

# Utilisation des isotopes de l'uranium ( $^{234}\text{U}$ et $^{238}\text{U}$ ) : vers une explication des excès de $^4\text{He}$ dans les eaux souterraines

Pauline MÉJEAN<sup>1,2\*</sup>, Geneviève Vautour<sup>1,2</sup>, Daniele L. PINTI<sup>1,2</sup>, Bassam GHALEB<sup>1,2</sup>, Marie LAROCQUE<sup>1,2</sup>

1. GEOTOP-UQAM, Montreal, QC, Canada  
 2. Département des sciences de la Terre et de l'atmosphère, UQAM, Montreal, QC, Canada  
 \* mejeanpauline@gmail.com (presenting author)

## Résultats et discussion

## Le bassin versant de Bécancour

Les eaux souterraines circulent globalement depuis les Appalaches vers le fleuve Saint-Laurent dans les aquifères granulaires libres à semi-captifs (sables lacustres et marins du Quaternaire [2]) et confinés et fracturés contenus dans les formations ordoviciennes (carbonates et molasses). Les échantillons ont été pris le long de l'écoulement régional NE-SO depuis la recharge, et ensuite orientés SE-NO dans un synclinal où des eaux plus minéralisées (potentiellement plus âgées) circulent (fig. 2). Dans les échantillons étudiés, la composition chimique des eaux souterraines est influencée par l'invasion de la Mer de Champlain et par la diversité lithologique des roches [3].

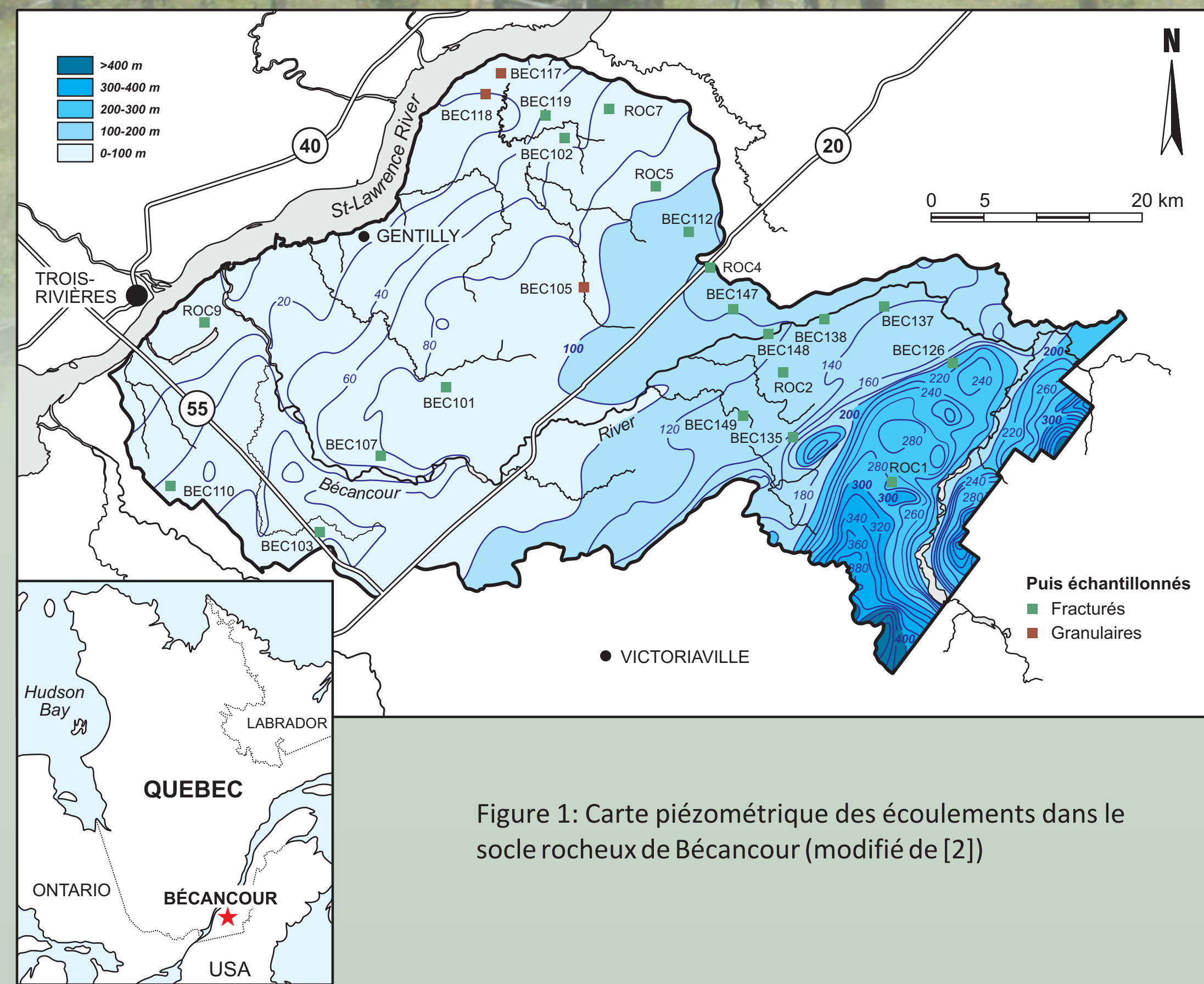


Figure 1: Carte piézométrique des écoulements dans le socle rocheux de Bécancour (modifié de [2]).

## Introduction

Les isotopes de l'uranium et des gaz rares ont été mesurés dans les eaux souterraines du bassin de la Bécancour (fig.1, programme PACES), afin de quantifier les interactions eau-aquifère et déterminer les temps de résidence des celles-ci dans l'aquifère. La présence de tritium a permis de calculer des âges pour les eaux les plus jeunes (demi-vie de 12,43 ans). Pour dater les eaux plus anciennes, les âges  $^{14}\text{C}$  n'étant pas exploitables dans notre cas, une autre méthode consiste à mesurer l' $^4\text{He}$  issu des désintégrations  $\alpha$  de l'U et du Th contenus dans la roche.

Des excès de  $^4\text{He}$  par rapport à ceux produit in situ dans la roche ont été souvent observé, comme ici à Bécancour [1] créant surestimations des âges  $(\text{U} + \text{Th})/^4\text{He}$  calculés. Nous proposons de faire le lien entre les excès en  $^4\text{He}$  mesurés et les rapports d'activités isotopiques ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) mesurés dans les eaux pour essayer de comprendre l'origine de ces excès (fig.2).

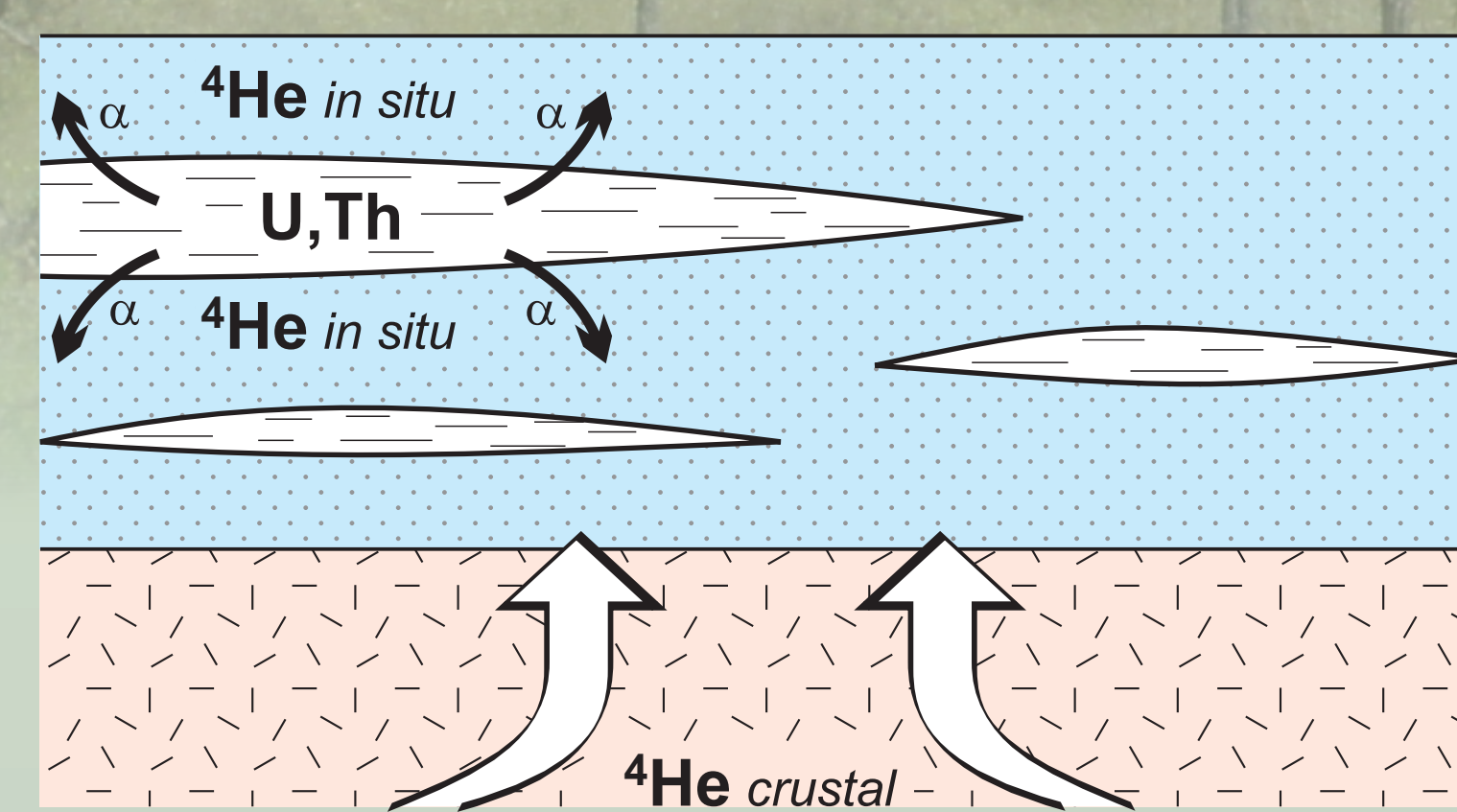


Figure 2: Représentation de deux sources de  $^4\text{He}$ .  $^4\text{He}_{\text{in situ}}$  produit par désintégration de l'U et du Th contenus dans les minéraux des formations encaissantes et  $^4\text{He}_{\text{crustal}}$  issu d'une source externe à l'aquifère.

Les concentrations en uranium dissous sont faibles, allant de  $0,0200 \pm 0,0001$  à  $2,9393 \pm 0,0117$  ppb. Malgré cela, l'ensemble des rapports d'activité isotopiques ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) est supérieur à 1, allant de  $1,1449 \pm 0,0136$  à  $6,0695 \pm 0,1360$ . Le rapport d'activité isotopique ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) tend à augmenter depuis la distance à la recharge (fig.6). Dans la zone de recharge, l'infiltration des eaux météoriques chargées en  $\text{CO}_2$  dissous le matériel encaissant permettant la mise en solution de  $^{234}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  avec un rapport d'activité isotopique ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) proche de 1 (équilibre séculaire). Le long de la ligne d'écoulement, de même temps que les eaux se minéralisent, elles accumulent l'isotope  $^{234}\text{U}$  lessivé et transporté par les carbonates et les chlorures, comme le souligne la tendance linéaire avec l'alcalinité mesurée dans les eaux (fig. 7).

Il existe une relation entre âges  $^3\text{H}/^4\text{He}$  et les rapports ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) (fig.8). Les eaux les plus jeunes proviennent des aquifères les plus superficiels et ont les rapports les plus faibles. De même que les âges  $^3\text{H}/^4\text{He}$  augmentent, les rapports augmentent suggérant l'accumulation de l'isotope  $^{234}\text{U}$  en lien avec le temps de contact eau-roche.

En observant l'évolution du rapport R/Ra, comme décrit précédemment (fig.5), les eaux tritiogéniques (< 60 ans) ont les rapports les plus faibles, alors qu'au delà de 60 ans, les eaux deviennent à composante radiogéniques plus forte et les rapports ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) mesurés sont les plus élevés (fig. 8).

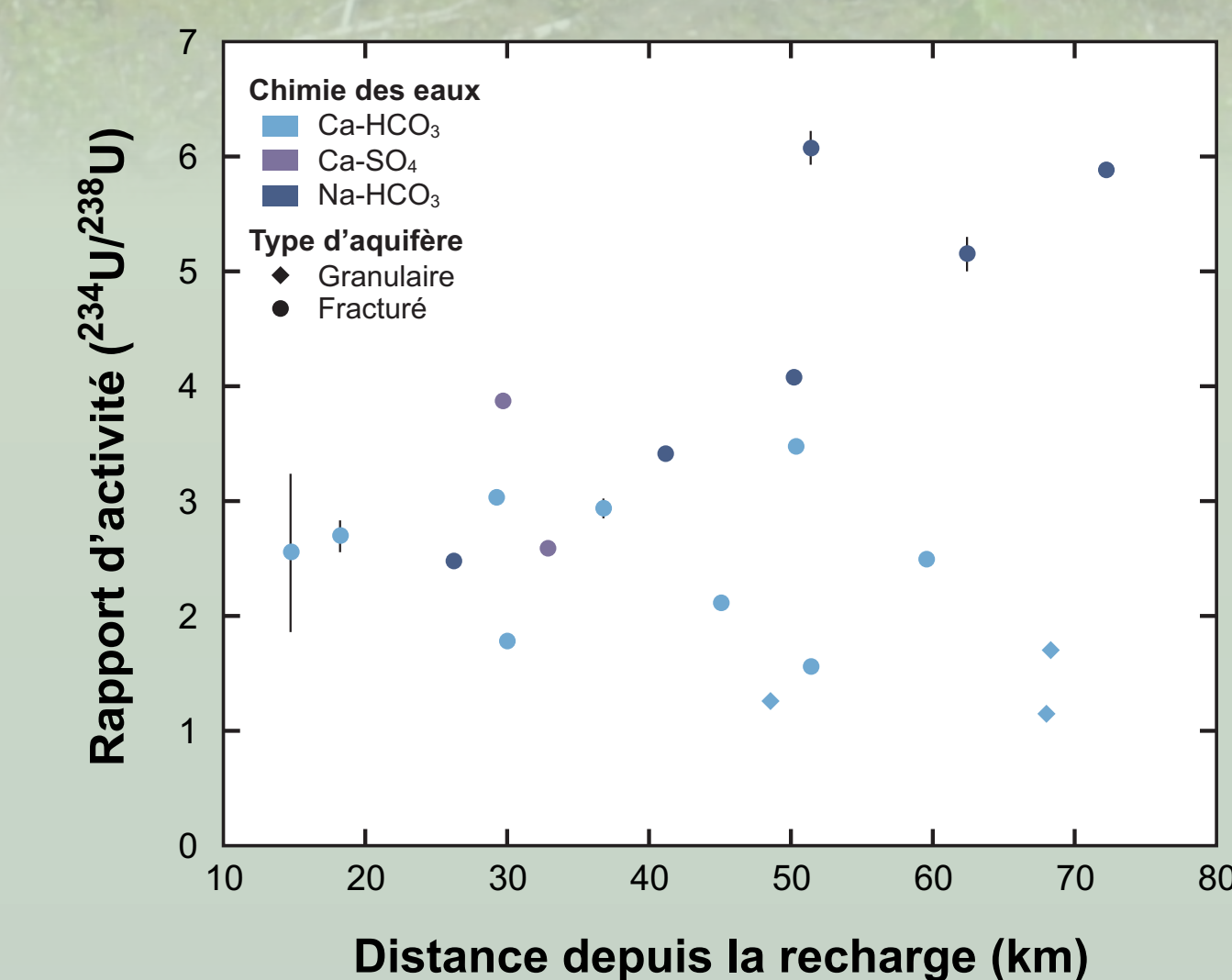
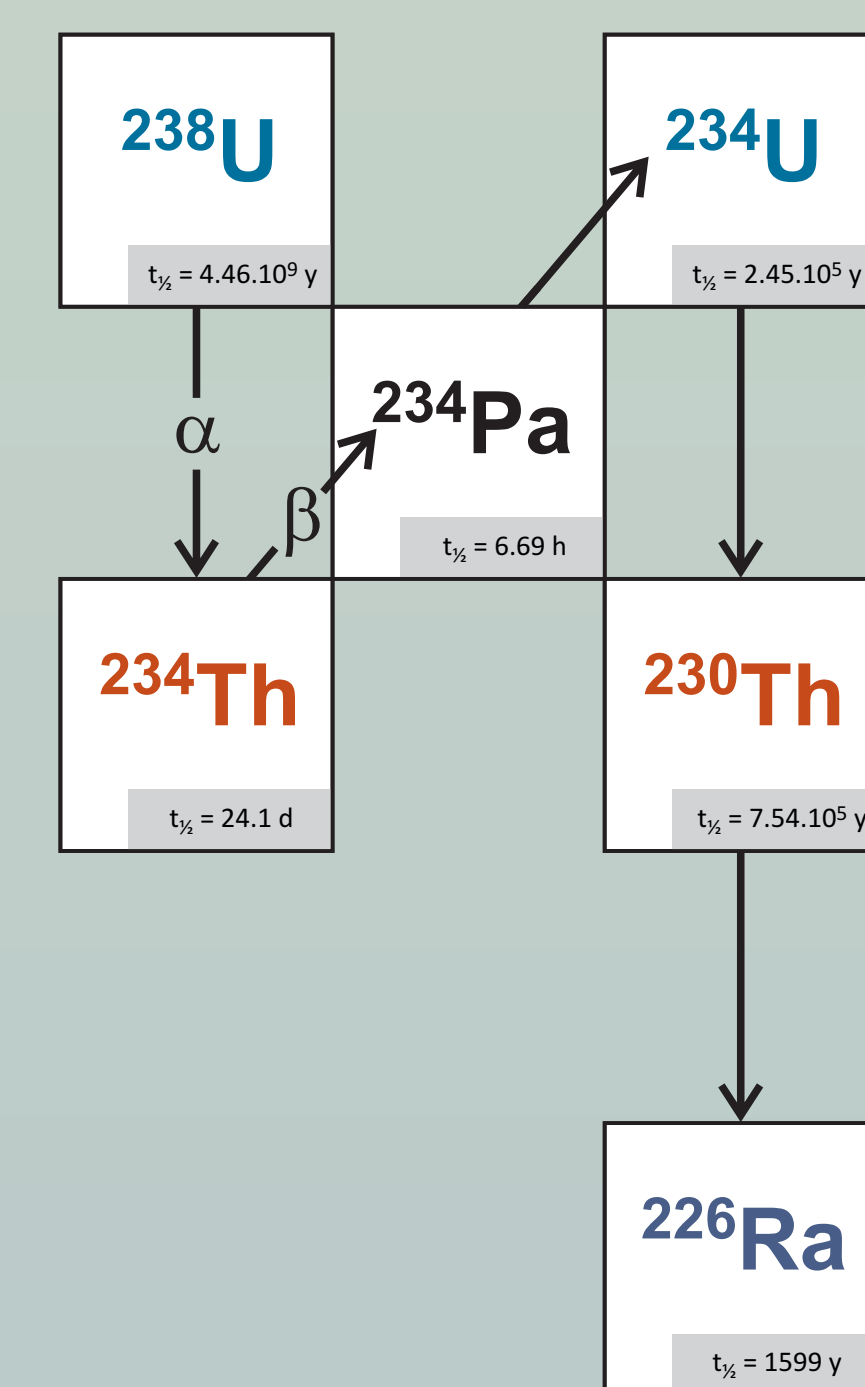


Figure 6: Évolution du rapport d'activité isotopique ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) en fonction de la distance la recharge.

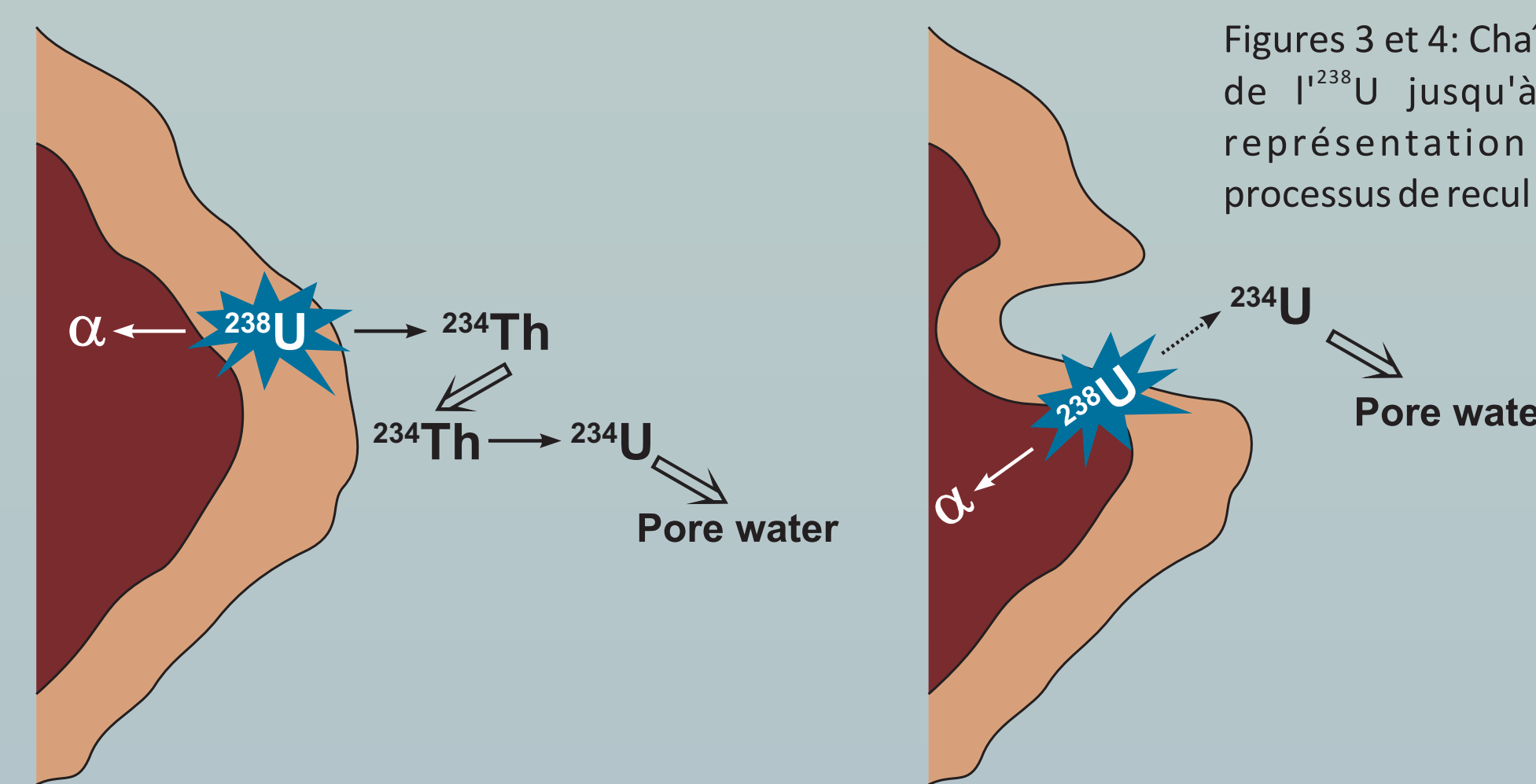
## Méthodologie

L'uranium possède trois isotopes naturels  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{234}\text{U}$ . En milieu oxydant,  $\text{U}^{6+}$  forme des complexes avec les carbonates, chlorures, sulfates et matières organiques. Alors qu'en milieu réducteur,  $\text{U}^{4+}$  tend à précipiter sous forme particulière.

Dans les eaux souterraines, on peut observer un fractionnement entre  $^{236}\text{U}$  et  $^{234}\text{U}$  que l'on peut attribuer à l'effet de recul [4]: lors de la désintégration de  $^{236}\text{U}$  en  $^{234}\text{Th}$ , une particule  $\alpha$  ( $^4\text{He}$ ) est émise avec une énergie suffisante pour éjecter le  $^{234}\text{Th}$  produit à la surface du grain ou bien directement dans l'eau poreuse (fig.4). Alors que  $^{238}\text{U}$  restera dans le réseau cristallin,  $^{234}\text{U}$  sera d'avantage susceptible de passer en solution par lessivage préférentielle [5].



Figures 3 et 4: Chaîne de désintégration de  $^{238}\text{U}$  jusqu'à l'isotope  $^{226}\text{Ra}$  et représentation schématique du processus de recul alpha (tiré de [5]).



## Conclusion

Dans les eaux souterraines de Bécancour, le transport des isotopes de l'uranium en solution ( $^{234}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ ) est fortement influencé par la composition chimique des eaux souterraines. Les tendances linéaires entre le rapport ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) et l'alcalinité (ainsi que la conductivité) sont cohérentes avec l'augmentation du fractionnement depuis la recharge vers l'aval du bassin versant. Le temps de contact eau-roche est le deuxième paramètre le plus influençant : une fois la nappe atteinte, les eaux accumulent préférentiellement l'isotope  $^{234}\text{U}$  par rapport au  $^{238}\text{U}$ . L' $^4\text{He}$ , lui aussi issu des désintégrations de type alpha, s'accumule dans les eaux les plus anciennes. La prochaine étape consiste à estimer la vitesse de relâche de  $^{234}\text{U}$  dans les eaux en faisant le bilan de masse de l'uranium à l'échelle de la zone d'étude. Une fois ceci appréhendé, les vitesses de mise en solution de l' $^4\text{He}$  par processus alpha pourront être affinées et adaptées aux aquifères étudiés ici.

L'hypothèse d'un flux externe en  $^4\text{He}$  est également à l'étude. Une fois mise en commun, ces deux sources devraient pouvoir nous permettre d'adapter la méthode de datation  $(\text{U} + \text{Th})/^4\text{He}$  dans les aquifères des Basses-Terres du Saint-Laurent et pourront permettre d'apporter un regard nouveau regard sur le temps de résidence des eaux souterraines du Québec.

## Évolution chimique des eaux

Au moment de leur infiltration, les eaux météoriques acquièrent une chimie de type Ca-HCO<sub>3</sub> et des rapports ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) proches de 1 sont alors mesurés suite à la dissolution du matériel encaissant (fig.5). Le tritium  $^3\text{H}$  et l'hélium atmosphérique passent en solution en équilibre avec l'atmosphère, impliquant un rapport R/Ra = 1 [ $R = (^3\text{H}/^4\text{He})_{\text{échantillon}} / (^3\text{H}/^4\text{He})_{\text{atmosphérique}}$ ]. Par phénomène d'échange ionique  $\text{Ca}^{2+}_{\text{eau}} - \text{Na}^{+}_{\text{argiles}}$ , les eaux tendent à évoluer vers une chimie de type Na-HCO<sub>3</sub>. La désintégration du  $^3\text{H}$  dissous, en  $^3\text{He}$  tritiogénique permet le calcul d'âges allant jusqu'à 60 ans (demi-vie de  $^3\text{H} = 12,43$  ans). Les rapports d'activités isotopiques ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) > 1 augmentent alors que la nappe passe de conditions libre à semi-confinée puis confinée en aval du bassin versant. Pour les eaux plus anciennes, les interactions eau-roche permettent l'accumulation de l'isotope  $^{234}\text{U}$  impliquant des rapports ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) >> 1 ainsi que l'accumulation de l' $^4\text{He}$  radiogénique.

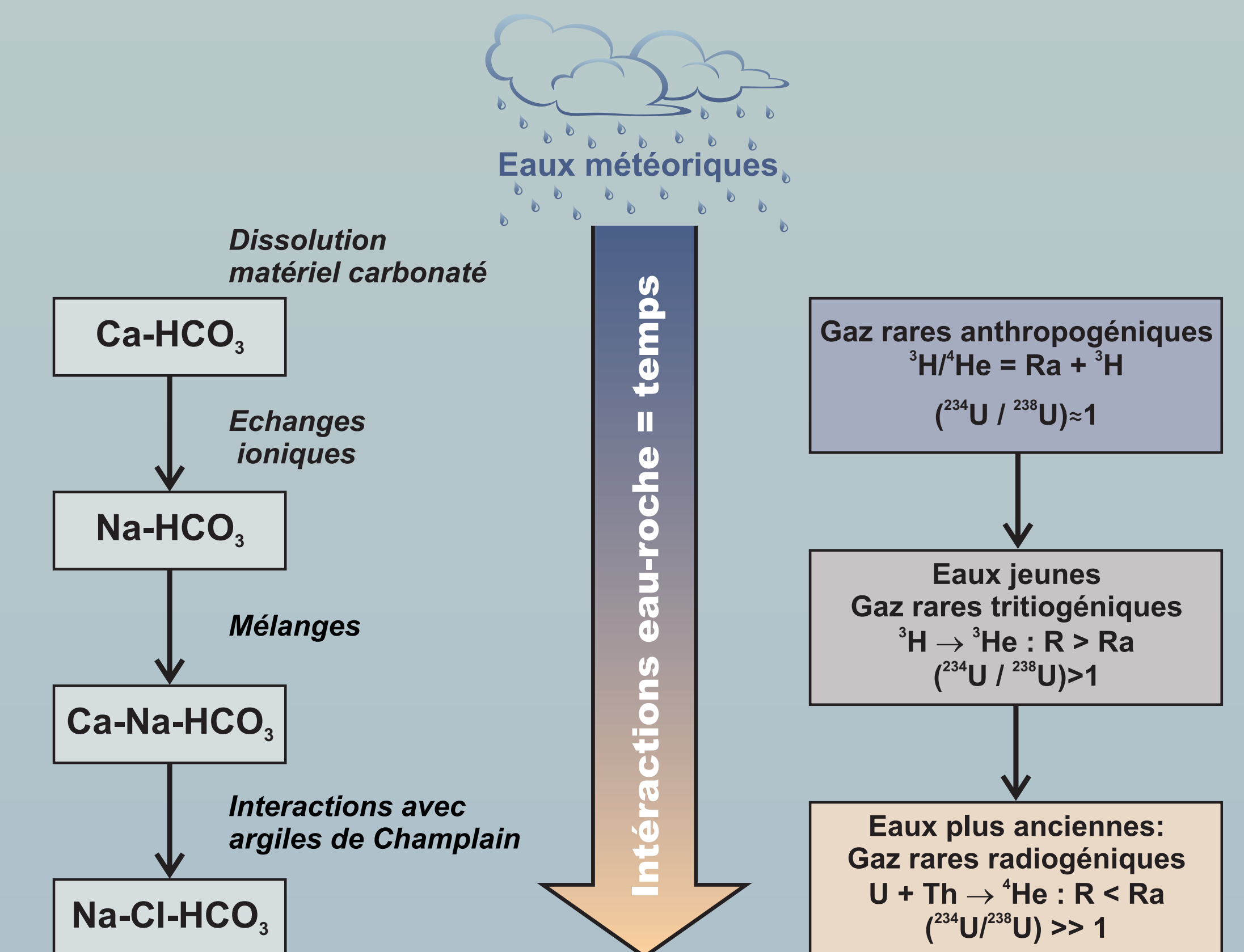


Figure 5: Schéma théorique d'évolution de la composition chimique des eaux souterraines en éléments majeurs, isotopes de l'hélium ( $^3\text{H}/^4\text{He}$ ) et de l'uranium ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) en fonction des interactions eau-roche (modifié de [3]).

## Remerciements

à Michelle Laithier et Raynald Lapointe du département des sciences de la Terre et de l'Atmosphère

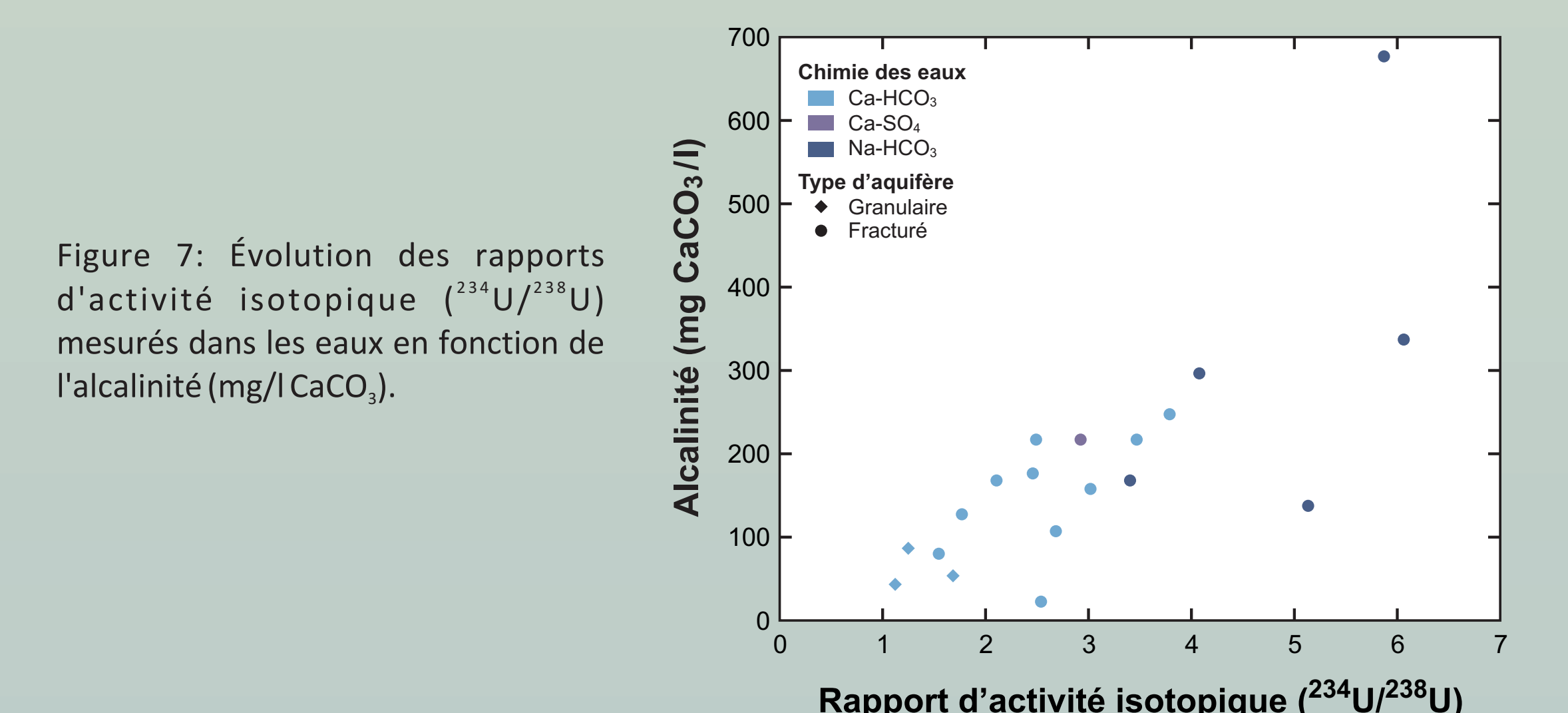


Figure 7: Évolution des rapports d'activité isotopique ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) mesurés dans les eaux en fonction de l'alcalinité (mg/l  $\text{CaCO}_3$ ).

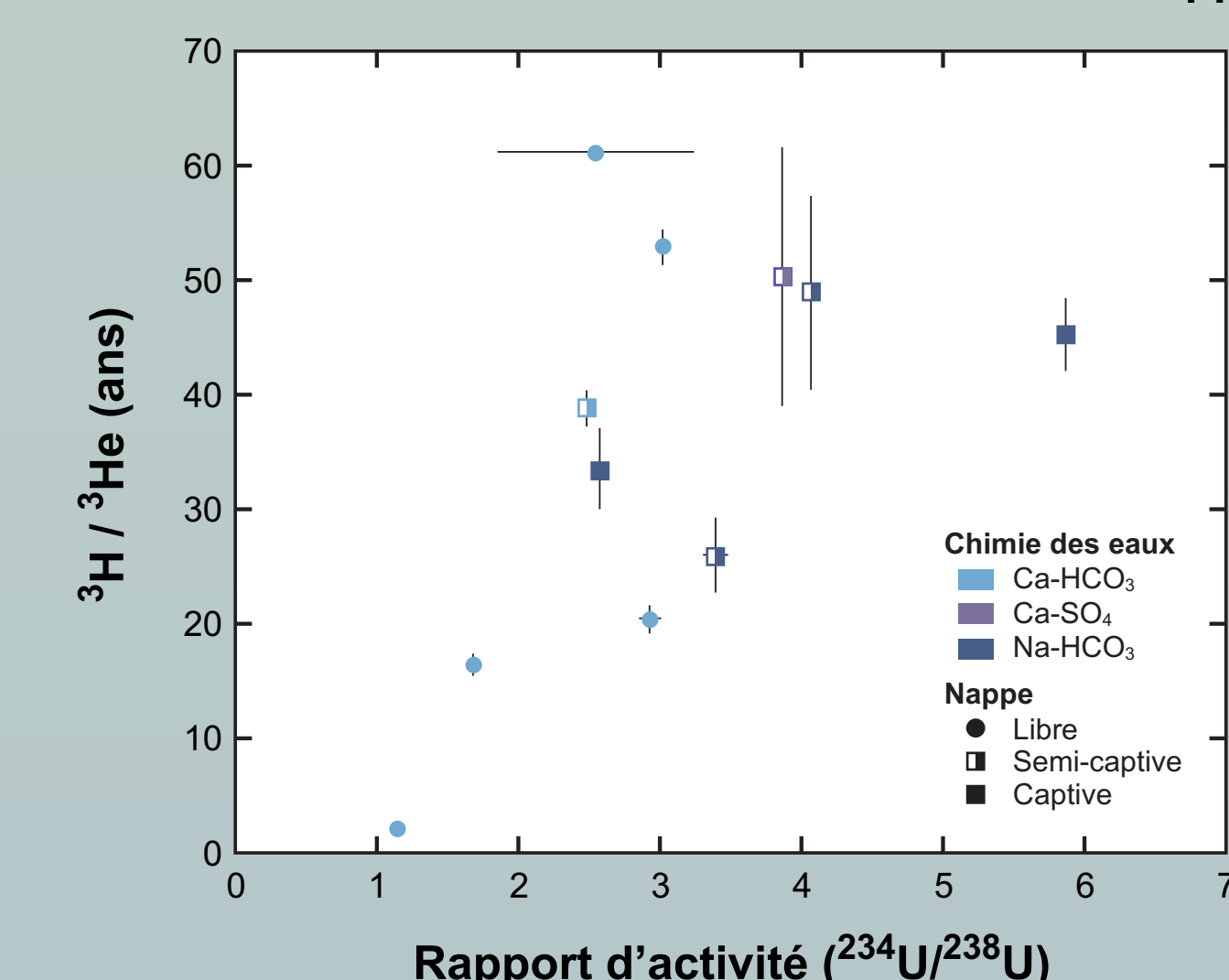


Figure 8: Évolution des rapports d'activité isotopique ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) mesurés dans les eaux en fonction des âges  $^3\text{H}/^4\text{He}$  récemment calculés [1].

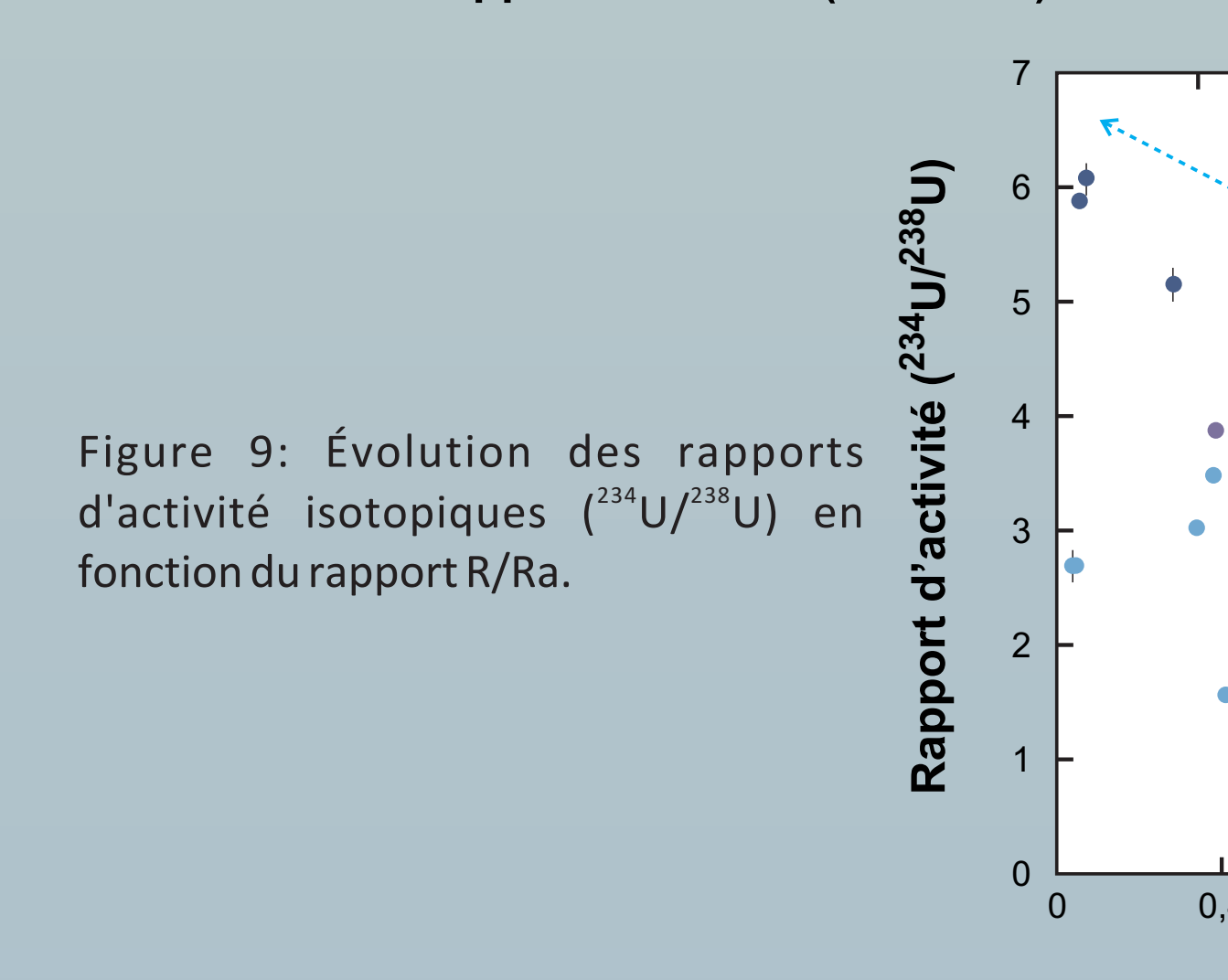


Figure 9: Évolution des rapports d'activité isotopiques ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) en fonction du rapport R/Ra.

## References

- Vautour, G. et al. (soumis). Helium evidence of multiple water masses in the Bécancour River catchment basin, Québec, Eastern Canada. *GCA*.
- Larocque, M. et al. (2013). Rapport d'étape Phase III. Projet de reconnaissance des eaux souterraines du bassin versant de la rivière Bécancour et de la MRC de Bécancour. Rapport présenté au MDDEFP, 65p.
- Cloutier, V., et al (2006). Hydrogeochemistry and groundwater origin of the Basses-Laurentides sedimentary rock aquifer system, St. Lawrence Lowlands, Québec, Canada. *Hydrogeology Journal*, 14 (4): 573-590.
- Kronfeld, et al (2004). Uranium series isotopes in the Avon Valley, Nova Scotia. *J. Environ. Radioact.* 73:335-352.
- Kigoshi, K. (1971). Alpha-recoil thorium-234; dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. *Science*, 173 (3991): 47-48.