

## LES ORIGINES NATURELLES DE LA RADIOACTIVITE DANS L'ATMOSPHERE

**Didier L. BOURLES**

AIX-MARSEILLE UNIVERSITE

CEREGE, Technopôle de l'Environnement Arbois-Méditerranée, BP80, 13545 Aix-en-Provence, France

[bourles@cerege.fr](mailto:bourles@cerege.fr)

Outre le radon, radio-élément gazeux sixième descendant de l'uranium-238 dans la chaîne de décroissance de ce dernier, qui s'échappe du sol vers l'atmosphère s'il est produit au sein d'une roche suffisamment proche de la surface, de nombreux autres radionucléides sont produits directement dans l'atmosphère lors d'interactions nucléaires entre les particules primaires et secondaires très énergétiques du rayonnement cosmique et les noyaux atomiques des constituants de l'atmosphère terrestre.

Les particules du rayonnement cosmique bombardent en effet en permanence et de manière isotrope le sommet de l'atmosphère terrestre. Le rayonnement cosmique primaire est composé à 99% de particules chargées positivement : protons (p) et noyaux d'hélium ( $\alpha$ ), et pour 1% de noyaux lourds et d'électrons. Il semble être associé aux galaxies dans tout l'Univers puisque les ondes électromagnétiques qu'il génère sont observables aussi bien dans le disque et le halo de notre Voie Lactée que dans ceux des autres galaxies. L'origine la plus communément admise pour le rayonnement cosmique est l'accélération par des ondes de choc, telles que celles générées par l'explosion d'une supernova, de plasmas interstellaires. Si les particules les plus énergétiques du rayonnement cosmique proviennent donc de l'extérieur du Système Solaire, des particules énergétiques sont également produites par le Soleil. Les composantes solaire et galactique diffèrent par leurs compositions, leurs distributions en énergie et leurs intensités en fonction du temps.

### **Les nucléides cosmogéniques.**

Dès lors qu'elles atteignent l'environnement terrestre, l'énergie des particules du rayonnement cosmique est efficacement dissipée au cours de réactions nucléaires avec les atomes constituant cet environnement. Du fait de ces interactions, le flux et l'énergie des particules primaires et des particules secondaires (essentiellement des neutrons) produites dans les cascades nucléaires décroissent rapidement selon une loi exponentielle fonction de l'épaisseur d'atmosphère traversée. L'essentiel des réactions nucléaires se produit donc dans la haute atmosphère : vers 19 km d'altitude, il ne reste plus que 37% des protons primaires, à 12 km il n'en reste plus que 5% et au niveau référence, c'est-à-dire au niveau de la mer, 0,00003%. De même, pratiquement toutes les particules secondaires dissipent leur énergie dans l'atmosphère. Seulement environ 0,1% d'entre elles atteignent le niveau référence avec suffisamment d'énergie pour induire des réactions nucléaires dans les minéraux composant les roches de la croûte terrestre exposées en surface. Les noyaux atomiques formés dans l'environnement terrestre lors de réactions nucléaires induites à la fois directement par les particules du rayonnement cosmique et, majoritairement, par les particules secondaires issues de ce même rayonnement sont désignés sous le terme générique de nucléides cosmogéniques. Alors donc que dans l'atmosphère le taux de production des nucléides cosmogéniques croît lorsque l'altitude augmente, dans la croûte terrestre l'intensité du rayonnement cosmique, et par voie de conséquence le taux de production des nucléides cosmogéniques, décroît en fonction de la profondeur de matière traversée selon une loi exponentielle.

Aussi bien dans l'atmosphère que dans la croûte terrestre, les réactions nucléaires dissipant l'énergie des particules cosmiques primaires et secondaires sont des réactions de spallation, c'est-à-dire des réactions au cours desquelles la particule impactante (majoritairement un neutron) a suffisamment d'énergie pour arracher des particules constitutives (neutrons et protons) au noyau atomique cible sans être capturée, et donc laisser comme résidu un noyau d'une espèce chimique différente puisque à la fois le numéro atomique (nombre de protons) et le nombre de masse (nombre de protons + nombre de neutrons) sont inférieurs à celui du noyau cible originel. Les neutrons de faible énergie résultant de ces processus dissipatifs, appelés neutrons thermiques, conduisent par ailleurs à des réactions de capture neutronique produisant également certains nucléides cosmogéniques. Parmi les six nucléides cosmogéniques communément utilisés en géosciences, à savoir  $^3\text{He}$  (stable),  $^{10}\text{Be}$  ( $T_{1/2} = 1,4 \cdot 10^6$  ans),  $^{14}\text{C}$  ( $T_{1/2} = 5.730$  ans),  $^{21}\text{Ne}$  (stable),  $^{26}\text{Al}$  ( $T_{1/2} = 0,7 \cdot 10^6$  ans) et  $^{36}\text{Cl}$  ( $T_{1/2} = 0,3 \cdot 10^6$  ans), le nucléide cosmogénique  $^{10}\text{Be}$  est à titre d'exemple produit à la fois dans l'atmosphère à partir des deux principaux constituants que sont l'azote ( $^{14}\text{N}$ ) et l'oxygène ( $^{16}\text{O}$ ) à travers les réactions de spallation  $^{14}\text{N}(n,3p)^{10}\text{Be}$  et  $^{16}\text{O}(n,4p3n)^{10}\text{Be}$ , et dans la croûte terrestre, principalement à partir de l'oxygène et du silicium, pour lequel la réaction de spallation est  $^{28}\text{Si}(n,10p9n)^{10}\text{Be}$ . Produit dans l'atmosphère à partir de la spallation de l'oxygène  $^{16}\text{O}(n,2p)^{14}\text{C}$ , le  $^{14}\text{C}$  est également à partir d'une capture neutronique par l'azote  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ .

La concentration de la variété atmosphérique des nucléides cosmogéniques dans les réservoirs où ils se déposent est proportionnelle au flux de rayonnement cosmique entrant dans l'environnement terrestre au moment de l'accumulation du réservoir étudié. La mesure de la concentration des nucléides cosmogéniques déposés par les précipitations dans les réservoirs géologiques est donc un moyen de retracer l'histoire des variations passées de ce flux frappant l'atmosphère terrestre. Trois causes principales sont à l'origine de ces variations. Outre les variations du flux du rayonnement cosmique primaire dues aux variabilités des sources, le flux de rayonnement cosmique dépend également des variations de l'intensité de l'activité solaire et des variations de l'intensité du champ magnétique terrestre. Constitué de particules chargées, le rayonnement cosmique primaire est en effet dévié sous l'action de la force de Lorentz due à un champ magnétique tel que celui généré par les plasmas de matière solaire et par la géodynamo. L'étude de la variation de la concentration en nucléides cosmogéniques atmosphériques, enregistrée au cours du temps dans certaines archives géologiques, offre donc l'opportunité d'améliorer la connaissance des variations des modulations de l'intensité du rayonnement cosmique galactique, de l'activité solaire et du champ magnétique terrestre. De plus, la variété atmosphérique des nucléides cosmogéniques radioactifs est également un outil potentiel de datation absolue des réservoirs dans lesquels ils s'accumulent. Ils apparaissent particulièrement bien adaptés pour préciser la chronologie aussi bien des enregistrements sédimentaires marins et continentaux que des accumulations glaciaires polaires et continentales. Par ailleurs, la mise en évidence et la caractérisation d'événements remarquables globaux générant une variation significative simultanée de la concentration en nucléides cosmogéniques atmosphériques dans différents types de réservoir devrait en permettre la corrélation chrono stratigraphique.

### **La spectrométrie de masse par accélérateur.**

Le mode de production des nucléides cosmogéniques implique qu'ils sont rares dans les milieux naturels. En comparaison, les isotopes (même numéro atomique mais nombre de masse différent) et les isobares (numéro atomique différent mais même nombre de masse) de ces nucléides cosmogéniques sont extrêmement abondants dans ces mêmes milieux naturels.

Ainsi, bien que l'abondance naturelle relative de l'isotope stable  $^9\text{Be}$  soit exceptionnellement faible du fait de son instabilité nucléaire aux hautes températures stellaires, la concentration de cet isotope et de l'isobare stable du bore ( $^{10}\text{B}$ ) est au moins  $10^8$  fois plus élevée que celle de  $^{10}\text{Be}$ . De tels rapports d'abondance interdisent l'emploi de la technique de spectrométrie de masse classique dont le niveau de séparation en abondance ne peut être supérieur à  $10^5$ - $10^6$ . Il en va de même pour l' $^{26}\text{Al}$  dont le taux de production atmosphérique est 250 fois inférieur à celui de  $^{10}\text{Be}$  et dont l'isotope stable,  $^{27}\text{Al}$ , est naturellement très abondant ( $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} \sim 10^{-14}$ - $10^{-15}$ ). Pour le  $^{36}\text{Cl}$ , les rapports d'abondance  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  sont compris entre  $10^{-12}$  et  $2 \cdot 10^{-14}$ . La technique conventionnelle de comptage des décroissances radioactives pose aussi de sévères problèmes techniques. Le taux de production de  $^{10}\text{Be}$  dans l'atmosphère étant environ 100 fois plus faible et sa période 300 fois plus longue que pour  $^{14}\text{C}$ , l'activité de  $^{10}\text{Be}$  arrivant sur Terre est environ  $3 \cdot 10^4$  fois plus faible que celle de  $^{14}\text{C}$ , celle de  $^{26}\text{Al}$  et de  $^{36}\text{Cl}$  étant, respectivement, environ  $3 \cdot 10^6$  et  $3 \cdot 10^5$  fois plus faible que celle de  $^{14}\text{C}$ . Pour pallier à cette faible activité, les mesures de concentration de ces nucléides cosmogéniques dans différents types de substrat impliqueraient l'analyse d'importantes quantités de matière (plusieurs centaines de grammes). De plus, la nécessité d'isoler, à partir de ces grandes quantités, du béryllium, de l'aluminium et du chlore radiochimiquement très pur requiert une chimie longue et difficile. La nécessité, pour exploiter les potentialités offertes par les nucléides cosmogéniques  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$  et  $^{36}\text{Cl}$ , d'abaisser la limite de détection au niveau de quelques centaines de milliers d'atomes, soit une réduction d'au moins quatre ordres de grandeur par rapport à la technique conventionnelle de comptage des décroissances radioactives, et de simplifier la chimie d'extraction des nucléides cosmogéniques à analyser, a conduit au développement de la technique de Spectrométrie de Masse par Accélérateur. Le principe de la Spectrométrie de Masse par Accélérateur est inspiré du fait « qu'il est préférable de compter les atomes radioactifs plutôt que d'attendre qu'ils décroissent ». Pour identifier, détecter et enfin compter les atomes étudiés, il nous faut avoir accès à toutes les propriétés nucléaires de l'élément, c'est-à-dire à la fois à son nombre de masse et à son numéro atomique qui le caractérisent sans ambiguïté. Au nombre de masse correspond pour une énergie donnée un seul rayon de courbure dans un champ magnétique donné, au numéro atomique correspond une perte d'énergie spécifique dans une épaisseur de matière donnée (loi dite de Bethe-Bloch). L'utilisation de la caractéristique univoque de la perte d'énergie dans une faible épaisseur de matière suivie de la détection – caractérisation dans un détecteur adéquat de l'atome à analyser n'est possible que si celui-ci possède une énergie suffisamment élevée pour que ces deux étapes puissent être réalisées séquentiellement. C'est pourquoi, très schématiquement, la Spectrométrie de Masse par Accélérateur introduit un étage d'accélération entre la partie source et la partie analyse d'un spectromètre de masse classique.

Une des avancées les plus remarquable liée au développement de cette nouvelle technique d'analyse est l'amélioration effective d'un facteur un million à un milliard de la sensibilité de détection relativement aux techniques plus classiques, et ce pour l'ensemble des éléments étudiés jusqu'à ce jour. Cette amélioration a de nombreuses conséquences. Grâce à la Spectrométrie de Masse par Accélérateur, il est désormais possible :

- de travailler à partir de quantités de matière suffisamment faibles pour permettre des études haute résolution,
- de dater différents types de substrat sur une gamme temporelle ( $\sim 10$  périodes ( $T_{1/2}$ )) beaucoup plus étendue que celle accessible auparavant,
- de réduire considérablement la durée nécessaire à l'acquisition des résultats (de quelques minutes à quelques heures),
- de très sensiblement simplifier les manipulations physiques et chimiques nécessaires à la préparation des échantillons pour leur analyse.