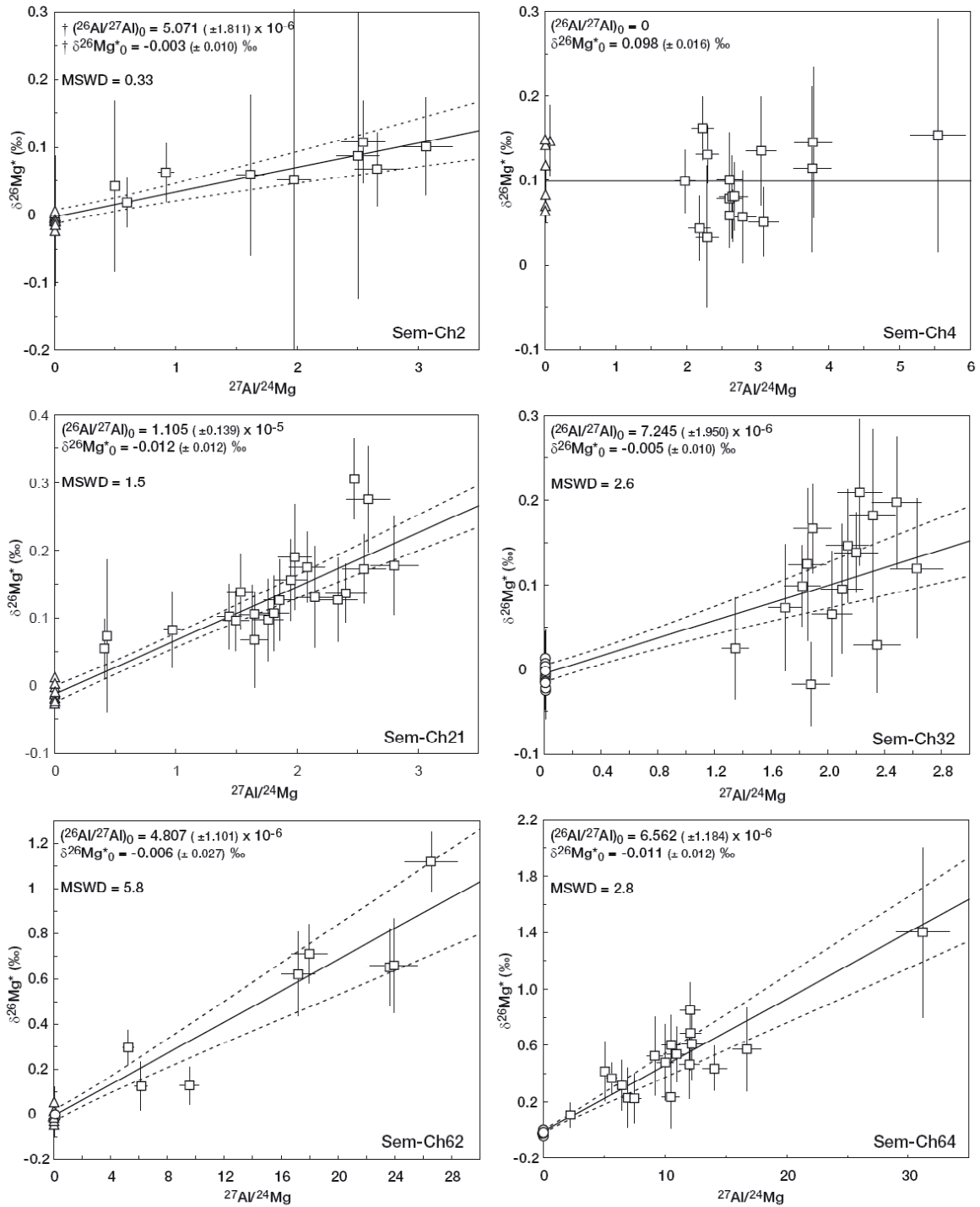
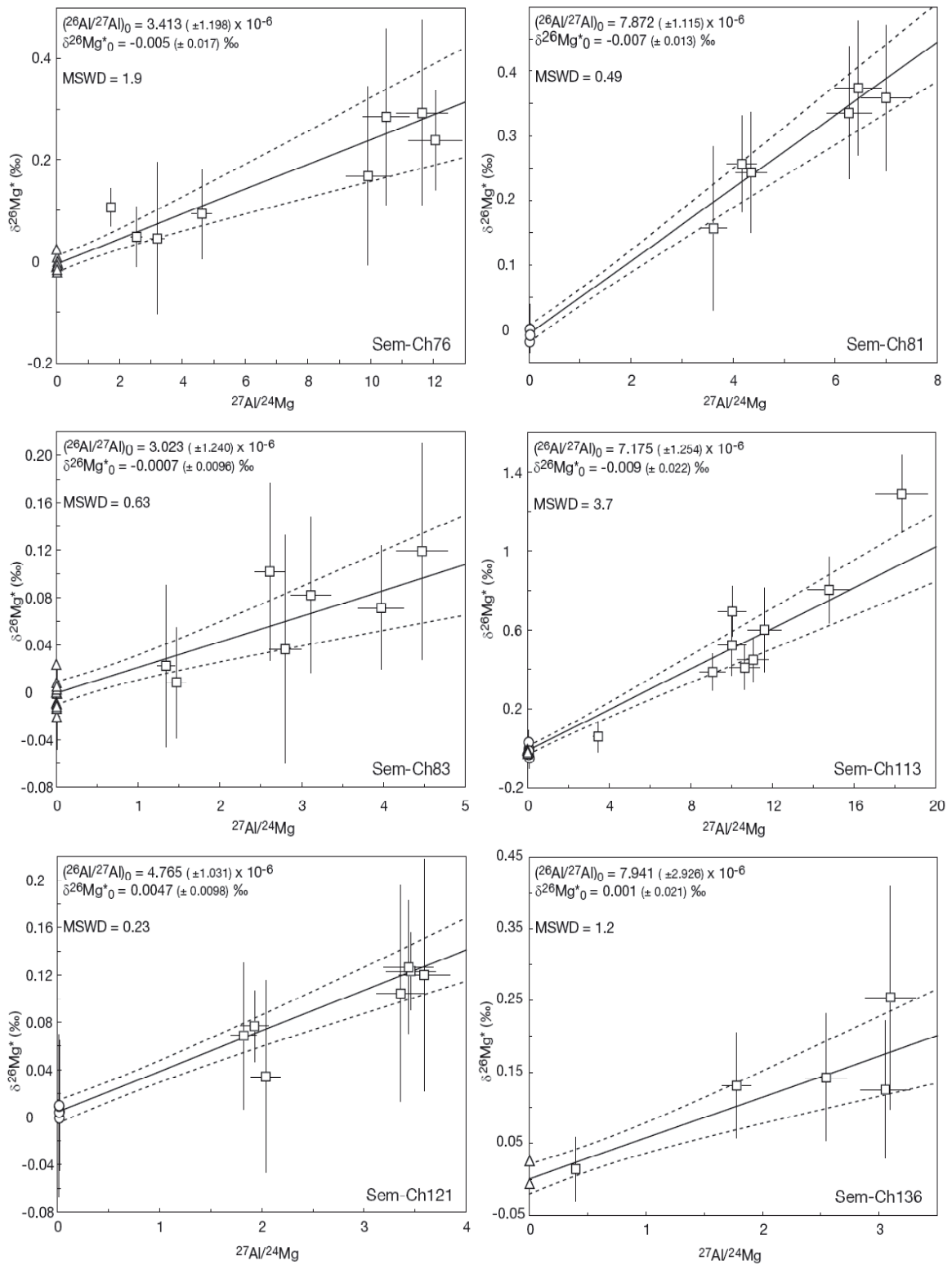


Fig. S3: $\delta^{25}\text{Mg}$ values measured in chondrules, corrected at first order for instrumental mass fractionation determined for terrestrial standards of olivine, low-Ca pyroxene and glass (Fig. S2). Data are not precisely corrected for variations in instrumental mass fractionation due to variations in chemical composition (matrix effect). This could explain the range of variations of ± 1 ‰ observed in olivine and pyroxene. The negative values up to -3 ‰ in mesostasis correspond to analyses performed both in glass (instrumental mass fractionation at about +3 ‰ to +5 ‰ in terrestrial standards) and dendritic crystals of high-Ca pyroxene (instrumental mass fractionation closes to 0 ‰ in terrestrial standards). Two sigma error bars.





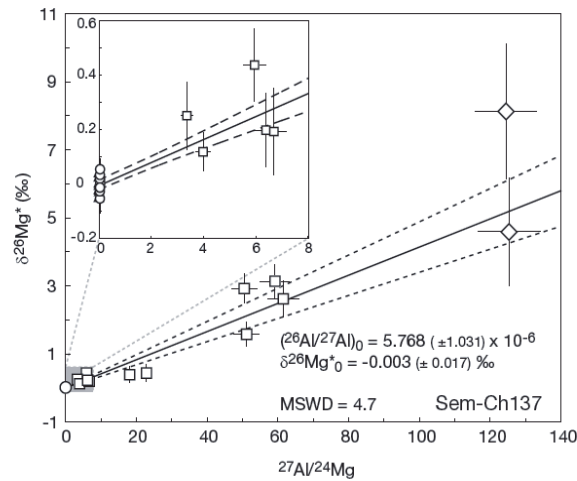


Fig. S4: Isochron diagrams obtained from ion probe analyses for the fifteen Semarkona chondrules (open circles are for low-Ca pyroxene, open triangles for olivine, open square for mesostasis and open diamonds for plagioclase). Two sigma error bars.

† For type I Sem-Ch2, as mentioned in the text, if the Mg-rich olivines did not crystallized from the melt corresponding to the quench mesostasis, then in theory the olivines must not be included in the calculation of the isochron to date chondrule melting. An isochron calculated without olivine data gave a $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ of $3.901 (\pm 2.926) \times 10^{-6}$ and a poorly constrained $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ of $0.016 (\pm 0.038) \text{‰}$. Thus it is not possible to determine a precise isochron only with the mesostasis. However, using the solar nebula growth curve, the $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ would give a $\delta^{26}\text{Mg}^*$ for the hypothetical olivine in equilibrium with the mesostasis of $\approx -0.005 \text{‰}$. If considering this value as the value for olivine crystallized at equilibrium from Sem-Ch2 melt, it is possible to recalculate by iteration an isochron with a good precision with a $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ of $5.057 (\pm 1.811) \times 10^{-6}$ and a $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ of $-0.0029 (\pm 0.012) \text{‰}$. This isochron is the same as the complete one calculated with the olivine data given in Table 1. Varying the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ of these theoretical olivines does not change significantly the $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$. This indicates that if the olivines are relicts, they formed closely before the chondrule (at the time resolution given by the ^{26}Al - ^{26}Mg chronometer and the precision of our data)

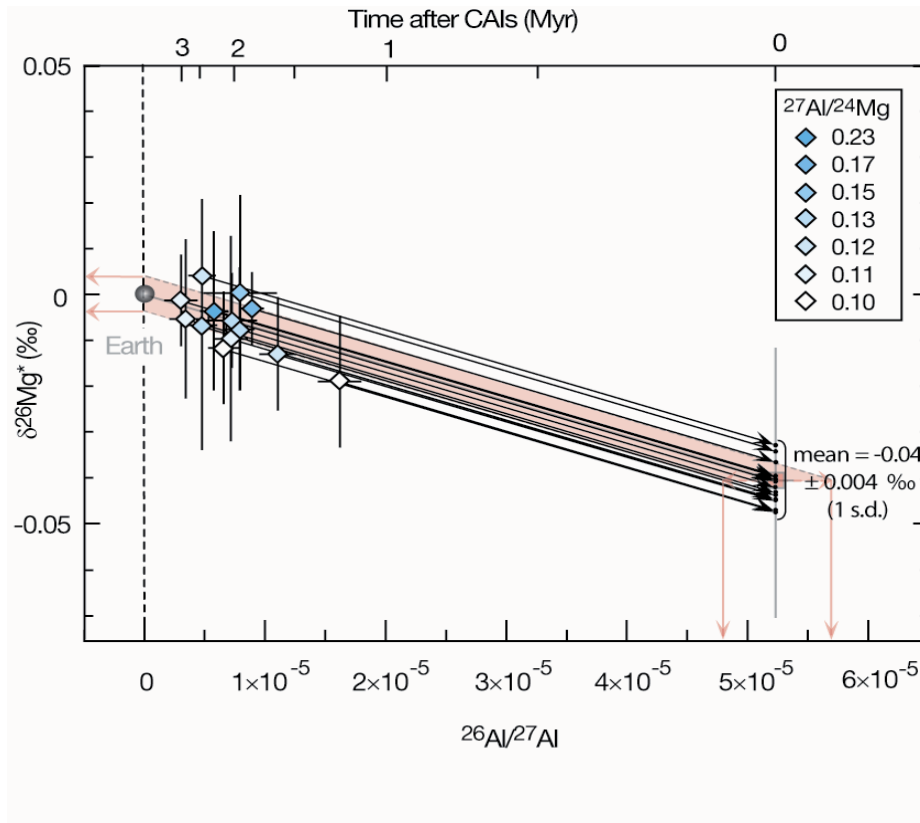


Fig. S5: Method used to calculate the relative heterogeneity of $\approx \pm 10\%$, i.e. $\pm 0.5 \times 10^{-5}$ for $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratios and $\pm 0.004 \text{‰}$ for $\delta^{26}\text{Mg}^*$:

- (i) We assumed that all the variability in chondrules compositions [$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$] is due to initial ^{26}Al heterogeneity, i.e. these chondrules come from gas with heterogeneous $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ compositions.
- (ii) We determined the growth curve by reverse path for each chondrule using the chondritic $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratio (black lines), in order to find the $\delta^{26}\text{Mg}^*$ of the gas from which they come from, at the time of formation of CAIs, i.e. when $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratio was 5.25×10^{-5} (black points).
- (iii) We calculated the mean and the standard deviation of these $\delta^{26}\text{Mg}^*$ (-0.04‰ and $\pm 0.004 \text{‰}$) that gave the heterogeneity of $\delta^{26}\text{Mg}^*$ at the time of formation of CAIs.
- (iv) Finally, we calculated the growth curves considering the two extreme $\delta^{26}\text{Mg}^*$ values (-0.044 and -0.036) and we determined the heterogeneity of the $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ratio of the gas at the time of formation of CAIs ($\pm 0.5 \times 10^{-5}$) for $\delta^{26}\text{Mg}^* = -0.04 \text{‰}$.

3. Supporting tables

Chondrule	Phase	$^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$	$\delta^{26}\text{Mg}^*$ (‰)	Age after CAIs $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ (‰)	Bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$
Sem-Ch2					
1	Olivine	3.6×10^{-3}	-0.023 ± 0.048		
2	Mesostasis	1.976	0.052 ± 0.252		
3	Mesostasis	0.922	0.062 ± 0.044		
4	Mesostasis	0.499	0.042 ± 0.126		
5	Mesostasis	2.503	0.087 ± 0.211		
6	Olivine	7.1×10^{-3}	-0.009 ± 0.095		
7	Olivine	8.5×10^{-3}	-0.004 ± 0.047		
8	Olivine	1.0×10^{-3}	0.009 ± 0.09	$(5.071 \pm 1.811) \times 10^{-6}$	
9	Olivine	2.0×10^{-3}	-0.033 ± 0.124		
10	Olivine	1.0×10^{-3}	-0.002 ± 0.048		
11	Olivine	3.0×10^{-3}	-0.024 ± 0.066	$2.457^{+0.465}_{-0.312}$ Myr	0.13
12	Olivine	2.0×10^{-3}	0.008 ± 0.043		
13	Olivine	4.0×10^{-3}	-0.009 ± 0.054		
14	Olivine	2.4×10^{-3}	-0.011 ± 0.038		
15	Olivine	1.5×10^{-3}	0.004 ± 0.022	-0.003 ± 0.010	
16	Mesostasis	2.545	0.108 ± 0.061		
17	Mesostasis	1.616	0.059 ± 0.119		
18	Mesostasis	2.660	0.067 ± 0.054		
19	Olivine	3.2×10^{-3}	-0.002 ± 0.023		
20	Mesostasis	3.065	0.101 ± 0.072		
21	Mesostasis	0.599	0.018 ± 0.036		
22	Olivine	5.2×10^{-3}	-0.017 ± 0.037		
Sem-Ch4					
1	Olivine	1.9×10^{-2}	0.087 ± 0.035		
2	Olivine	7.8×10^{-2}	0.147 ± 0.041		
3	Olivine	9.1×10^{-3}	0.072 ± 0.025		
4	Mesostasis	2.291	0.033 ± 0.083		
5	Mesostasis	3.769	0.114 ± 0.097		
6	Mesostasis	5.542	0.154 ± 0.137		
7	Mesostasis	3.785	0.145 ± 0.089	0	
8	Olivine	9.9×10^{-3}	0.067 ± 0.051		0.70
9	Mesostasis	2.604	0.079 ± 0.057	0.098 ± 0.016	
10	Mesostasis	2.182	0.044 ± 0.038		
11	Mesostasis	2.649	0.059 ± 0.03		
12	Mesostasis	2.641	0.08 ± 0.048		
13	Mesostasis	2.608	0.1 ± 0.056		
14	Olivine	6.7×10^{-3}	0.128 ± 0.032		
15	Mesostasis	3.084	0.051 ± 0.04		
16	Mesostasis	2.789	0.057 ± 0.054		
17	Mesostasis	3.052	0.135 ± 0.064		
18	Mesostasis	2.226	0.162 ± 0.037		
19	Olivine	7.1×10^{-3}	0.108 ± 0.021		
20	Mesostasis	2.671	0.081 ± 0.04		
21	Mesostasis	1.978	0.099 ± 0.037		
22	Olivine	7.4×10^{-3}	0.138 ± 0.027		
23	Mesostasis	2.292	0.131 ± 0.034		
Sem-Ch21					
1	Mesostasis	2.804	0.178 ± 0.073		
2	Mesostasis	1.855	0.126 ± 0.06		
3	Mesostasis	2.404	0.137 ± 0.044		
4	Mesostasis	2.589	0.275 ± 0.078		
5	Mesostasis	0.409	0.055 ± 0.044		
6	Mesostasis	2.552	0.172 ± 0.05		
7	Mesostasis	1.982	0.19 ± 0.078		
8	Olivine	9.8×10^{-4}	-0.015 ± 0.027		
9	Mesostasis	0.972	0.082 ± 0.055		
10	Mesostasis	1.649	0.068 ± 0.07		
11	Mesostasis	2.338	0.127 ± 0.062		
12	Mesostasis	2.084	0.175 ± 0.052		
13	Olivine	3.0×10^{-4}	-0.005 ± 0.08	$(1.105 \pm 0.139) \times 10^{-5}$	
14	Olivine	3.0×10^{-4}	0.006 ± 0.065		
15	Mesostasis	1.440	0.102 ± 0.049		
16	Olivine	2.3×10^{-4}	-0.02 ± 0.05	$1.637^{+0.142}_{-0.125}$ Myr	0.12
17	Mesostasis	0.431	0.073 ± 0.113		
18	Olivine	3.8×10^{-4}	0.012 ± 0.082		
19	Olivine	4.5×10^{-4}	-0.014 ± 0.044		
20	Olivine	3.1×10^{-4}	-0.034 ± 0.04		
21	Mesostasis	2.148	0.131 ± 0.075		
22	Mesostasis	1.495	0.096 ± 0.044		
23	Mesostasis	1.634	0.105 ± 0.043		
24	Olivine	5.4×10^{-4}	-0.025 ± 0.022		
25	Mesostasis	1.764	0.098 ± 0.06		
26	Olivine	2.9×10^{-4}	-0.018 ± 0.02		
27	Olivine	3.0×10^{-4}	0.002 ± 0.026		
28	Mesostasis	1.810	0.107 ± 0.055		
29	Mesostasis	1.949	0.156 ± 0.06		
30	Mesostasis	1.534	0.139 ± 0.056		
31	Olivine	3.1×10^{-4}	0.026 ± 0.045		
32	Mesostasis	2.475	0.306 ± 0.06		

Chondrule	Phase	$^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$	$\delta^{26}\text{Mg}^*$ (‰)	Age after CAIs $\delta^{26}\text{Mg}^*_{t_0}$ (‰)	Bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$
				$(^{27}\text{Al}/^{26}\text{Al})_0$	
Sem-Ch32					
1	Orthopyroxene	8.3×10^{-3}	-0.006 ± 0.053		
2	Mesostasis	2.485	0.197 ± 0.078		
3	Mesostasis	2.225	0.209 ± 0.086		
4	Mesostasis	1.892	0.167 ± 0.052		
5	Mesostasis	2.140	0.146 ± 0.067		
6	Orthopyroxene	1.0×10^{-2}	-0.009 ± 0.026		
7	Mesostasis	2.101	0.095 ± 0.076		
8	Mesostasis	1.880	-0.018 ± 0.05		
9	Mesostasis	1.347	0.025 ± 0.06		
10	Mesostasis	2.199	0.138 ± 0.047		
11	Mesostasis	2.346	0.029 ± 0.057	$(7.245 \pm 1.950) \times 10^{-6}$	
12	Orthopyroxene	9.0×10^{-3}	0.008 ± 0.017		
13	Orthopyroxene	8.0×10^{-3}	0.009 ± 0.027		
14	Orthopyroxene	6.0×10^{-3}	0.003 ± 0.017	$+0.330$	
15	Orthopyroxene	8.0×10^{-3}	-0.002 ± 0.019	2.081 Myr	0.13
16	Orthopyroxene	7.0×10^{-3}	-0.012 ± 0.027	-0.251	
17	Orthopyroxene	6.0×10^{-3}	-0.019 ± 0.018		
18	Orthopyroxene	9.0×10^{-3}	0.01 ± 0.022	-0.005 ± 0.010	
19	Orthopyroxene	6.1×10^{-3}	-0.021 ± 0.027		
20	Orthopyroxene	8.7×10^{-3}	-0.008 ± 0.025		
21	Mesostasis	1.699	0.073 ± 0.075		
22	Mesostasis	2.316	0.182 ± 0.102		
23	Orthopyroxene	7.8×10^{-3}	-0.014 ± 0.028		
24	Mesostasis	2.029	0.065 ± 0.074		
25	Mesostasis	1.819	0.099 ± 0.048		
26	Orthopyroxene	7.1×10^{-3}	0.018 ± 0.027		
27	Mesostasis	1.856	0.124 ± 0.09		
28	Mesostasis	2.626	0.119 ± 0.082		
29	Orthopyroxene	8.8×10^{-3}	-0.026 ± 0.022		
Sem-Ch62					
1	Olivine	2.1×10^{-4}	-0.032 ± 0.034		
2	Orthopyroxene	6.0×10^{-2}	0.009 ± 0.11	$(4.807 \pm 1.101) \times 10^{-6}$	
3	Olivine	2.2×10^{-4}	0.05 ± 0.028		
4	Mesostasis	23.964	0.659 ± 0.208	$+0.274$	
5	Mesostasis	17.203	0.622 ± 0.186	2513 Myr	0.11
6	Olivine	2.8×10^{-4}	0.017 ± 0.02	-0.217	
7	Mesostasis	23.653	0.651 ± 0.17	-0.006 ± 0.027	
8	Olivine	2.9×10^{-4}	-0.015 ± 0.035		
9	Mesostasis	9.553	0.127 ± 0.083		
Sem-Ch64					
10	Orthopyroxene	2.3×10^{-2}	-0.025 ± 0.027		
11	Mesostasis	26.585	1.119 ± 0.132		
12	Olivine	2.9×10^{-4}	-0.002 ± 0.042		
13	Mesostasis	5.233	0.295 ± 0.077		
14	Mesostasis	6.118	0.124 ± 0.108		
15	Mesostasis	17.992	0.71 ± 0.13		
16	Olivine	2.8×10^{-4}	-0.058 ± 0.036		
17	Olivine	2.6×10^{-4}	-0.04 ± 0.036		
1	Mesostasis	6.467	0.317 ± 0.179		
2	Mesostasis	5.620	0.369 ± 0.112		
3	Orthopyroxene	2.7×10^{-3}	-0.012 ± 0.033		
4	Orthopyroxene	2.6×10^{-3}	-0.027 ± 0.03		
5	Mesostasis	12.210	0.611 ± 0.25		
6	Orthopyroxene	7.1×10^{-3}	-0.014 ± 0.024		
7	Mesostasis	7.473	0.226 ± 0.179		
8	Orthopyroxene	7.5×10^{-3}	-0.011 ± 0.028		
9	Orthopyroxene	2.6×10^{-3}	-0.003 ± 0.026		
10	Orthopyroxene	2.9×10^{-3}	0.009 ± 0.024		
11	Orthopyroxene	8.5×10^{-3}	0.024 ± 0.027		
12	Mesostasis	10.504	0.605 ± 0.211	$(6.562 \pm 1.184) \times 10^{-6}$	
13	Mesostasis	10.026	0.48 ± 0.269		
14	Mesostasis	12.014	0.466 ± 0.245		
15	Mesostasis	10.946	0.539 ± 0.196	$+0.210$	
16	Orthopyroxene	2.1×10^{-3}	-0.04 ± 0.035	2.186 Myr	0.10
17	Mesostasis	2.224	0.106 ± 0.089	-0.174	
18	Mesostasis	12.097	0.688 ± 0.266		
19	Mesostasis	10.469	0.234 ± 0.223	-0.011 ± 0.012	
20	Mesostasis	6.936	0.229 ± 0.213		
21	Mesostasis	31.205	1.401 ± 0.604		
22	Orthopyroxene	2.6×10^{-2}	-0.049 ± 0.024		
23	Orthopyroxene	2.1×10^{-3}	-0.021 ± 0.032		
24	Mesostasis	16.731	0.573 ± 0.298		
25	Mesostasis	9.158	0.527 ± 0.279		
26	Orthopyroxene	1.7×10^{-2}	-0.077 ± 0.03		
27	Orthopyroxene	2.4×10^{-3}	0.004 ± 0.034		
28	Mesostasis	14.072	0.44 ± 0.157		
29	Mesostasis	12.063	0.853 ± 0.193		
30	Orthopyroxene	2.3×10^{-3}	-0.005 ± 0.037		
31	Orthopyroxene	2.1×10^{-3}	0.017 ± 0.023		

Chondrule	Phase	$^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$	$\delta^{26}\text{Mg}^*$ (‰)	Age after CAIs $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ (‰)	Bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$
5	Mesostasis	1.338	0.022 ± 0.068		
6	Olivine	1.0×10^{-3}	0.011 ± 0.047		
7	Olivine	6.2×10^{-4}	0.005 ± 0.056		
8	Olivine	5.2×10^{-4}	-0.004 ± 0.018		
9	Olivine	6.1×10^{-4}	-0.004 ± 0.065	+0.555	
10	Olivine	6.3×10^{-4}	0.007 ± 0.029	3.002 Myr	
11	Mesostasis	4.473	0.119 ± 0.092	-0.362	
12	Mesostasis	3.974	0.071 ± 0.052		
13	Olivine	1.6×10^{-3}	-0.013 ± 0.035	-0.0007 ± 0.0096	
14	Mesostasis	2.798	0.036 ± 0.097		
15	Mesostasis	2.609	0.102 ± 0.075		
16	Olivine	1.0×10^{-3}	0.024 ± 0.035		
17	Olivine	7.4×10^{-4}	-0.004 ± 0.054		
18	Olivine	5.3×10^{-4}	-0.015 ± 0.04		
Sem-Ch113					
1	Olivine	7.0×10^{-4}	-0.033 ± 0.037		
2	Olivine	6.1×10^{-4}	-0.004 ± 0.043		
3	Olivine	3.3×10^{-4}	0.013 ± 0.031		
4	Mesostasis	9.055	0.386 ± 0.093		
5	Mesostasis	18.318	1.289 ± 0.194		
6	Mesostasis	10.012	0.694 ± 0.128		
7	Mesostasis	14.759	0.803 ± 0.167		$(7.175 \pm 1.254) \times 10^{-6}$
8	Mesostasis	10.005	0.523 ± 0.156		
9	Mesostasis	11.599	0.601 ± 0.213	+0.202	
10	Orthopyroxene	1.5×10^{-2}	0.037 ± 0.056	2.092 Myr	
11	Mesostasis	11.037	0.45 ± 0.111	-0.170	0.11
12	Mesostasis	3.454	0.061 ± 0.078		
13	Mesostasis	10.632	0.408 ± 0.113		
14	Orthopyroxene	2.0×10^{-2}	-0.013 ± 0.032	-0.009 ± 0.022	
15	Orthopyroxene	8.0×10^{-2}	-0.066 ± 0.037		
16	Orthopyroxene	4.4×10^{-2}	0.003 ± 0.028		
17	Olivine	6.2×10^{-4}	-0.023 ± 0.031		
18	Olivine	2.6×10^{-3}	-0.006 ± 0.049		
19	Orthopyroxene	4.3×10^{-2}	0.002 ± 0.061		
20	Orthopyroxene	2.4×10^{-2}	0.046 ± 0.035		
Sem-Ch114					
1	Mesostasis	12.124	0.738 ± 0.135		
2	Mesostasis	14.701	1.044 ± 0.19	$(8.916 \pm 0.906) \times 10^{-6}$	
3	Mesostasis	13.867	0.787 ± 0.194		0.17
4	Mesostasis	11.965	0.848 ± 0.184		
5	Olivine	3.5×10^{-4}	-0.006 ± 0.025		

Chondrule	Phase	$^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$	$\delta^{26}\text{Mg}^*$ (‰)	Age after CAIs $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ (‰)	Bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$
32	Orthopyroxene	2.5×10^{-3}	-0.014 ± 0.036		
33	Mesostasis	5.063	0.417 ± 0.213		
34	Orthopyroxene	3.2×10^{-3}	-0.034 ± 0.037		
35	Orthopyroxene	2.0×10^{-3}	0.01 ± 0.021		
Sem-Ch76					
1	Olivine	9.2×10^{-4}	-0.043 ± 0.128		
2	Mesostasis	10.490	0.285 ± 0.174		
3	Mesostasis	1.732	0.106 ± 0.037		
4	Mesostasis	11.636	0.292 ± 0.182		
5	Olivine	3.2×10^{-4}	-0.039 ± 0.1		
6	Mesostasis	9.912	0.168 ± 0.175	$(3.413 \pm 1.198) \times 10^{-6}$	
7	Mesostasis	3.202	0.045 ± 0.15		
8	Olivine	4.0×10^{-4}	-0.003 ± 0.087		
9	Olivine	6.4×10^{-4}	-0.024 ± 0.031	+0.455	
10	Olivine	8.5×10^{-4}	-0.008 ± 0.032	2.874 Myr	0.11
11	Olivine	3.6×10^{-4}	-0.042 ± 0.029	-0.317	
12	Mesostasis	4.618	0.093 ± 0.087	-0.005 ± 0.017	
13	Olivine	3.8×10^{-4}	0.019 ± 0.027		
14	Mesostasis	2.542	0.049 ± 0.059		
15	Olivine	4.3×10^{-4}	-0.001 ± 0.034		
16	Mesostasis	12.054	0.239 ± 0.098		
17	Olivine	4.8×10^{-4}	-0.025 ± 0.034		
18	Olivine	3.3×10^{-4}	0.022 ± 0.04		
Sem-Ch81					
1	Mesostasis	4.172	0.256 ± 0.075		
2	Mesostasis	4.356	0.243 ± 0.093		
3	Mesostasis	6.271	0.335 ± 0.103	$(7.872 \pm 1.115) \times 10^{-6}$	
4	Mesostasis	6.995	0.359 ± 0.113		
5	Mesostasis	6.455	0.374 ± 0.104	+0.161	
6	Orthopyroxene	4.9×10^{-3}	-0.022 ± 0.026	1.994 Myr	0.13
7	Orthopyroxene	3.8×10^{-3}	-0.013 ± 0.035	-0.139	
8	Orthopyroxene	6.2×10^{-3}	0.003 ± 0.02	-0.007 ± 0.013	
9	Mesostasis	3.620	0.157 ± 0.127		
10	Orthopyroxene	1.5×10^{-2}	0.002 ± 0.038		
Sem-Ch83					
1	Olivine	6.4×10^{-4}	-0.021 ± 0.032		
2	Olivine	7.2×10^{-4}	0.015 ± 0.028		
3	Mesostasis	3.113	0.082 ± 0.066	$(3.023 \pm 1.240) \times 10^{-6}$	0.11
4	Mesostasis	1.468	0.008 ± 0.047		

Chondrule	Phase	$^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$	$\delta^{26}\text{Mg}^*$ (‰)	Age after CAIs $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ (‰)	Bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$	Chondrule	Phase	$^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$	$\delta^{26}\text{Mg}^*$ (‰)	Age after CAIs $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ (‰)	Bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$
6	Olivine	3.5×10^{-4}	-0.007 ± 0.037			10	Mesostasis	6.387	0.198 ± 0.135		
7	Mesostasis	7.731	0.456 ± 0.133			11	Mesostasis	5.949	0.438 ± 0.132		
8	Olivine	3.3×10^{-4}	0.003 ± 0.03	1.863 Myr		12	Orthopyroxene	4.1×10^{-2}	0.016 ± 0.03		
9	Orthopyroxene	3.0×10^{-3}	0.003 ± 0.024	-0.102 Myr		13	Orthopyroxene	3.5×10^{-2}	-0.006 ± 0.032		
10	Orthopyroxene	2.0×10^{-3}	0.016 ± 0.033			14	Orthopyroxene	3.9×10^{-2}	0.062 ± 0.029		
11	Orthopyroxene	2.5×10^{-3}	0.01 ± 0.019			15	Orthopyroxene	4.7×10^{-2}	0.008 ± 0.026		
12	Orthopyroxene	3.2×10^{-3}	-0.011 ± 0.026	-0.0024 ± 0.0075		16	Mesostasis	50.509	2.921 ± 0.432		
13	Olivine	3.0×10^{-4}	-0.005 ± 0.023			17	Mesostasis	59.213	3.136 ± 0.481		
14	Olivine	3.0×10^{-4}	-0.011 ± 0.015			18	Mesostasis	61.557	2.62 ± 0.53		
Sem-Ch121						19	Olivine	5.7×10^{-4}	-0.023 ± 0.025	$+0.207$	
1	Mesostasis	3.590	0.12 ± 0.098			20	Olivine	6.3×10^{-4}	0.027 ± 0.046	2.322	Myr
2	Orthopyroxene	1.3×10^{-2}	0.001 ± 0.069			21	Olivine	2.2×10^{-3}	0.049 ± 0.039	-0.173	
3	Orthopyroxene	2.3×10^{-2}	0.01 ± 0.055	$(4.765 \pm 1.031) \times 10^{-6}$		22	Plagioclase	124.531	8.13 ± 1.983		
4	Mesostasis	1.824	0.069 ± 0.062			23	Plagioclase	125.446	4.592 ± 1.595		
5	Mesostasis	3.360	0.105 ± 0.091			24	Mesostasis	3.360	0.251 ± 0.124		
6	Mesostasis	2.039	0.035 ± 0.081	$+0.257$ Myr		25	Orthopyroxene	1.6×10^{-3}	-0.006 ± 0.033		
7	Orthopyroxene	1.8×10^{-2}	0.011 ± 0.016	-0.206 Myr		26	Orthopyroxene	2.4×10^{-2}	-0.032 ± 0.048		
8	Orthopyroxene	2.3×10^{-2}	0.004 ± 0.02		0.12	27	Orthopyroxene	3.8×10^{-2}	0.026 ± 0.04		
9	Mesostasis	1.928	0.077 ± 0.03			28	Olivine	6.1×10^{-4}	-0.016 ± 0.053		
10	Mesostasis	3.459	0.124 ± 0.033	0.0047 ± 0.0098		29	Olivine	8.7×10^{-4}	-0.008 ± 0.045		
11	Mesostasis	3.438	0.127 ± 0.056			30	Mesostasis	6.688	0.193 ± 0.161		
12	Orthopyroxene	1.1×10^{-2}	-0.001 ± 0.018			31	Orthopyroxene	3.4×10^{-2}	0.019 ± 0.046		
Sem-Ch136						32	Orthopyroxene	4.2×10^{-2}	0.011 ± 0.043		
1	Olivine	1.9×10^{-3}	-0.019 ± 0.03			Sem-Ch138					
2	Mesostasis	3.054	0.125 ± 0.096	$(7.941 \pm 2.926) \times 10^{-6}$		1	Orthopyroxene	2.0×10^{-3}	-0.021 ± 0.035		
3	Mesostasis	0.397	0.014 ± 0.045			2	Orthopyroxene	2.2×10^{-3}	-0.029 ± 0.067		
4	Mesostasis	3.098	0.254 ± 0.156	1.985 Myr	0.15	3	Mesostasis	4.461	0.46 ± 0.201		
5	Mesostasis	2.547	0.143 ± 0.089	$+0.484$ -0.330 Myr		4	Orthopyroxene	2.8×10^{-2}	-0.022 ± 0.045		
6	Olivine	1.5×10^{-3}	0.03 ± 0.057			5	Mesostasis	2.927	0.316 ± 0.15		
7	Mesostasis	1.778	0.131 ± 0.074	0.001 ± 0.021		6	Mesostasis	2.476	0.386 ± 0.185		
8	Olivine	1.3×10^{-3}	0.03 ± 0.045			7	Mesostasis	4.479	0.335 ± 0.283		
Sem-Ch137						8	Mesostasis	4.568	0.467 ± 0.191		
1	Orthopyroxene	3.6×10^{-2}	-0.062 ± 0.045			9	Mesostasis	2.792	0.388 ± 0.151	$+0.115$ Myr	
2	Olivine	6.7×10^{-4}	-0.027 ± 0.029			10	Mesostasis	0.260	0.033 ± 0.084	-0.104	0.10
3	Mesostasis	18.151	0.387 ± 0.231			11	Mesostasis	2.999	0.334 ± 0.079		
4	Mesostasis	22.883	0.436 ± 0.244			12	Mesostasis	4.554	0.468 ± 0.126		
5	Mesostasis	51.203	1.575 ± 0.356	$(5.768 \pm 1.031) \times 10^{-6}$	0.23	13	Mesostasis	3.851	0.444 ± 0.068		
6	Orthopyroxene	4.6×10^{-2}	0.012 ± 0.046			14	Orthopyroxene	2.1×10^{-3}	-0.011 ± 0.043		
7	Olivine	1.1×10^{-3}	-0.006 ± 0.034			15	Orthopyroxene	2.5×10^{-3}	-0.006 ± 0.041		
8	Mesostasis	3.982	0.118 ± 0.071			16	Orthopyroxene	1.9×10^{-3}	0.017 ± 0.044		
9	Olivine	6.0×10^{-4}	-0.053 ± 0.028			17	Orthopyroxene	2.2×10^{-3}	-0.036 ± 0.046		
						18	Orthopyroxene	2.8×10^{-3}	-0.035 ± 0.03		

Table S1: Al and Mg isotopic compositions for each measurement within the fifteen studied chondrules. $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*_0$ were inferred for each chondrule from the classical error-weighted regression model 1 of Isoplot 3.00 (S17). Errors on $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratios are $\pm 7\%$ relative (see Methods for details). Bulk $^{27}\text{Al}/^{24}\text{Mg}$ ratios were obtained by chemical mapping using the Cameca SX-100 electron microprobe at Université Henri Poincaré (Nancy, France). Errors are two sigma.

Chondrite	Class	Chondrule	type	$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	2σ error	Reference
Y81020	CO3.0	Y10	I	1.03×10^{-5}	2.80×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y3	I	9.00×10^{-6}	2.80×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y20	I	8.80×10^{-6}	6.40×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y24	I	7.90×10^{-6}	1.20×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y08	I	7.40×10^{-6}	2.10×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y76	I	7.00×10^{-6}	2.00×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y09	I	6.90×10^{-6}	2.00×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y29	I	6.60×10^{-6}	1.20×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y17	I	6.60×10^{-6}	3.50×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y12	I	6.60×10^{-6}	1.90×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y18	I	6.20×10^{-6}	1.90×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y71	I	5.70×10^{-6}	1.50×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y01	I	4.90×10^{-6}	1.40×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y2-14	II	7.40×10^{-6}	4.20×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y2-09	II	7.30×10^{-6}	1.10×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y56	II	6.10×10^{-6}	1.50×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y58	II	5.70×10^{-6}	2.90×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y46	II	4.60×10^{-6}	1.80×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y2-44	II	2.90×10^{-6}	9.00×10^{-7}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y175	II	8.20×10^{-6}	1.20×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	Y23	II	4.10×10^{-6}	1.10×10^{-6}	(S8)
Y81020	CO3.0	E3t	II PO	3.70×10^{-6}	1.10×10^{-6}	(S4)
Y81020	CO3.0	G4i	II PO	4.00×10^{-6}	1.90×10^{-6}	(S4)
Y81020	CO3.0	F7o	II PO	4.20×10^{-6}	1.30×10^{-6}	(S4)
Y81020	CO3.0	G7g	II PO	2.40×10^{-6}	1.70×10^{-6}	(S4)
Y81020	CO3.0	C6w	II PO	6.50×10^{-6}	3.20×10^{-6}	(S4)
Y81020	CO3.0		II PO	4.60×10^{-6}	3.00×10^{-6}	(S2)
Acfer 311	CR	PL20CHD2	I POP	3.20×10^{-6}	1.40×10^{-6}	(S6)
?	CR		II	2.20×10^{-6}	1.40×10^{-6}	(S5)
EET 92042	CR	Ch1	Al-rich	9.50×10^{-7}	2.90×10^{-7}	(S5)
EET 92147	CR	Ch1	Al-rich	6.20×10^{-6}	8.00×10^{-7}	(S5)
El Djouf 001	CR	MKCHD1	Al-rich	4.50×10^{-6}	1.10×10^{-6}	(S6)
El Djouf 001	CR	PL72CHD5	Al-rich	3.20×10^{-6}	1.30×10^{-6}	(S6)
Efremovka	CV3		I	5.60×10^{-6}	3.30×10^{-6}	(S1)
Ningqiang	Anom. CV	Chon-2	I BO	3.40×10^{-6}	2.10×10^{-6}	(S3)
Ningqiang	Anom. CV	Chon-1	I PO	6.40×10^{-6}	3.60×10^{-6}	(S3)
Acfer 094	Ungr. CC	CHD63	I PO	4.90×10^{-6}	1.79×10^{-5}	(S7)
Acfer 094	Ungr. CC	CHD101	I PO	1.70×10^{-6}	4.40×10^{-6}	(S7)
Acfer 094	Ungr. CC	CHD31	I POP	1.03×10^{-5}	7.40×10^{-6}	(S7)
Acfer 094	Ungr. CC	CHD27	I PP	2.40×10^{-6}	9.40×10^{-6}	(S7)
Acfer 094	Ungr. CC	CHD58	I PP	3.10×10^{-6}	8.50×10^{-6}	(S7)
Acfer 094	Ungr. CC	CHD60	I PP	6.00×10^{-6}	3.80×10^{-6}	(S7)
Acfer 094	Ungr. CC	CHD102	I PP	5.90×10^{-6}	1.01×10^{-5}	(S7)
Adrar-003	L/LL3.1	2	II PO	6.30×10^{-6}	4.00×10^{-6}	(S15)
Adrar-003	L/LL3.1	3	II PO	8.40×10^{-6}	7.80×10^{-6}	(S15)
LEW86134	L3.0	36	II PO	1.63×10^{-5}	7.20×10^{-6}	(S15)
LEW86134	L3.0	3	II POP	7.10×10^{-6}	5.40×10^{-6}	(S15)

LEW86134	L3.0	16	II PP	1.03×10^{-5}	4.20×10^{-6}	(S15)
QUE97008	L3.05	1A	II PO	9.90×10^{-6}	6.00×10^{-6}	(S15)
QUE97008	L3.05	1B	II PO	1.95×10^{-5}	7.60×10^{-6}	(S15)
QUE97008	L3.05	5	II PO	7.90×10^{-6}	3.60×10^{-6}	(S15)
QUE97008	L3.05	16	II POP	1.10×10^{-5}	9.20×10^{-6}	(S15)
LEW86018	L3.1	6	II PO	7.40×10^{-6}	2.00×10^{-6}	(S15)
LEW86018	L3.1	6A	II PO	6.50×10^{-6}	2.30×10^{-6}	(S15)
LEW86018	L3.1	24	II POP	6.70×10^{-6}	3.60×10^{-6}	(S15)
LEW86018	L3.1	33	II POP	7.60×10^{-6}	3.60×10^{-6}	(S15)
ALHA77176	L3.2	1	II POP	6.50×10^{-6}	5.80×10^{-6}	(S15)
ALHA77176	L3.2	14B	II POP	9.70×10^{-6}	7.10×10^{-6}	(S15)
Semarkona	LL3.0	CC3-2	I BO	2.40×10^{-5}	6.00×10^{-6}	(S11)
Semarkona	LL3.0	CH3	I POP	8.80×10^{-6}	3.10×10^{-6}	(S12)
Bishunpur	LL3.1	B2-C10	I POP	1.02×10^{-5}	5.40×10^{-6}	(S14)
Bishunpur	LL3.1	B2-C17	I PP	3.50×10^{-6}	4.80×10^{-6}	(S14)
Chainpur 1251	LL3.4	CC16-3	I BO	4.30×10^{-6}	1.50×10^{-6}	(S11)
Semarkona	LL3.0	CH36	II BOP	6.60×10^{-6}	1.90×10^{-6}	(S12)
Semarkona	LL3.0	CH4	II PO	9.00×10^{-6}	1.60×10^{-6}	(S12)
Semarkona	LL3.0	CC-1	II POP	7.70×10^{-6}	2.10×10^{-6}	(S9)
Semarkona	LL3.0	CH23	II POP	9.20×10^{-6}	5.00×10^{-6}	(S12)
Semarkona	LL3.0	CH60	II POP	5.70×10^{-6}	2.60×10^{-6}	(S12)
Semarkona	LL3.0	Ch20	II POP	1.10×10^{-5}	2.40×10^{-6}	(S16)
Semarkona	LL3.0	Ch21	II POP	1.15×10^{-5}	5.40×10^{-6}	(S16)
Semarkona	LL3.0	Ch2	II PP	5.50×10^{-6}	3.00×10^{-7}	(S16)
Semarkona	LL3.0	Ch36	IPP	1.24×10^{-5}	5.20×10^{-6}	(S16)
Bishunpur	LL3.1	Ch45	II PO	5.80×10^{-6}	3.10×10^{-6}	(S16)
Bishunpur	LL3.1	Ch61	II PO	5.80×10^{-6}	2.20×10^{-6}	(S16)
Krymka	LL3.1	K21	II PO	1.03×10^{-5}	1.50×10^{-6}	(S13)
Y-791324	LL3.1	Ch3	II PO	1.10×10^{-5}	1.00×10^{-5}	(S16)
Bishunpur	LL3.1	B1-C4	II POP	1.20×10^{-5}	2.40×10^{-6}	(S13)
Bishunpur	LL3.1	B1-C18	II POP	8.40×10^{-6}	3.90×10^{-6}	(S13)
Bishunpur	LL3.1	B1-C4	II POP	1.54×10^{-5}	7.50×10^{-6}	(S14)
Bishunpur	LL3.1	B1-C18	II POP	9.50×10^{-6}	8.90×10^{-6}	(S14)
Bishunpur	LL3.1	B2-C1	II POP	2.28×10^{-5}	7.30×10^{-6}	(S14)
Bishunpur	LL3.1	B2-C7	II POP	5.50×10^{-6}	8.40×10^{-6}	(S14)
Bishunpur	LL3.1	B2-C12	II POP	4.50×10^{-6}	2.10×10^{-6}	(S14)
Bishunpur	LL3.1	B2-C18	II POP	5.70×10^{-6}	2.00×10^{-6}	(S14)
Bishunpur	LL3.1	B2-C20	II POP	7.40×10^{-6}	5.70×10^{-6}	(S14)
Y-791324	LL3.1	Ch6	II POP	1.22×10^{-5}	5.20×10^{-6}	(S16)
Bishunpur	LL3.1	B1-C56	II PP	9.60×10^{-6}	9.00×10^{-7}	(S13)
Bishunpur	LL3.1	B1-C56	II PP	1.40×10^{-5}	6.50×10^{-6}	(S14)
Bishunpur	LL3.1	B2-C13	II PP	5.30×10^{-6}	7.00×10^{-6}	(S14)
Krymka	LL3.1	K27	II PP	6.10×10^{-6}	1.70×10^{-6}	(S13)
ALHA76004	LL3.3	Ch1	II POP	1.06×10^{-5}	3.30×10^{-6}	(S16)
ALHA76004	LL3.3	Ch2	II POP	1.15×10^{-5}	3.40×10^{-6}	(S16)
ALHA76004	LL3.3	Ch11	II POP	7.10×10^{-6}	2.00×10^{-6}	(S16)
ALHA76004	LL3.3	Ch31	II POP	1.14×10^{-5}	2.80×10^{-6}	(S16)
Inman 5652	LL3.3-3.6	CC1-1	Al rich	9.40×10^{-6}	6.30×10^{-6}	(S10)
Chainpur 1251	LL3.4	CC1-3	Al rich	7.90×10^{-6}	2.70×10^{-6}	(S10)

Table S2: Compilation of the ^{26}Al data obtained by ion probe analyses from previous studies used for the Fig. 3. Only data with well-define isochrons slopes, i.e. with well-define $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ and

errors, are considered in the table. Errors are two sigma. Data are from (S1-S16).

4. Supporting references

- S1. I. D. Hutcheon, A. N. Krot, A. A. Ulyanov, *Lunar Planet. Sci.* **XXXI**, 1869 (2000).
- S2. H. Yurimoto, J. T. Wasson, *Geochim. Cosmochim. Acta* **66**, 4355-4363 (2002).
- S3. W. B. Hsu, G. R. Huss, G. J. Wasserburg, *Meteorit. Planet. Sci.* **38**, 35-48 (2003).
- S4. T. Kunihiro, A. E. Rubin, K. D. McKeegan, J. T. Wasson, *Geochim. Cosmochim. Acta* **68**, 2947 (2004).
- S5. K. Nagashima, A. N. Krot, M. Chaussidon, *Meteorit. Planet. Sci.* **42**, A115 (2007).
- S6. K. Nagashima, A. N. Krot, G. R. Huss, *Lunar Planet. Sci.* **XXXIX**, 2224 (2008).
- S7. N. Sugiura, A. N. Krot, *Meteorit. Planet. Sci.* **42**, 1183-1195 (2007).
- S8. E. Kurahashi, N. T. Kita, H. Nagahara, Y. Morishita, *Geochim. Cosmochim. Acta* **72**, A504 (2008).
- S9. I. D. Hutcheon, R. Hutchison, *Nature* **337**, 238 (1989).
- S10. S. S. Russell, G. Srinivasan, G. R. Huss, G. J. Wasserburg, G. J. MacPherson, *Science* **273**, 757 (1996).
- S11. S. S. Russell, G. R. Huss, G. J. MacPherson, G. J. Wasserburg, *Lunar Planet. Sci.* **XXVIII**, 1468 (1997).
- S12. N. T. Kita, H. Nagahara, S. Togashi, Y. Morishita, *Geochim. Cosmochim. Acta* **64**, 3913 (2000).
- S13. N. T. Kita *et al.*, *Lunar Planet. Sci.* **XXXVI**, 1750 (2005).
- S14. S. Mostefaoui *et al.*, *Meteorit. Planet. Sci.* **37**, 421-438 (2002).
- S15. N. G. Rudraswami, J. N. Goswami, *Earth and Planet. Sci. Lett.* **257**, 231-244, (2007).
- S16. N. G. Rudraswami, J. N. Goswami, B. Chattopadhyay, S. K. Sengupta, A. P. Thapliyal, *Earth and Planet. Sci. Lett.* **274**, 93 (2008).
- S17. K. R. Ludwig, Berkeley Geochronology Center, Special Publication N°4 (2003)

Annexe 2

# analysis	Al/Mg	2 σ	raw $\delta^{25}\text{Mg}$ (‰)	2 σ	$\delta^{26}\text{Mg}^*$ (‰)	2 σ
All-Ch4						
1	6.3×10 ⁻³	4.4×10 ⁻⁴	-3.675	0.025	-0.023	0.046
2	5.0×10 ⁻³	3.5×10 ⁻⁴	-3.497	0.023	0.003	0.037
3	2.0×10 ⁻³	1.4×10 ⁻⁴	-3.286	0.018	-0.051	0.037
4	5.0×10 ⁻³	3.5×10 ⁻⁴	-2.807	0.019	0.027	0.026
5	3.5×10 ⁻³	2.5×10 ⁻⁴	-2.605	0.031	0.016	0.059
6	3.1×10 ⁻³	2.2×10 ⁻⁴	-2.797	0.032	-0.028	0.043
7	5.6×10 ⁻³	3.9×10 ⁻⁴	-3.578	0.023	-0.015	0.041
8	6.6×10 ⁻³	4.6×10 ⁻⁴	-3.835	0.017	-0.023	0.032
9	6.3×10 ⁻³	4.4×10 ⁻⁴	-3.591	0.019	-0.034	0.035
10	4.8×10 ⁻³	3.4×10 ⁻⁴	-3.256	0.019	0.009	0.036
11	1.6×10 ⁻³	1.1×10 ⁻⁴	-3.536	0.017	0.008	0.032
12	2.9×10 ⁻³	2.1×10 ⁻⁴	-3.430	0.017	-0.025	0.030
13	3.2×10 ⁻³	2.3×10 ⁻⁴	-4.008	0.024	0.005	0.047
14	6.5×10 ⁻³	4.5×10 ⁻⁴	-3.780	0.022	-0.038	0.040
15	6.1×10 ⁻³	4.3×10 ⁻⁴	-3.763	0.021	0.030	0.041
All-Ch6						
1	1.8×10 ⁻³	1.2×10 ⁻⁴	-3.200	0.040	-0.016	0.062
2	2.0×10 ⁻³	1.4×10 ⁻⁴	-2.955	0.024	-0.005	0.043
3	2.4×10 ⁻³	1.7×10 ⁻⁴	-2.819	0.034	-0.008	0.079
4	2.8×10 ⁻³	2.0×10 ⁻⁴	-2.671	0.031	0.024	0.046
5	3.1×10 ⁻³	2.2×10 ⁻⁴	-2.456	0.040	-0.003	0.079
6	1.7×10 ⁻³	1.2×10 ⁻⁴	-2.558	0.041	-0.022	0.064
7	3.4×10 ⁻³	2.4×10 ⁻⁴	-3.334	0.026	-0.005	0.049
8	2.1×10 ⁻³	1.5×10 ⁻⁴	-2.349	0.026	-0.010	0.048
9	4.3×10 ⁻³	3.0×10 ⁻⁴	-3.403	0.029	0.000	0.060
10	2.2×10 ⁻³	1.5×10 ⁻⁴	-2.813	0.025	-0.012	0.052
11	2.2×10 ⁻³	1.5×10 ⁻⁴	-2.811	0.025	0.009	0.052
12	2.0×10 ⁻³	1.4×10 ⁻⁴	-4.030	0.030	-0.012	0.058
All-Ch16						
1	2.4×10 ⁻³	1.7×10 ⁻⁴	-2.813	0.039	-0.009	0.092
2	3.7×10 ⁻³	2.6×10 ⁻⁴	-2.964	0.027	-0.006	0.066
3	3.3×10 ⁻³	2.3×10 ⁻⁴	-2.164	0.023	-0.013	0.043
4	1.5×10 ⁻³	1.1×10 ⁻⁴	-2.268	0.021	0.006	0.039
5	1.4×10 ⁻³	9.8×10 ⁻⁵	-3.187	0.012	-0.008	0.036
6	1.1×10 ⁻³	7.4×10 ⁻⁵	-3.085	0.018	-0.020	0.037
7	6.1×10 ⁻⁴	4.3×10 ⁻⁵	-3.639	0.016	0.005	0.035
8	1.7×10 ⁻³	1.2×10 ⁻⁴	-3.461	0.013	-0.012	0.038
9	5.3×10 ⁻³	3.7×10 ⁻⁴	-3.004	0.019	-0.008	0.035
10	3.8×10 ⁻³	2.7×10 ⁻⁴	-2.540	0.026	0.017	0.048
11	1.7×10 ⁻³	1.2×10 ⁻⁴	-2.342	0.026	-0.010	0.050
12	1.5×10 ⁻³	1.0×10 ⁻⁴	-3.298	0.026	-0.024	0.053
13	4.7×10 ⁻³	3.3×10 ⁻⁴	-2.418	0.027	0.010	0.051
14	2.7×10 ⁻³	1.9×10 ⁻⁴	-2.582	0.029	-0.015	0.054
15	5.9×10 ⁻³	4.2×10 ⁻⁴	-3.779	0.024	-0.020	0.043
All-Ch17						
1	1.9×10 ⁻³	1.3×10 ⁻⁴	-3.009	0.015	-0.054	0.024
2	4.9×10 ⁻³	3.4×10 ⁻⁴	-3.334	0.020	-0.047	0.043
3	1.3×10 ⁻³	9.1×10 ⁻⁵	-3.341	0.018	-0.043	0.031
4	3.3×10 ⁻³	2.3×10 ⁻⁴	-3.085	0.018	-0.024	0.039
5	6.2×10 ⁻³	4.4×10 ⁻⁴	-3.477	0.021	-0.010	0.030
6	2.8×10 ⁻³	2.0×10 ⁻⁴	-3.976	0.019	-0.018	0.039
7	2.9×10 ⁻³	2.0×10 ⁻⁴	-4.229	0.024	-0.028	0.045
8	4.0×10 ⁻³	2.8×10 ⁻⁴	-3.645	0.023	-0.026	0.042
9	2.6×10 ⁻³	1.8×10 ⁻⁴	-2.958	0.013	0.012	0.027

10	2.5×10^{-3}	1.8×10^{-4}	-3.608	0.034	-0.056	0.062
11	2.2×10^{-3}	1.5×10^{-4}	-3.109	0.026	-0.061	0.049
12	7.0×10^{-3}	4.9×10^{-4}	-3.866	0.052	-0.030	0.107
13	2.1×10^{-3}	1.5×10^{-4}	-3.240	0.028	-0.037	0.052
All-Ch18						
1 (#1)	4.0×10^{-3}	2.8×10^{-4}	-3.149	0.020	0.002	0.030
2 (#1)	1.5×10^{-3}	1.0×10^{-4}	-2.591	0.019	0.019	0.036
3 (#2)	5.9×10^{-3}	4.1×10^{-4}	-2.814	0.018	0.044	0.043
4 (#3)	6.5×10^{-3}	4.6×10^{-4}	-3.179	0.020	0.005	0.027
5 (#3)	7.5×10^{-4}	5.2×10^{-5}	-4.020	0.024	-0.042	0.053
6 (#3)	1.2×10^{-3}	8.6×10^{-5}	-3.492	0.009	-0.031	0.044
7 (#3)	1.4×10^{-3}	1.0×10^{-4}	-3.306	0.028	-0.037	0.051
8 (#1)	1.5×10^{-3}	1.0×10^{-4}	-2.260	0.027	0.029	0.045
9 (#1)	1.6×10^{-3}	1.1×10^{-4}	-2.914	0.017	0.004	0.035
10 (#1)	5.3×10^{-3}	3.7×10^{-4}	-2.864	0.018	0.011	0.034
11 (#3)	5.2×10^{-3}	3.7×10^{-4}	-3.858	0.029	-0.019	0.056
12 (#3)	4.5×10^{-3}	3.1×10^{-4}	-4.079	0.012	-0.042	0.022
13 (#3)	1.4×10^{-3}	9.7×10^{-5}	-4.027	0.015	-0.039	0.029
14 (#3)	5.1×10^{-3}	3.6×10^{-4}	-4.043	0.016	-0.023	0.030
15 (#1)	3.6×10^{-3}	2.5×10^{-4}	-3.250	0.021	0.034	0.038
16 (#1)	1.5×10^{-3}	1.0×10^{-4}	-2.631	0.014	0.008	0.026
17 (#2)	3.7×10^{-3}	2.6×10^{-4}	-3.671	0.014	0.043	0.026
18 (#3)	6.1×10^{-3}	4.3×10^{-4}	-4.041	0.016	-0.052	0.028
19 (#1)	1.5×10^{-3}	1.1×10^{-4}	-3.880	0.020	0.001	0.037
20 (#1)	1.2×10^{-3}	8.7×10^{-5}	-2.795	0.013	0.008	0.024
All-Ch19						
1	1.0×10^{-3}	7.0×10^{-5}	-4.427	0.015	-0.038	0.051
2	7.9×10^{-4}	5.5×10^{-5}	-4.083	0.019	-0.018	0.044
3	1.2×10^{-3}	8.3×10^{-5}	-3.733	0.025	-0.015	0.045
4	9.5×10^{-4}	6.6×10^{-5}	-4.260	0.019	-0.024	0.035
5	1.3×10^{-3}	8.9×10^{-5}	-3.571	0.014	-0.032	0.035
6	3.2×10^{-3}	2.2×10^{-4}	-3.082	0.017	-0.038	0.034
7	6.8×10^{-4}	4.7×10^{-5}	-4.490	0.026	-0.034	0.051
8	3.1×10^{-3}	2.2×10^{-4}	-3.643	0.018	-0.060	0.037
9	9.6×10^{-4}	6.7×10^{-5}	-4.131	0.019	-0.022	0.037
10	1.2×10^{-3}	8.1×10^{-5}	-4.135	0.016	-0.043	0.035
11	3.2×10^{-3}	2.2×10^{-4}	-4.033	0.019	-0.026	0.036
12	1.1×10^{-3}	7.9×10^{-5}	-4.477	0.021	-0.016	0.044
13	1.6×10^{-3}	1.1×10^{-4}	-3.910	0.019	0.002	0.039
14	1.1×10^{-3}	7.4×10^{-5}	-4.266	0.019	-0.027	0.039
15	1.4×10^{-3}	9.7×10^{-5}	-4.364	0.022	-0.008	0.044
16	9.7×10^{-4}	6.8×10^{-5}	-4.619	0.019	-0.048	0.039
17	1.0×10^{-3}	7.2×10^{-5}	-4.754	0.025	-0.031	0.049
All-Ch20						
1	1.1×10^{-3}	7.7×10^{-5}	-3.324	0.016	-0.008	0.030
2	2.0×10^{-3}	1.4×10^{-4}	-3.882	0.016	-0.013	0.036
3	2.6×10^{-3}	1.8×10^{-4}	-4.150	0.026	-0.013	0.041
4	2.0×10^{-3}	1.4×10^{-4}	-4.198	0.013	-0.003	0.033
5	1.2×10^{-3}	8.4×10^{-5}	-3.278	0.013	-0.027	0.051
6	1.6×10^{-3}	1.1×10^{-4}	-3.619	0.022	0.009	0.045
7	1.2×10^{-3}	8.2×10^{-5}	-3.576	0.020	-0.015	0.041
8	1.8×10^{-3}	1.3×10^{-4}	-3.583	0.026	-0.006	0.050
9	1.5×10^{-3}	1.0×10^{-4}	-4.037	0.014	0.009	0.026
10	2.6×10^{-3}	1.8×10^{-4}	-4.140	0.025	0.012	0.050
11	2.5×10^{-3}	1.7×10^{-4}	-4.521	0.023	-0.029	0.044
12	4.5×10^{-3}	3.1×10^{-4}	-4.330	0.022	-0.010	0.041
13	1.0×10^{-3}	7.2×10^{-5}	-3.865	0.021	-0.025	0.041

All-Ch21						
1	1.5×10 ⁻³	1.0×10 ⁻⁴	-4.023	0.017	0.007	0.034
2	1.9×10 ⁻³	1.3×10 ⁻⁴	-4.037	0.017	-0.005	0.031
3	1.9×10 ⁻³	1.3×10 ⁻⁴	-4.006	0.013	-0.007	0.034
4	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻⁴	-3.921	0.013	0.016	0.042
5	1.9×10 ⁻³	1.3×10 ⁻⁴	-4.339	0.013	0.002	0.044
6	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻⁴	-3.794	0.015	-0.013	0.032
7	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻⁴	-4.321	0.027	-0.007	0.049
8	2.2×10 ⁻³	1.5×10 ⁻⁴	-4.471	0.020	-0.007	0.039
9	1.5×10 ⁻³	1.0×10 ⁻⁴	-3.729	0.029	-0.010	0.056
10	1.4×10 ⁻³	1.0×10 ⁻⁴	-4.094	0.028	-0.016	0.052
11	1.7×10 ⁻³	1.2×10 ⁻⁴	-4.133	0.023	0.013	0.045
ESP						
1	7.2×10 ⁻⁵	5.0×10 ⁻⁶	-2.815	0.019	-0.043	0.037
2	9.6×10 ⁻⁵	6.8×10 ⁻⁶	-2.848	0.020	-0.041	0.038
3	1.4×10 ⁻⁴	9.7×10 ⁻⁶	-2.744	0.025	-0.054	0.048
4	8.2×10 ⁻⁵	5.7×10 ⁻⁶	-2.734	0.014	-0.022	0.030
5	7.9×10 ⁻⁵	5.5×10 ⁻⁶	-3.015	0.026	-0.011	0.050
6	1.0×10 ⁻⁴	7.1×10 ⁻⁶	-2.982	0.022	-0.028	0.039
7	7.2×10 ⁻⁵	5.0×10 ⁻⁶	-3.067	0.019	-0.058	0.037
8	6.9×10 ⁻⁵	4.8×10 ⁻⁶	-2.957	0.022	-0.060	0.044
9	9.2×10 ⁻⁵	6.5×10 ⁻⁶	-3.107	0.025	-0.004	0.051
10	6.9×10 ⁻⁵	4.8×10 ⁻⁶	-2.924	0.023	-0.061	0.044
11	1.1×10 ⁻⁴	7.5×10 ⁻⁶	-2.964	0.023	-0.027	0.045
12	1.0×10 ⁻⁴	7.3×10 ⁻⁶	-2.840	0.022	-0.035	0.045
13	1.5×10 ⁻⁴	1.0×10 ⁻⁵	-2.982	0.021	-0.018	0.040
14	1.3×10 ⁻⁴	9.2×10 ⁻⁶	-2.981	0.024	-0.028	0.047
15	1.4×10 ⁻⁴	9.7×10 ⁻⁶	-2.990	0.026	-0.006	0.052
16	7.4×10 ⁻⁵	5.2×10 ⁻⁶	-3.030	0.022	-0.021	0.043
17	1.7×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻⁵	-2.837	0.021	-0.021	0.041

Electronic Table: Al/Mg ratios, raw $\delta^{25}\text{Mg}$ and $\delta^{26}\text{Mg}^*$ for each analysis. Al/Mg ratios are corrected from the Mg, Al ion yields (yield Al/Mg = 0.8). Raw $\delta^{25}\text{Mg}$ values are the ones used for the calculations of $\delta^{26}\text{Mg}^*$ and they are not corrected from the instrumental mass fractionation. 2σ Errors. (#1), (#2) and (#3) correspond to the 3 groups of olivines define in Ch18.

Annexe 3

Tableau 1 : Compositions chimiques des chondres de Semarkona et Bishunpur utilisées dans le modèle.

Chondre compositions mesurées	type	composition chimique (wt%)									
		Al	Ti	Ca	Mg	Si	Cr	Mn	K	Na	Fe
C10		0.69	-	0.50	28.47	22.72	0.21	0.05	0.02	0.16	1.17
#21		1.65	0.11	1.76	23.03	21.59	0.38	0.15	0.11	0.99	4.82
#23		3.28	0.22	4.49	22.91	19.12	0.10	0.02	0.03	0.13	3.30
103B		1.96	0.12	2.30	23.46	21.81	0.39	0.15	0.04	0.20	5.65
A13		2.15	0.13	2.82	26.34	20.14	0.17	0.01	0.02	0.13	3.68
A23	I PO	1.33	0.07	1.72	26.42	18.53	0.23	0.04	0.02	0.05	7.20
A41		1.74	0.07	2.44	25.81	20.52	0.27	0.08	0.06	0.30	5.18
A81		2.44	0.13	2.73	20.84	24.04	0.89	0.15	0.19	1.52	2.19
C21		2.41	0.11	2.46	25.67	20.18	0.17	0.06	0.02	0.10	3.95
C41		2.09	0.11	2.06	26.83	20.10	0.16	0.05	0.03	0.25	2.66
C51		2.68	0.13	3.58	21.12	22.94	0.36	0.19	0.04	0.48	1.44
C61		0.90	0.04	1.04	26.07	20.39	0.19	0.08	0.02	0.09	7.69
CH3		2.59	-	2.79	24.12	22.11	0.34	0.04	0.02	0.03	2.41
C50		1.69	0.08	1.64	18.50	26.63	0.44	0.36	0.07	0.62	3.59
C60		1.11	0.06	1.14	18.76	25.36	0.42	0.35	0.07	0.66	6.58
C90		1.53	0.07	1.50	21.04	26.22	0.40	0.26	0.04	0.42	1.84
#10	I POP	0.58	0.03	0.36	21.77	27.58	0.31	0.17	0.05	0.28	2.04
#20		1.01	0.07	1.14	22.48	25.88	0.38	0.22	0.02	0.23	1.92
#30		1.64	0.09	1.64	19.94	26.38	0.42	0.32	0.02	0.29	2.66
Ch2		2.31	0.13	2.83	21.84	20.99	0.35	0.07	0.02	0.24	8.32
Ch121		1.76	0.08	2.36	18.66	25.59	0.31	0.25	0.07	0.62	2.31
C17		1.38	-	1.07	20.87	26.79	0.42	0.18	0.06	0.28	2.02
C40		1.64	0.08	1.93	18.31	26.71	0.44	0.22	0.05	0.46	3.80
C70	I PP	1.16	0.05	0.93	20.37	27.61	0.38	0.24	0.06	0.41	1.50
#90		0.95	0.05	0.86	21.63	26.77	0.38	0.20	0.02	0.15	1.98
Ch32		1.56	0.10	2.37	14.74	28.32	0.46	0.60	0.19	0.62	1.91
#41		1.441	-	1.266	18.105	21.191	0.308	0.349	0.199	1.255	12.383
41B		1.601	-	1.368	18.005	21.496	0.363	0.349	0.191	1.249	11.073
#51		1.605	-	1.310	17.314	20.908	0.434	0.312	0.159	1.300	13.063
51B		1.097	-	1.259	20.041	20.776	0.356	0.326	0.108	1.002	12.498
A21		1.459	-	1.566	20.216	21.428	0.290	0.211	0.168	1.371	11.214
A31		0.954	-	0.924	21.813	20.889	0.370	0.334	0.042	0.840	12.781
A91		1.256	-	1.174	21.441	21.161	0.315	0.279	0.050	1.018	11.077
C11	II PO	1.842	0.084	1.613	16.942	21.809	0.405	0.319	0.217	1.578	9.510
C71		1.013	0.067	1.201	18.928	18.884	0.291	0.267	0.092	0.856	16.384
C101		1.68	0.07	1.56	16.91	21.41	0.35	0.28	0.18	1.48	14.43
C131		1.71	0.07	1.66	18.61	22.90	0.37	0.31	0.19	1.61	9.83
Ch21		1.36	0.13	1.99	14.68	23.42	0.31	0.29	0.19	0.69	12.69
Ch83		1.541	0.107	2.222	17.052	22.049	0.200	0.232	0.182	0.947	11.510
Ch123		2.24	0.17	2.28	20.20	20.28	0.57	0.22	0.09	0.51	11.11
Ch136		1.827	0.103	2.907	14.995	23.087	0.349	0.198	0.205	0.903	10.576

C1		1.53	-	1.72	21.05	20.24	0.38	0.19	0.02	0.09	11.12
C7		1.16	-	1.50	20.99	22.72	0.42	0.39	0.12	0.53	7.54
C12		1.69	-	1.79	15.68	24.31	0.42	0.39	0.02	1.22	10.34
C18		1.27	-	1.43	19.96	21.64	0.32	0.29	0.02	0.13	10.49
C20		1.59	-	1.72	17.73	22.25	0.35	0.33	0.12	0.86	11.58
C4		1.53	-	1.57	21.47	20.24	0.43	0.16	0.02	0.10	10.57
C18		1.22	-	1.57	19.06	21.36	0.42	0.25	0.02	0.13	12.90
CH4	II POP	1.01	-	1.50	18.88	22.16	0.42	0.36	0.02	0.62	11.27
CH23		1.91	-	2.00	20.81	20.76	0.47	0.22	0.01	0.02	9.95
CH36		0.64	-	1.50	17.01	22.72	0.46	0.47	0.04	0.14	13.29
Ch62		1.23	0.07	1.25	14.29	24.42	0.36	0.42	0.11	0.82	12.13
Ch76		1.39	0.07	1.84	16.28	24.46	0.39	0.43	0.11	0.77	8.77
Ch113		1.34	0.06	1.56	15.38	24.64	0.43	0.42	0.07	0.54	10.36
Ch114		1.78	0.09	1.80	13.08	24.71	0.41	0.36	0.18	0.73	12.35
Ch137		2.58	0.06	2.44	13.97	23.12	0.37	0.24	0.03	0.32	12.96
C13		3.39	-	3.93	14.59	25.06	0.87	0.36	0.03	0.35	5.36
C56		0.74	-	1.00	18.57	25.66	0.47	0.39	0.02	0.33	7.31
CH60		1.01	-	1.21	18.21	25.57	0.44	0.43	0.02	0.37	6.84
C10		2.54	0.10	1.93	15.15	25.16	0.34	0.46	0.23	1.56	7.02
C30		2.28	0.10	2.22	12.51	26.23	0.43	0.19	0.09	0.37	10.57
C120	II PP	0.79	0.03	0.43	24.55	21.65	0.30	0.34	0.07	0.52	6.67
C190		0.53	0.02	0.50	19.60	26.32	0.40	0.37	0.04	0.22	5.94
#101		2.55	0.11	1.79	11.30	25.81	0.30	0.31	0.24	1.78	11.22
#111		2.44	0.11	2.36	12.91	27.45	0.40	0.42	0.24	1.41	6.15
Ch64		0.94	0.05	0.60	11.75	26.75	0.37	0.33	0.12	0.48	12.22
Ch81		1.35	0.06	1.25	13.54	26.81	0.44	0.34	0.16	0.66	8.73
Ch138		1.06	0.06	0.48	12.95	26.93	0.23	0.33	0.05	0.60	11.32

Tableau 2 : Compositions modélisées des chondres.

Chondre compositions modélisées	type	composition chimique (wt%)									
		Al	Ti	Ca	Mg	Si	Cr	Mn	K	Na	Fe
C10		0.33	-	0.64	31.63	20.28	0.16	0.04	0.03	0.22	1.33
#21		1.59	0.10	1.98	24.11	21.43	0.44	0.15	0.10	0.86	4.10
#23		3.78	0.21	4.43	23.79	19.79	0.14	0.04	0.01	0.12	3.37
103B		1.94	0.12	2.38	25.18	20.14	0.27	0.09	0.06	0.46	5.08
A13		2.22	0.14	2.71	27.00	19.58	0.13	0.03	0.02	0.13	3.76
A23	I PO	1.15	0.09	1.51	27.60	18.76	0.15	0.04	0.02	0.17	7.23
A41		1.53	0.10	1.93	26.52	20.04	0.25	0.08	0.05	0.40	4.75
A81		2.38	0.13	2.82	19.26	23.86	0.74	0.27	0.19	1.56	2.20
C21		2.03	0.13	2.50	27.93	20.01	0.14	0.04	0.02	0.15	4.24
C41		1.78	0.12	2.24	29.14	20.68	0.16	0.05	0.02	0.20	2.66
C51		2.65	0.16	3.19	27.78	22.55	0.28	0.09	0.05	0.45	1.50
C61		0.60	0.07	0.92	29.50	19.15	0.15	0.04	0.02	0.17	7.84
CH3		2.36	-	2.85	25.05	21.35	0.19	0.11	0.02	0.17	2.41
C50		1.44	0.09	1.76	18.51	25.75	0.47	0.37	0.07	0.62	3.72
C60		0.93	0.07	1.21	19.71	25.06	0.45	0.34	0.07	0.58	4.89
C90		1.19	0.08	1.53	23.21	24.18	0.35	0.26	0.05	0.43	1.83
#10	I POP	0.23	0.04	0.48	27.18	22.96	0.28	0.19	0.04	0.32	1.89
#20		0.88	0.07	1.19	25.65	23.08	0.28	0.20	0.04	0.33	1.88
#30		1.45	0.10	1.80	22.60	23.76	0.34	0.25	0.05	0.41	2.78
Ch2		2.33	0.13	2.78	21.21	20.59	0.23	0.15	0.03	0.24	8.56
Ch121		1.66	0.10	2.04	21.33	24.43	0.37	0.28	0.05	0.46	2.41
C17		0.98	-	1.27	20.70	26.48	0.41	0.19	0.05	0.37	2.01
C40		1.55	0.09	1.88	17.54	26.78	0.45	0.22	0.05	0.41	3.90
C70	I PP	0.84	0.06	1.11	20.14	27.34	0.44	0.21	0.05	0.41	1.44
#90		0.70	0.06	0.99	24.06	24.67	0.32	0.14	0.04	0.27	1.94
Ch32		1.79	0.10	2.13	15.27	29.01	0.53	0.26	0.07	0.50	1.90
#41		1.14	-	1.43	18.56	20.66	0.36	0.35	0.17	1.37	12.66
41B		1.22	-	1.53	19.07	21.06	0.36	0.35	0.17	1.37	11.06
#51		1.22	-	1.51	18.49	20.32	0.34	0.33	0.16	1.30	13.33
51B		1.00	-	1.29	20.73	19.81	0.29	0.27	0.13	1.05	12.55
A21		1.23	-	1.54	19.79	20.56	0.32	0.31	0.15	1.21	11.40
A31		0.87	-	1.13	17.98	21.03	0.39	0.39	0.19	1.55	13.04
A91		1.02	-	1.32	21.00	20.26	0.30	0.28	0.14	1.09	11.20
C11	II PO	1.52	0.09	1.85	18.11	21.86	0.39	0.39	0.19	1.53	9.70
C71		0.96	0.07	1.24	20.09	18.25	0.25	0.22	0.11	0.86	16.75
C101		1.34	0.08	1.64	17.25	20.19	0.36	0.35	0.17	1.37	14.68
C131		1.40	0.09	1.72	18.51	21.65	0.38	0.38	0.19	1.48	9.97
Ch21		1.74	0.10	2.10	18.62	19.93	0.30	0.29	0.14	1.11	12.93
Ch83		1.74	0.11	2.11	19.45	20.09	0.29	0.27	0.13	1.05	11.68
Ch123		2.43	0.14	2.88	18.95	19.90	0.27	0.24	0.11	0.91	11.17
Ch136		2.04	0.12	2.44	18.67	20.63	0.32	0.30	0.14	1.15	10.69

C1		1.46	-	1.81	21.57	20.11	0.24	0.16	0.03	0.26	11.21
C7		1.19	-	1.47	17.41	24.66	0.47	0.36	0.07	0.61	7.79
C12		1.58	-	1.89	14.64	24.42	0.50	0.39	0.08	0.65	10.62
C18		1.19	-	1.51	21.68	20.66	0.27	0.18	0.03	0.30	10.63
C20		1.51	-	1.79	13.00	24.84	0.54	0.43	0.08	0.72	11.92
C4		1.39	-	1.73	21.72	20.31	0.25	0.17	0.03	0.27	10.81
C18		1.24	-	1.56	20.13	20.30	0.28	0.20	0.04	0.32	13.07
CH4	II POP	1.11	-	1.39	17.85	22.66	0.40	0.30	0.06	0.51	11.43
CH23		1.77	-	2.15	20.92	20.63	0.26	0.18	0.03	0.28	10.19
CH36		0.93	-	1.18	17.23	22.19	0.41	0.30	0.06	0.51	13.54
Ch62		1.12	0.07	1.37	14.02	24.96	0.54	0.43	0.08	0.72	11.40
Ch76		1.36	0.08	1.64	14.56	25.59	0.54	0.43	0.08	0.72	8.93
Ch113		1.20	0.08	1.48	16.26	23.97	0.47	0.36	0.07	0.61	10.51
Ch114		1.64	0.09	1.92	10.25	26.01	0.62	0.50	0.10	0.84	12.55
Ch137		1.83	0.11	2.20	18.24	20.55	0.30	0.21	0.04	0.35	13.39
C13		3.48	-	3.96	9.00	28.92	0.57	0.29	0.07	0.54	5.57
C56		0.77	-	0.97	13.87	28.50	0.57	0.28	0.07	0.55	7.26
CH60		0.99	-	1.24	16.36	26.69	0.48	0.23	0.06	0.45	7.00
C10		1.97	0.11	2.32	13.57	27.01	0.50	0.24	0.06	0.47	7.34
C30		2.01	0.11	2.35	12.43	25.78	0.48	0.24	0.06	0.45	10.99
C120		0.44	0.04	0.62	15.89	27.76	0.53	0.26	0.07	0.51	6.98
C190	II PP	0.30	0.04	0.50	19.41	26.29	0.44	0.21	0.06	0.41	5.72
#101		2.11	0.11	2.43	8.95	27.85	0.59	0.29	0.08	0.56	11.16
#111		2.19	0.11	2.53	9.87	29.76	0.62	0.31	0.08	0.60	6.20
Ch64		0.68	0.05	0.86	11.51	27.43	0.58	0.29	0.08	0.56	12.43
Ch81		1.20	0.06	1.40	7.22	31.49	0.73	0.37	0.10	0.73	8.79
Ch138		0.71	0.05	0.94	16.92	24.76	0.43	0.20	0.05	0.40	10.64

Tableau 3 : Proportions de constituants réfractaires (olivine + liquide réfractaire), métallique et volatil pour chaque chondre dont la composition a été modélisée.

Chondre	type	Olivine réfractaire	liquide réfractaire	métal	liquide volatil
C10		93.8	1.3	1.6	3.3
#21		70.8	10.2	6.2	12.8
#23		68.8	25.2	4.2	1.8
103B		73.8	12.5	6.8	6.9
A13		79.1	14.4	4.6	1.9
A23	I PO	81.4	7.0	8.9	2.7
A41		78.0	9.6	6.2	6.1
A81		56.0	15.7	5.2	23.0
C21		79.9	12.7	5.0	2.4
C41		82.9	10.9	3.1	3.1
C51		75.1	16.0	1.9	7.0
C61		84.8	3.1	9.4	2.7
CH3		73.2	15.4	4.2	7.1
C50		54.3	9.3	7.0	29.5
C60		58.1	5.8	9.4	26.8
C90		68.4	7.4	3.8	20.4
#10	I POP	80.6	0.7	3.6	15.2
#20		75.8	5.2	4.1	15.0
#30		66.4	9.2	6.2	18.2
Ch2		61.9	15.3	11.5	11.4
Ch121		62.6	10.7	6.7	20.0
C17		61.0	6.1	6.2	26.7
C40		51.3	10.1	12.1	26.5
C70	I PP	59.4	5.1	5.5	30.0
#90		71.1	4.0	4.3	20.5
Ch32		44.5	11.8	3.7	40.0
#41		54.6	7.3	18.1	20.1
41B		56.0	7.8	15.7	20.5
#51		54.3	7.8	18.8	19.1
51B		61.1	6.2	17.0	15.7
A21		58.2	7.8	16.2	17.8
A31		53.0	5.4	21.6	20.0
A91		61.9	6.3	16.1	15.7
C11	II PO	53.0	9.8	14.2	23.0
C71		59.2	5.9	22.2	12.7
C101		50.6	8.6	20.6	20.2
C131		54.3	9.0	15.0	21.7
Ch21		54.5	11.4	18.0	16.2
Ch83		56.9	11.3	16.3	15.4
Ch123		55.1	16.1	15.7	13.2
Ch136		54.5	13.4	15.4	16.7

C1	63.3	9.3	15.4	11.9
C7	51.1	7.6	13.8	27.5
C12	42.7	10.4	17.0	29.9
C18	63.8	7.5	14.7	14.0
C20	37.9	9.9	19.2	33.0
C4	63.8	8.8	14.8	12.5
C18	59.2	7.9	17.9	15.0
CH4 II POP	52.5	7.0	16.8	23.7
CH23	61.3	11.5	14.2	13.0
CH36	50.7	5.8	19.3	24.1
Ch62	41.1	7.3	19.0	32.6
Ch76	42.6	8.9	16.5	32.0
Ch113	47.7	7.7	17.1	27.5
Ch114	29.6	11.0	21.4	38.0
Ch137	53.3	12.0	19.4	15.3
C13	25.0	23.6	6.3	45.1
C56	40.8	4.8	14.4	40.0
CH60	48.1	6.3	12.1	33.5
C10	39.3	13.1	9.0	38.5
C30	35.9	13.4	15.6	35.0
C120 II PP	47.0	2.5	11.6	39.0
C190	57.5	1.4	9.3	31.7
#101	25.5	14.2	15.3	45.0
#111	28.3	14.8	7.5	49.5
Ch64	33.9	4.3	15.3	46.5
Ch81	20.9	8.0	16.1	55.0
Ch138	49.9	4.4	15.7	30.0

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Roger HEWINS, Professeur, Museum National d'Histoire Naturelle, Paris

Monsieur Matthieu GOUNELLE, Professeur, Museum National d'Histoire Naturelle, Paris

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur VILLENEUVE Johan

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

"Formation des chondres : précurseurs et chronologie"

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

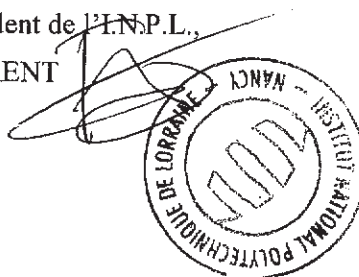
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « **Géosciences** »

Fait à Vandoeuvre, le 21 juin 2010

Le Président de l'IN.P.L.,

F. LAURENT



Formation des chondres : précurseurs et chronologie

Les chondres, sphérules infra-millimétriques composées de minéraux silicatés de haute température, sont les constituants majeurs des météorites primitives. Ils présentent d'importantes variabilités texturales et chimiques révélatrices d'une histoire complexe. Cette thèse s'est intéressée à la chronologie de formation des chondres et de leurs précurseurs à deux échelles de temps distinctes aux moyens de deux approches complémentaires : la géochimie isotopique via le chronomètre isotopique à courte période ^{26}Al - ^{26}Mg et la pétrologie expérimentale.

Le développement au cours de cette thèse d'un protocole analytique innovant de mesure in situ de haute précision par sonde ionique des compositions isotopiques du Mg et Al, a permis de démontrer l'homogénéité de la distribution de ^{26}Al dans le disque d'accrétion, ce qui présente d'importantes implications sur la chronologie relative et les processus de formation des chondres, mais aussi sur l'origine de ^{26}Al dans le Système Solaire. L'application de ce protocole analytique aux olivines reliques des chondres permet de préciser leur origine, ainsi que leur chronologie et leur processus de formation.

Les expérimentations permettent de montrer qu'il est aisé de former des analogues de chondres de type II PO à partir de chondres de type I PO. Un tel processus de formation des chondres implique l'application de régimes thermiques isothermes suivis d'une trempe rapide, incompatibles avec les mécanismes classiques d'ondes de choc. D'autre part, nous montrons que les compositions chimiques en éléments majeurs et traces des différents types de chondres porphyriques peuvent être reproduites par le mélange de trois phases réfractaires solides héritées des précurseurs des chondres (olivine réfractaire, liquide réfractaire et métal) et d'une phase gazeuse riche en éléments volatils et modérément volatils. Ces résultats nous ont conduit à proposer un modèle de filiation entre les chondres.

Mots-clé : chondres, chronologie isotopique, ^{26}Al , pétrologie expérimentale, précurseurs, sonde ionique, jeune système solaire.

Formation of chondrules: precursors and chronology

Chondrules are the major constituent of primitive meteorites. The large variability of textures and chemical compositions within chondrules is indicative of a complex history. This work is focused on the chronology of formation of chondrules and of their precursors by using two complementary tools: the short-lived radio-isotopes ^{26}Al - ^{26}Mg and the experimental petrology.

The development of a high precision analytical methodology for in situ measurements of the Mg and Al isotopic compositions by ion probe allows to demonstrate that the distribution of ^{26}Al was homogeneous within the accretion disk. This result has important implications for the chronology and process of chondrule formation and also for the origin of ^{26}Al in the Solar System. By using the same methodology with relict olivines in chondrules, we were able to constrain their origin and their formation process.

From experimental petrology studies, we show that it was easy to form type II PO chondrules analogues from type I PO analogues. Such a process for chondrules formation implies an isothermal heating followed by a quick quench which is incompatible with the classical shock-waves model. Moreover, we show that the chemical compositions for major and trace elements of the different types of porphyritic chondrules can be easily reproduced by a mixing model composed of three refractory phases inherited from chondrules precursors (refractory olivine, refractory liquid and iron metal) and a gas phase enriched in volatile and moderately volatile elements. Finally, we propose a model of genetic linkage between the different types of porphyritic chondrules.

Keywords: chondrules, isotopic chronology, ^{26}Al , experimental petrology, precursors, ion microprobe, early solar system.

Formation des chondres : précurseurs et chronologie

Les chondres, sphérules infra-millimétriques composées de minéraux silicatés de haute température, sont les constituants majeurs des météorites primitives. Ils présentent d'importantes variabilités texturales et chimiques révélatrices d'une histoire complexe. Cette thèse s'est intéressée à la chronologie de formation des chondres et de leurs précurseurs à deux échelles de temps distinctes aux moyens de deux approches complémentaires : la géochimie isotopique via le chronomètre isotopique à courte période ^{26}Al - ^{26}Mg et la pétrologie expérimentale.

Le développement au cours de cette thèse d'un protocole analytique innovant de mesure *in situ* de haute précision par sonde ionique des compositions isotopiques du Mg et Al, a permis de démontrer l'homogénéité de la distribution de ^{26}Al dans le disque d'accrétion, ce qui présente d'importantes implications sur la chronologie relative et les processus de formation des chondres, mais aussi sur l'origine de ^{26}Al dans le Système Solaire. L'application de ce protocole analytique aux olivines reliques des chondres permet de préciser leur origine, ainsi que leur chronologie et leur processus de formation.

Les expérimentations permettent de montrer qu'il est aisé de former des analogues de chondres de type II PO à partir de chondres de type I PO. Un tel processus de formation des chondres implique l'application de régimes thermiques isothermes suivis d'une trempe rapide, incompatibles avec les mécanismes classiques d'ondes de choc. D'autre part, nous montrons que les compositions chimiques en éléments majeurs et traces des différents types de chondres porphyriques peuvent être reproduites par le mélange de trois phases réfractaires solides héritées des précurseurs des chondres (olivine réfractaire, liquide réfractaire et métal) et d'une phase gazeuse riche en éléments volatils et modérément volatils. Ces résultats nous ont conduit à proposer un modèle de filiation entre les chondres.

Mots-clé : chondres, chronologie isotopique, ^{26}Al , pétrologie expérimentale, précurseurs, sonde ionique, jeune Système Solaire.

Formation of chondrules: precursors and chronology

Chondrules are the major constituent of primitive meteorites. The large variability of textures and chemical compositions within chondrules is indicative of a complex history. This work is focused on the chronology of formation of chondrules and of their precursors by using two complementary tools: the short-lived radio-isotope ^{26}Al - ^{26}Mg systematic and the experimental petrology.

The development of a high precision analytical methodology for *in situ* measurements of the Mg and Al isotopic compositions by ion probe allows to demonstrate that the distribution of ^{26}Al was homogeneous within the accretion disk. This result has important implications for the chronology and process of chondrule formation and also for the origin of ^{26}Al in the Solar System. By using the same methodology with relict olivines in chondrules, we were able to constrain their origin and their formation process.

From experimental petrology studies, we show that it was easy to form type II PO chondrules analogues from type I PO analogues. Such a process for chondrules formation implies an isothermal heating followed by a quick quench which is incompatible with the classical shock-waves model. Moreover, we show that the chemical compositions for major and trace elements of the different types of porphyritic chondrules can be easily reproduced by a mixing model composed of three refractory phases inherited from chondrules precursors (refractory olivine, refractory liquid and iron metal) and a gas phase enriched in volatile and moderately volatile elements. Finally, we propose a model of genetic linkage between the different types of porphyritic chondrules.

Keywords: chondrules, isotopic chronology, ^{26}Al , experimental petrology, precursors, ion microprobe, early solar system.