Distribution des radionucléides naturels (226Ra et 227Ac) le long de la section GA01 dans l'Atlantique Nord

L'Atlantique Nord subpolaire, région de formation de masses d'eau profonde, est une région clé pour la circulation thermohaline mondiale et est donc sensible au changement climatique. C'est dans ce contexte que la campagne GEOVIDE a été réalisée entre le Portugal, le Groenland et Terre-Neuve dans le cadre du programme GEOTRACES (GA01 ; 15 mai au 30 juin 2014-R/V Pourquoi Pas ?). Cette campagne ayant traversé différentes caractéristiques topographiques et régions biogéochimiques, a fourni un cadre unique pour l'étude i) du mélange océanique, ii) du transport des masses d'eau et iii) des apports d'éléments chimiques libérés par les sédiments puis déposés sur les marges continentales. Les radionucléides naturels utilisés dans cette thèse comme traceurs sont le radium 226 (226 Ra, $t_{1/2}=1602$ y) et l'actinium-227 (227 Ac, $t_{1/2}=21,7$ y). En raison de leurs différentes demi-vies, ces radionucléides se comportent différemment dans l'océan et peuvent être utilisés pour étudier ces différents processus.

Premièrement, une section détaillée des activités de ²²⁶Ra dissous associées aux concentrations de baryum dissous (Ba) est reportée dans cette thèse. Le ²²⁶Ra et le Ba ont été largement utilisés comme traceurs des masses d'eau et du mélange océanique, l'étude de leur comportement dans cette région est donc cruciale. L'utilisation du rapport ²²⁶Ra/Ba comme chronomètre de la circulation globale est évalué par une analyse multiparamétrique optimale. Les résultats montrent que les distributions de ²²⁶Ra et de Ba résultent principalement d'un mélange conservatif, notamment à des profondeurs intermédiaires (c'est-à-dire loin des interfaces océaniques). ²²⁶Ra et Ba peuvent donc être considérés comme des traceurs conservatifs du transport des masses d'eau à l'intérieur de l'océan à l'échelle du bassin. Cependant, aux limites de l'océan, ²²⁶Ra et Ba ont montré des comportements non-conservatifs dus aux apports sédimentaires, fluviaux et possiblement hydrothermaux. Les particules en suspension qui se forment dans la partie supérieure de la colonne d'eau et qui se déposent sur les fonds marins peuvent également avoir une incidence sur la distribution du ²²⁶Ra et du Ba.

Deuxièmement, le comportement du ²²⁷Ac dans l'Atlantique Nord est étudié. ²²⁷Ac est principalement libéré par les sédiments profonds. En raison de la faible abondance de ²²⁷Ac dans l'eau de mer, l'analyse de ce radionucléide nécessite l'utilisation d'instruments à haute sensibilité et avec de faible bruit de fond ainsi que le prélèvement d'échantillons de grand volume. Dans ce travail, l'évaluation d'une technique de préconcentration *in situ* utilisant des cartouches imprégnées d'oxyde de manganèse est présentée. Cette thèse fournit également une des premières sections de ²²⁷Ac dans l'océan et est comparée à la section de protactinium-231 dissous (père du ²²⁷Ac). La distribution de ²²⁷Ac a mis en évidence un comportement conservateur à l'intérieur de l'océan avec un excès de ²²⁷Ac près du fond marin, reflétant des apports externes tels que la diffusion des sédiments et des apports des couches néphéloïdes aux limites de l'océan. Le comportement du ²²⁷Ac se révèle plus complexe que les études précédentes ne l'ont montré. En effet, des paramètres supplémentaires sont nécessaires pour utiliser le ²²⁷Ac comme traceur de mélange vertical.

Mots-clés: GEOTRACES, Radionucléides, Océan Atlantique Nord, Radium, Baryum, Actinium

Distribution of naturally occurring radionuclides (226Ra and 227Ac) along GA01 section in the North Atlantic

The Subpolar North Atlantic, being a region of deep water mass formation, is a key region for the global thermohaline circulation and is thus sensitive to climate change. In this context, the GEOVIDE cruise was carried out between Portugal, Greenland and Newfoundland as part of the GEOTRACES program (GA01; May 15 to June 30, 2014—R/V Pourquoi Pas?). This cruise, which crossed different topographic features and biogeochemical regions, provided a unique framework for the study of i) ocean mixing, ii) transport of water masses and iii) inputs of chemical elements released by the sediments deposited onto continental margins. Naturally occurring radionuclides is used as tracers: radium-226 (226 Ra, $t_{1/2} = 1602$ y) and actinium-227 (227 Ac, $t_{1/2} = 21.7$ y). Due to their different half-lives, these radionuclides behave differently in the ocean and can be used to study these various processes.

First, a detailed section of dissolved ²²⁶Ra activities associated with dissolved barium (Ba) concentration is reported. Because ²²⁶Ra and Ba have been widely used as tracers of water masses and ocean mixing, their behavior in this crucial region is investigated more thoroughly. The use of the ²²⁶Ra/Ba ratio as a chronometer of the global circulation is evaluated using an optimum multiparameter analysis. Results show that 226Ra and Ba distributions mainly result from conservative mixing, notably at intermediate depths (i.e., away from the ocean interfaces). ²²⁶Ra and Ba can thus be considered as conservative tracers of water mass transport in the ocean interior at basin scales. However, at the ocean boundaries ²²⁶Ra and Ba displayed non-conservative behaviors due to sedimentary, river and possibly hydrothermal inputs. Suspended particles that form in the upper water column which settle to the seafloor may also impact the distributions of ²²⁶Ra and Ba. Second, the behavior of ²²⁷Ac in the North Atlantic is investigated. ²²⁷Ac is primarily released by deep-sea sediments. Due to the low abundance of ²²⁷Ac in seawater, the analysis of this radionuclide requires the use of high-sensitivity, low-background instruments and the collection of large volume samples. In this work, an evaluation of an in situ pre-concentration technique that relies on cartridges impregnated with manganese oxide is presented. This thesis also provides one of the first sections of ²²⁷Ac in the world ocean, which is compared to the section of dissolved protactinium-231, the mother nuclide of ²²⁷Ac. The ²²⁷Ac distribution highlighted conservative behavior in the ocean interior with an excess of ²²⁷Ac near the seafloor, reflecting external inputs such as diffusion from sediment and inputs from nepheloid layers at the ocean boundaries. The behavior of ²²⁷Ac is more complicated than previous studies have shown; additional parameters are required in order to use ²²⁷Ac as a vertical mixing tracer.

Keywords: GEOTRACES, Radionucléides, Océan Atlantique Nord, Radium, Barium, Actinium