

# Enrichissement en uranium authigène dans les sédiments glaciaires de l'océan Austral

Laurent Dezileau<sup>a,\*</sup>, Gilles Bareille<sup>b</sup>, Jean-Louis Reyss<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Programa Regional de Oceanografía Física y Clima (PROFC) y Centro de Investigación Oceanográfica, Universidad de Concepción, Concepción-3, Chile

<sup>b</sup> Laboratoire de chimie analytique bio-inorganique et environnement, université de Pau et des pays de l'Adour, EP-CNRS 132, 64000 Pau, France

<sup>c</sup> Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement, laboratoire mixte CEA-CNRS, Gif-sur-Yvette, 91198 Gif-sur-Yvette cedex, France

Reçu le 8 avril 2002 ; accepté le 5 août 2002

Présenté par Jean Dercourt

---

**Abstract – Enrichments in authigenic uranium in glacial sediments of the Southern Ocean.** Four sediment cores from the Polar frontal zone and the Antarctic zone in the Indian sector of the Southern Ocean present an increase of authigenic uranium during glacial periods. We show that this increase in uranium is due to a combination of (i) an increase in the lateral transport of organic matter, (ii) a decrease in the oxygen in deep waters, and (iii) a process of diagenesis. It appears that uranium concentration cannot be used as a proxy of palaeoproductivity in the Southern Ocean, as previously suggested by Kumar et al. in 1995. *To cite this article: L. Dezileau et al., C. R. Geoscience 334 (2002) 1039–1046.*

© 2002 Académie des sciences / Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

uranium / Southern Ocean / diagenesis / palaeoproductivity

**Résumé –** Quatre carottes de sédiment de la zone du Front polaire et de la zone Antarctique du secteur Indien de l'océan Austral présentent des enrichissements en uranium pendant les intervalles glaciaires. Nous montrons que cet enrichissement est lié à la combinaison (i) d'une augmentation des apports latéraux de matière organique, (ii) d'une diminution de l'oxygénation des eaux de fond et (iii) de phénomènes diagénétiques post-dépôt. Il apparaît que les concentrations en uranium authigène ne sont pas transposables en termes de flux de carbone organique exporté, ainsi que l'avaient suggéré Kumar et al. en 1995 et ne peuvent être utilisés comme traceurs de la paléoproductivité. *Pour citer cet article : L. Dezileau et al., C. R. Geoscience 334 (2002) 1039–1046.*

© 2002 Académie des sciences / Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

uranium / océan Austral / diagenèse / paléoproductivité

---

## Abridged version

### 1. Introduction

In oxic pore water, U is present as a soluble carbonate complex. When conditions become sufficiently reducing to initiate sulphate reduction, U is reduced to an insoluble form and precipitates. The U added to the sediment by this process (referred to as authigenic U) accumulates at a rate that depends on the level of oxygen in bottom water and

on the flux of organic carbon. Kumar et al. [15] show a positive relationship between organic carbon flux (export productivity) and the accumulation rate of authigenic uranium and, assuming that a similar relationship existed in the past, propose that down-core records of authigenic U could be used to constrain past changes in the flux of carbon to the deep sea. However, the accumulation rate of authigenic uranium depends not only on the organic carbon flux, but also on the concentration of oxygen in deep waters. Thus, low bottom-water oxygen levels also lead to

---

\* Correspondance et tirés à part.  
Adresse e-mail : dezileau@profc.udc.cl (L. Dezileau).

precipitation of authigenic U. In addition, it exists another process that can affect the uranium record in the sediment; authigenic U may be redistributed in the sediment, due to post-depositional remobilisation [20, 21, 23].

Four sediment cores from the Polar Frontal Zone and the Antarctic Zone in the Indian sector of the Southern Ocean present an increase in authigenic uranium during glacial periods. Our goal is to determine if this increase in authigenic uranium is due to an increase in the flux of carbon, a change in the concentration of oxygen in deep waters, or a post-depositional remobilisation of the uranium in the sediment.

## 2. Sites and analytical methods

We selected five cores in the Indian sector of the Southern Ocean to cover the frontal zones that constrain the ACC, i.e., from the Subtropical Zone to the Antarctic Zone (Fig. 1). These sites have similar bottom-water oxygen contents (205–220  $\mu\text{mol kg}^{-1}$ ).

Uranium concentrations were measured by  $\alpha$  spectrometry following separation on anion exchange columns and deposition onto aluminium foil. Analytical uncertainty in  $^{238}\text{U}$ , due to counting statistics, was 6%.

The total uranium-238 measured in the samples consists of two components: uranium present in detrital minerals ( $^{238}\text{U}_d$ ) and authigenic uranium ( $^{238}\text{U}_{\text{auth}}$ ) derived from seawater.

Detrital uranium ( $^{238}\text{U}_d$ ) is estimated as:

$$^{238}\text{U}_d = (^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_d \times (^{232}\text{Th})_s$$

where  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_d$  is the detrital U/Th ratio and  $(^{232}\text{Th})_s$  is the measured content of  $^{232}\text{Th}$  in the sediment samples.  $^{232}\text{Th}$  is considered to be exclusively present in detrital minerals [2].

The authigenic uranium ( $^{238}\text{U}_{\text{auth}}$ ) contents of the samples were then calculated using the relation:

$$^{238}\text{U}_{\text{auth}} = ^{238}\text{U}_T - ^{238}\text{U}_d$$

where  $^{238}\text{U}_T$  is the measured total uranium content.

In core MD 94-102, the good correlation of  $^{232}\text{Th}$  with  $^{238}\text{U}_T$  ( $r^2 = 0.8$ ) suggests that bio-authigenic uranium is not present. The detrital  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_d$  ratio of 0.58 from this core is applied to the calculations for all cores in the study area. Our U/Th ratio is within the range used in other studies [11, 13]. Authigenic uranium concentration and flux are reported in Table 1.

## 3. Results and discussion

During the Holocene period, the authigenic uranium fluxes (Fig. 2) are low in the Indian Sector of the Southern Ocean ( $5 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$ ). This is probably due to a low flux of organic carbon to the seabed and to a high oxygen concentration in bottom waters during this period. During glacial period, by contrast, authigenic uranium can be found in sediments in the Polar Frontal Zone and in the Antarctic Zone. Glacial accumulation rates of authigenic

uranium ranged between 5 and  $65 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$  (Fig. 2), comparable to accumulation rates found today in upwelling regions of high productivity. However, one cannot reliably convert the accumulation rate of authigenic uranium in any individual core into an organic carbon rain rate (export production), because the flux of authigenic uranium in the sediment may also be influenced by (i) lateral transport of organic carbon, (ii) a change of oxygen concentration in bottom waters, or (iii) post-depositional remobilisation of the uranium in the sediment.

– The flux of organic carbon to the seabed may be influenced by sediment focusing. That is, focused deposition of sinking particles by deep-sea currents may enhance significantly the local flux of organic matter to the seabed relative to the regional average flux of organic matter exported from surface waters [2, 11]. Accumulation of sediments in the Polar Frontal Zone of the Indian sector of the Southern Ocean is strongly enhanced by sediment focusing. Dezileau et al. [9] used the  $^{230}\text{Th}$  method to quantify the contribution of advected sediments to the bulk sediment. Lateral transport estimations for both the Holocene and glacial periods suggest that sediment redistribution is higher during glacial periods. In that case, we suggest that a significant part of the authigenic uranium was attributed to intense sediment focusing during glacial period.

– We have positive evidence for a lowering of  $\text{O}_2$  concentration in bottom water from authigenic U accumulation in the core MD 84-552 (Fig. 3). In this core, authigenic U accumulates during the glacial periods, even though export-production proxies indicate lower export flux, while accumulation rates of  $^{230}\text{Th}_{\text{ex}}$  indicate no sediment focusing during the glacial periods. Similar trends were found in the Atlantic sector and other cores in the Indian sector [12]. These glacial maxima in authigenic U can be explained only by a decrease in bottom-water oxygen concentration.

– Authigenic U may be re-distributed in the sediment, due to post-depositional remobilisation. It has been suggested that a significant decrease in the organic carbon flux or bulk sedimentation rate may increase the oxygen availability in the sediment, thus leading to fixation or even deepening of the redox front [20]. A deepening of the oxidation front into organic rich sediments will lead to a ‘burn down’ (i.e., oxidation) of organic carbon and remobilisation of U. This process will result in the formation of a sharp peak below the oxidation front, as suggested from studies of North Atlantic turbidites [20]. Our cores in the Polar Frontal Zone are characterised by a strong decrease in the organic carbon flux during Holocene; thus, the sharp peaks in authigenic U, particularly below glacial terminations, are probably a result of such post-depositional remobilisation. We have another positive evidence for a post-depositional remobilisation when we compare the biogenic barium (bioBa) and the organic carbon in the core MD 88-769 (Fig. 4). The biogenic barium and the organic carbon are proxies of palaeo-productivity and must present the same variation during glacial/interglacial periods. However, it can be noted that, between 30 and 70 cm, it exists a difference between the

two records. This difference may be explained by a ‘burn down’ of organic carbon due to a deepening of the oxidation front. This has probably induced a remobilisation of U.

In conclusion, we suggest that the authigenic U flux cannot be used as a direct proxy of palaeoproductivity in the Southern Ocean, as previously suggested by Kumar et al. [15].

## 1. Introduction

Dans le milieu marin, l’uranium peut exister sous deux états d’oxydation (VI et IV), qui présentent des comportements géochimiques très différents. Ainsi, U(VI), soluble, diffuse sous forme de  $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ , depuis les eaux surnageantes, dans les eaux interstitielles. En profondeur, lorsque les sédiments deviennent plus réducteurs à cause d’une consommation complète de l’oxygène par la matière organique, U(VI) est réduit en U(IV), insoluble, qui se fixe alors dans le sédiment [1, 16]. L’uranium ajouté au sédiment par ce processus (uranium authigène) dépend du niveau d’oxygène dans les eaux de fond et du flux de matière organique. Kumar et al. [15] mettent en évidence une relation positive entre le flux de carbone organique dans la colonne d’eau (production exportée) et le flux de  $U_{auth}$  dans les sédiments. Cependant, nous pensons que l’augmentation du dépôt d’uranium authigène dans les sédiments n’est pas obligatoirement liée à une augmentation du flux exporté de matière organique. Une diminution de la concentration en oxygène (qui ne serait donc pas liée au flux de matière organique) dans les eaux de fond peut aussi engendrer la précipitation de  $U_{auth}$  dans les sédiments. Des processus de redistribution post-diagénétique peuvent également expliquer la présence de pics localisés d’uranium dans les sédiments. Ces pics sont le résultat de la remobilisation d’uranium authigène (uranium précipité et non détritique) et de sa reprécipitation dans une zone très localisée. Le pic d’uranium formé à partir d’une redistribution post-diagénétique est lié au dé-

placement sensible du front d’oxydo-réduction vers les sédiments plus anciens, en relation avec un changement rapide du taux de sédimentation [20, 21, 23].

Quatre carottes de sédiment de la zone du Front polaire et de la zone Antarctique du secteur indien de l’océan Austral présentent des enrichissements en uranium pendant les intervalles glaciaires. Notre objectif est de comprendre si cet enrichissement est lié à une augmentation du flux de matière organique (signal de paléoprodutivité), à une diminution de l’oxygénation des eaux de fond, à des processus de redistribution post-diagénétique, ou aux trois.

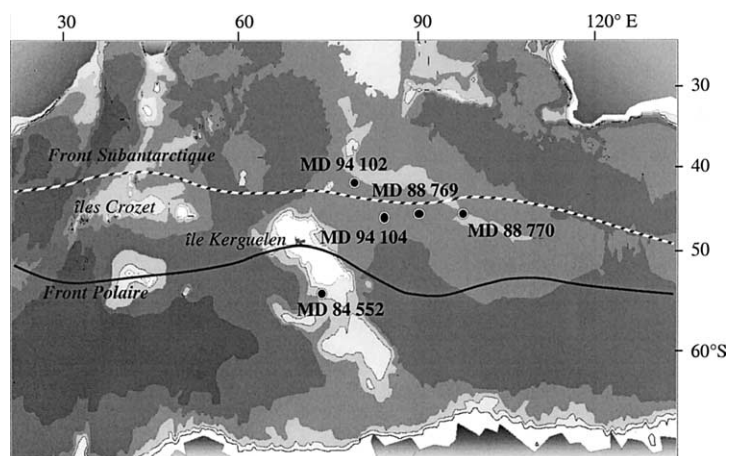
## 2. Sites et méthode

### 2.1. Sites d’étude

Nous avons étudié cinq carottes, qui forment un transect de part et d’autre du Front polaire antarctique et du Front subtropical (Fig. 1). Les sédiments étudiés proviennent des campagnes océanographiques réalisées dans l’océan Austral dans le cadre des programmes Apsara et Images. Ils ont été prélevés à bord du navire océanographique *Marion-Dufresne* par des carottages de type Kullenberg, lors des missions qui se sont déroulées au cours des années 1984, 1988 et 1994. Ces cinq sites sont localisés dans les eaux circumpolaires profondes [19], au niveau d’une masse d’eau qui présente une concentration en oxygène relativement homogène ( $205\text{--}220\ \mu\text{mol kg}^{-1}$ ).

**Fig. 1.** La carotte de sédiment marin MD 94-102 a été prélevée au niveau de la zone subtropicale, les carottes MD 94-104, MD 88-769 et MD 88-770 au niveau de la zone du Front polaire et la carotte MD 84-552 au niveau de la zone Antarctique sur le plateau de Kerguelen.

**Fig. 1.** The core MD 94-102 was sampled from the Subtropical Zone, the cores MD 94-104, MD 88-769 and MD 88-770 were collected in the Polar Frontal Zone and the core MD 84-552 in the Antarctic Zone.



## 2.2. Procédure analytique

Les teneurs en uranium et en thorium ont été mesurées par spectrométrie  $\alpha$  après séparation chimique [8].

Dans les sédiments marins, l'uranium peut se trouver sous deux formes : détritique et authigène. Cette dernière forme apparaît lorsqu'il existe des conditions réductrices à l'interface eau-sédiment [1, 8]. Pour déterminer l'addition de ce type d'uranium au sédiment, les concentrations de  $^{238}\text{U}$  mesurées dans le sédiment doivent être corrigées de la contribution détritique. Pour cela, on mesure les concentrations en  $^{232}\text{Th}$ , qui a une origine essentiellement détritique, et on considère le rapport  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  du matériel détritique local. Ce rapport peut être déterminé, si l'on dispose de carottes issues du même environnement sédimentaire, mais qui ne contiennent pas d'uranium authigène.

Dans la carotte MD 94-102, les concentrations en  $U_{\text{mes}}$  (uranium total) sont relativement faibles (0,2 et 0,4 dpm  $\text{g}^{-1}$ ) et suivent les concentrations en  $^{232}\text{Th}$  caractéristiques du matériel détritique. La corrélation entre l'uranium mesuré et le  $^{232}\text{Th}$  est significative, avec un coefficient de corrélation de  $r^2 = 0,8$ , suggérant que l'uranium mesuré sur cette carotte est purement détritique. Cette carotte nous permet de déterminer le rapport  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_{\text{détritique}} = 0,58$ . François et al. [11] ont proposé un rapport compris entre 0,5 et 1 et Frank [13] un rapport de 0,75. Notre rapport  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_{\text{détritique}}$  se trouve donc dans la gamme habituelle pour les sédiments de l'océan Austral.

La valeur d' $^{238}\text{U}_{\text{auth}}$  est calculée en soustrayant l' $^{238}\text{U}_{\text{détritique}}$  de l'uranium total mesuré dans le sédiment suivant l'équation :

$$^{238}\text{U}_{\text{auth}} = ^{238}\text{U}_{\text{mes}} - (^{232}\text{Th} \times 0,58)$$

$(^{232}\text{Th} \times 0,58)$  représente l'activité détritique moyenne de  $^{238}\text{U}_{\text{det}}$ , en dpm  $\text{g}^{-1}$ .

Le rapport  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_{\text{détritique}} = 0,58$  sera appliqué à l'ensemble des carottes étudiées dans la région, afin de calculer les activités d'uranium authigène. Les concentrations et les flux d'uranium authigène sont présentés dans le Tableau 1.

## 3. Résultats et discussion

### 3.1. Flux d'uranium authigène

Les flux d'uranium authigène, en  $\mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$ , sont présentés sur la Fig. 2. À l'Holocène, les flux d' $U_{\text{auth}}$  dans les sédiments du secteur Indien de l'océan Austral sont inférieurs à  $5 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$ . Ces faibles valeurs sont du même ordre de grandeur que celles mesurées dans le secteur Atlantique [2, 15]

et dans le secteur Indien [3]. Ceci est probablement dû à un faible flux de carbone organique vers les sédiments et à des eaux de fond bien oxygénées ( $150\text{--}200 \mu\text{mol kg}^{-1}$ , [18]) pendant l'Holocène. En période glaciaire, à l'exception de la carotte MD 94-102, localisée dans la zone subtropicale, les flux de  $U_{\text{auth}}$  dans la zone du Front polaire (MD 94-104, MD 88-769 et MD 88-770) et la zone Antarctique (MD 84-552) présentent des enrichissements en  $U_{\text{auth}}$  compris entre 5 et  $65 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$ . Cette accumulation n'a pas d'équivalent à l'Holocène dans cet océan. Ils sont comparables aux flux déterminés actuellement dans les zones de fortes productivités, comme c'est le cas dans l'*upwelling* mauritanien ( $10 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$ ) et l'*upwelling* sud-californien ( $50 \mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$ , [4]). Si nous considérons l'hypothèse de Kumar et al. [15], cet enrichissement en  $U_{\text{auth}}$  est lié à une augmentation de la productivité biologique en période glaciaire.

Cependant, nous considérons qu'il ne faut pas lier directement le flux de  $U_{\text{auth}}$  de chaque carotte à la production de matière organique exportée (relation de Kumar et al. [15]), parce que :

- (1) le flux de  $U_{\text{auth}}$  peut être influencé par une diminution de l'oxygénation des eaux de fond et/ou par une redistribution post-diagénétique de l'uranium authigène ;
- (2) le flux de carbone organique dans les sédiments peut être influencé par des apports latéraux de carbone organique ne provenant pas de la production de matière organique exportée.

Pour être plus clair, la production exportée est définie par la quantité de matière organique exportée de la zone euphotique ; elle se mesure en estimant la quantité de matière organique qui s'accumule dans les pièges localisés sous cette zone. Pour les pièges les plus profonds, la production exportée diminue rapidement et la quantité piégée est une fonction de la profondeur [5]. Cependant, sous certaines conditions, cette fonction est faussée lorsqu'il s'ajoute à la matière organique exportée de la zone euphotique, une matière organique apportée latéralement (advection horizontale) par les courants de fond et de surface. Cette redistribution du matériel affecte à la fois les particules qui sédimentent dans la colonne d'eau et qui sont déviées par des courants, mais aussi des particules déjà déposées qui vont être remises en suspension et transportées loin du site de dépôt initial par les courants de fond. Dans le prochain chapitre, nous distinguerons la production exportée (flux vertical de matière organique) du flux latéral lié aux processus de redistribution.

**Tableau 1.** Concentration et flux d'uranium authigénique pour chaque carotte.

**Table 1.** Concentration and flux of authigenic uranium for each core.

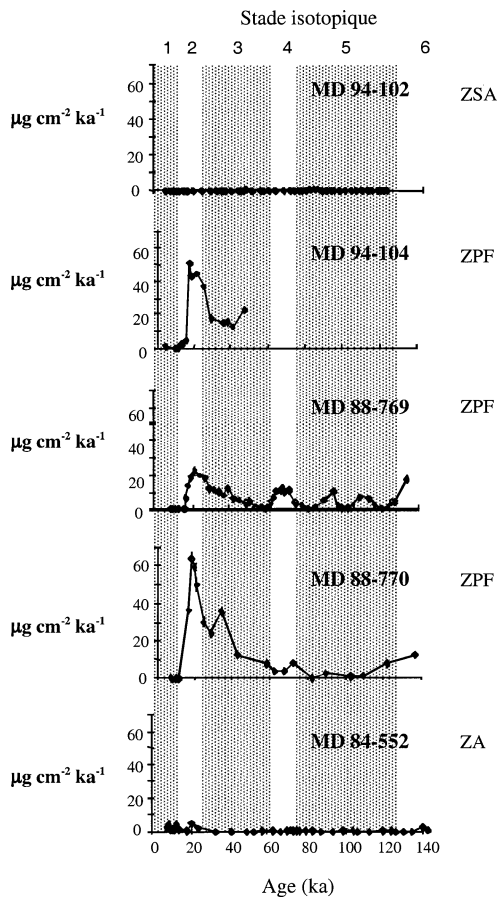
MD 94-102			MD 94-104			MD 88-769			MD 84-552		
Âge (ka)	$^{238}\text{U}_{\text{auth}}$ (dpm g <sup>-1</sup> )	Flux de U <sub>auth</sub> (µg cm <sup>-2</sup> ka <sup>-1</sup> )	Âge (ka)	$^{238}\text{U}_{\text{auth}}$ (dpm g <sup>-1</sup> )	Flux de U <sub>auth</sub> (µg cm <sup>-2</sup> ka <sup>-1</sup> )	Âge (ka)	$^{238}\text{U}_{\text{auth}}$ (dpm g <sup>-1</sup> )	Flux de U <sub>auth</sub> (µg cm <sup>-2</sup> ka <sup>-1</sup> )	Âge (ka)	$^{238}\text{U}_{\text{auth}}$ (dpm g <sup>-1</sup> )	Flux de U <sub>auth</sub> (µg cm <sup>-2</sup> ka <sup>-1</sup> )
6	0,00±0,05	0,00±0,05	4	0,09±0,03	0,85±0,30	9	0,00±0,04	0,00±0,0	8	0,14±0,02	2,17±0,31
8	0,02±0,05	0,02±0,06	11	0,06±0,04	0,66±0,40	10	0,00±0,03	0,00±0,0	8	0,15±0,03	2,38±0,46
10	0,00±0,02	0,00±0,02	14	0,20±0,03	1,82±0,26	11	0,03±0,02	0,11±0,1	8	0,15±0,02	2,04±0,25
12	0,04±0,04	0,07±0,04	16	0,53±0,05	4,52±0,44	13	0,01±0,04	0,07±0,2	9	0,14±0,03	4,28±0,97
13	0,04±0,03	0,07±0,04	17	2,81±0,15	50,86±2,66	16	0,00±0,05	0,00±0,0	9	0,15±0,03	4,33±0,82
15	0,10±0,03	0,17±0,04	19	2,64±0,47	43,43±7,68	16	0,06±0,06	0,21±0,2	9	0,14±0,02	1,07±0,19
17	0,02±0,03	0,04±0,04	22	2,72±0,16	44,67±2,69	17	2,01±0,19	6,85±0,6	10	0,19±0,03	1,90±0,26
18	0,00±0,07	0,00±0,08	25	2,45±0,11	37,04±1,67	18	3,72±0,27	14,58±1,1	10	0,13±0,02	1,44±0,20
21	0,00±0,04	0,00±0,04	29	1,35±0,10	17,45±1,27	19	4,49±0,30	18,85±1,3	11	0,16±0,04	1,75±0,43
25	0,00±0,04	0,00±0,04	35	1,44±0,17	15,01±1,74	22	4,39±0,59	22,18±3,0	12	0,22±0,02	1,30±0,12
29	0,00±0,04	0,00±0,04	37	1,58±0,10	16,14±0,98	24	3,78±0,18	20,46±1,0	12	0,17±0,05	2,09±0,67
33	0,00±0,03	0,00±0,03	41	1,07±0,19	12,82±2,29	26	3,63±0,25	18,99±1,3	12	0,24±0,04	3,79±0,69
35	0,00±0,04	0,00±0,04	47	1,78±0,13	22,55±1,62	29	2,72±0,19	12,38±0,9	13	0,29±0,12	4,02±1,62
36	0,04±0,04	0,07±0,04				32	2,63±0,16	11,35±0,7	13	0,19±0,09	3,10±1,39
37	0,07±0,03	0,12±0,04				34	2,18±0,22	9,77±1,0	14	0,21±0,07	1,30±0,40
40	0,00±0,03	0,00±0,04				37	2,04±0,17	8,92±0,7	18	0,18±0,08	0,32±0,15
44	0,00±0,02	0,00±0,03				40	2,51±0,18	12,42±0,9	20	1,27±0,15	4,68±0,55
45	0,00±0,02	0,00±0,03				42	1,51±0,16	6,35±0,7	24	0,57±0,04	2,09±0,15
46	0,01±0,03	0,02±0,03				46	1,21±0,14	5,47±0,6	33	0,14±0,05	0,18±0,06
48	0,14±0,05	0,27±0,08				48	0,74±0,10	3,55±0,5	41	0,12±0,04	0,19±0,06
51	0,01±0,02	0,01±0,03				51	0,81±0,08	4,42±0,4	49	0,04±0,06	0,07±0,09
55	0,00±0,02	0,00±0,03				54	0,40±0,06	1,98±0,3	53	0,15±0,07	0,24±0,12
57	0,11±0,03	0,20±0,04				57	0,33±0,04	1,82±0,2	57	0,19±0,11	0,31±0,17
60	0,00±0,03	0,00±0,04				59	0,02±0,07	0,09±0,3	63	0,16±0,07	0,34±0,16
64	0,00±0,03	0,00±0,03				61	0,34±0,10	1,40±0,4	66	0,08±0,07	0,16±0,15
67	0,01±0,04	0,01±0,04	Âge (ka)	$^{238}\text{U}_{\text{auth}}$ (dpm g <sup>-1</sup> )	Flux de U <sub>auth</sub> (µg cm <sup>-2</sup> ka <sup>-1</sup> )	62	0,92±0,07	4,05±0,3	70	0,38±0,11	0,57±0,17
71	0,00±0,03	0,00±0,03				64	1,80±0,10	7,65±0,4	72	0,26±0,06	0,90±0,20
73	0,00±0,04	0,00±0,04	7	0,07±0,02	0,48±0,14	65	2,32±0,15	10,25±0,7	73	0,11±0,05	0,38±0,17
75	0,01±0,02	0,02±0,03	10	0,09±0,01	0,66±0,09	67	2,53±0,19	10,73±0,8	75	0,15±0,03	0,50±0,08
77	0,00±0,02	0,00±0,03	12	0,04±0,02	0,31±0,12	68	2,64±0,27	13,63±1,4	77	0,11±0,04	0,32±0,11
79	0,00±0,02	0,00±0,02	17	5,62±0,33	36,36±2,14	70	2,17±0,07	9,82±0,3	80	0,23±0,03	0,63±0,09
81	0,32±0,03	0,64±0,04	18	5,76±0,32	63,94±3,60	72	1,94±0,14	10,85±0,8	83	0,17±0,05	0,67±0,19
84	0,23±0,02	0,40±0,02	20	5,10±0,21	59,50±2,49	75	0,74±0,06	3,54±0,3	88	0,08±0,07	0,10±0,09
86	0,27±0,03	0,47±0,04	21	4,03±0,25	50,07±3,06	78	0,44±0,04	3,02±0,3	93	0,17±0,04	0,22±0,05
88	0,02±0,03	0,04±0,04	25	3,99±0,33	30,06±2,51	82	0,12±0,03	0,58±0,1	99	0,21±0,05	0,40±0,10
90	0,02±0,02	0,03±0,03	28	4,16±0,23	24,48±1,35	86	0,47±0,05	1,39±0,1	104	0,20±0,06	0,40±0,12
92	0,02±0,02	0,04±0,02	34	3,65±0,24	35,88±2,33	91	1,67±0,12	5,35±0,4	107	0,06±0,04	0,11±0,07
94	0,00±0,03	0,00±0,03	43	3,36±0,22	12,90±0,84	96	1,43±0,08	10,26±0,6	113	0,13±0,02	0,22±0,03
97	0,06±0,02	0,09±0,03	58	1,46±0,15	7,94±0,81	98	0,37±0,05	2,91±0,4	120	0,18±0,02	0,44±0,05
100	0,03±0,06	0,06±0,08	63	0,65±0,05	3,90±0,29	101	0,11±0,03	0,81±0,2	124	0,16±0,02	0,34±0,04
102	0,00±0,04	0,00±0,04	68	1,75±0,65	4,12±1,52	103	0,12±0,04	0,76±0,2	127	0,09±0,03	0,23±0,09
105	0,00±0,02	0,00±0,02	73	2,72±0,10	8,19±0,30	106	0,86±0,05	2,74±0,2	137	0,05±0,07	0,06±0,08
108	0,00±0,03	0,01±0,03	82	0,12±0,09	0,43±0,32	110	2,27±0,13	7,21±0,4	169	0,51±0,08	0,19±0,03
111	0,00±0,02	0,00±0,02	90	0,88±0,07	2,37±0,20	114	1,55±0,14	6,43±0,6	180	1,38±0,23	2,47±0,41
114	0,00±0,02	0,00±0,02	103	0,17±0,03	1,01±0,19	118	0,53±0,04	2,86±0,2	188	0,54±0,06	0,79±0,09
117	0,00±0,02	0,00±0,02	109	0,49±0,05	1,24±0,13	121	0,06±0,03	0,36±0,2			
118	0,00±0,03	0,00±0,03	123	1,38±0,10	7,58±0,56	124	0,36±0,04	2,16±0,2			
120	0,00±0,02	0,00±0,02	137	3,73±0,24	12,52±0,82	126	0,72±0,06	3,85±0,3			
121	0,00±0,02	0,00±0,02	155	4,26±0,18	6,70±0,28	128	0,93±0,16	3,75±0,6			

### 3.2. Contrôle de l'accumulation de l'uranium authigène

#### 3.2.1. Les apports latéraux de matériel sédimentaire

Dezileau et al. [9] ont montré que la sédimentation était fortement contrôlée par les courants de fond

dans la zone du Front polaire du secteur Est-Indien de l'océan Austral. Cette zone correspond en particulier au flanc sud de la ride sud-est indienne, où ont été prélevées les carottes MD 88-769, MD 88-770 et MD 94-104. En utilisant la méthode de la normalisation des flux au  $^{230}\text{Th}$ , Dezileau et al. [9] ont montré que les apports latéraux de matériel sédimentaire étaient



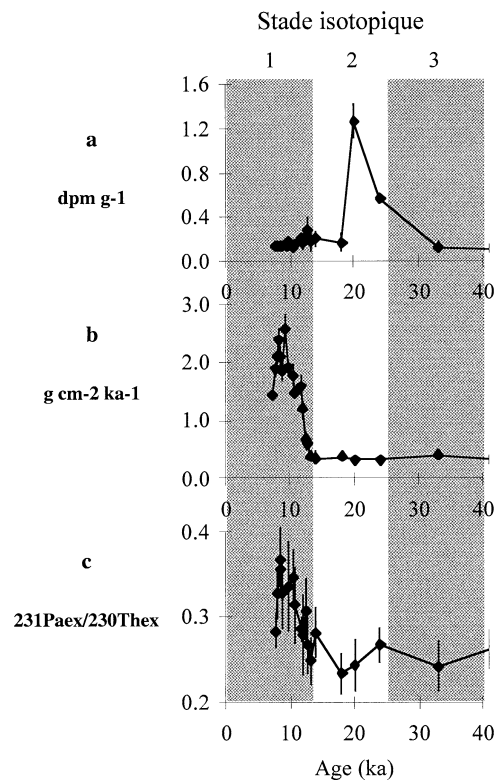
**Fig. 2.** Flux d'uranium authigène ( $\mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$ ) pour chaque site (ZSA : zone Sub-Antarctique, ZPF : zone du Front polaire, ZA : zone Antarctique). Les zones blanches caractérisent les périodes glaciaires (étages isotopiques pairs [10]) et les zones grises représentent les périodes interglaciaires (étages isotopiques impairs, [10]).

**Fig. 2.** Authigenic uranium fluxes ( $\mu\text{g cm}^{-2} \text{ka}^{-1}$ ).

plus importants pendant les intervalles glaciaires, particulièrement dans les trois carottes localisées dans la zone du Front polaire, où nous observons les flux de  $U_{\text{auth}}$  les plus élevés. Ceci suggère, d'une part, que le flux de  $U_{\text{auth}}$  dans ces sédiments reflète davantage la variabilité temporelle des apports latéraux de matériel organique (apports latéraux représentant entre 50 et 90 % du matériel sédimentaire) que la production exportée et, d'autre part, que l'augmentation du flux de  $U_{\text{auth}}$  en période glaciaire dans la zone du Front polaire est alors probablement le résultat d'une augmentation des apports latéraux de matériel sédimentaire.

### 3.2.2. Vers une diminution de l'oxygénation de l'eau de fond en période glaciaire

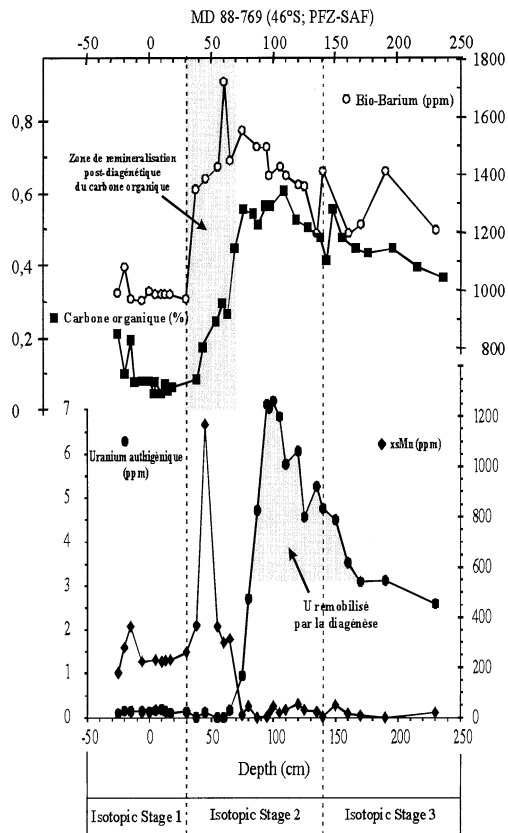
Dans la zone Antarctique, la carotte MD 84-552 présente une concentration de  $U_{\text{auth}}$  maximale au dernier maximum glaciaire ( $1,4 \text{ dpm g}^{-1}$ , Fig. 3) et minimale à l'Holocène ( $0,2 \text{ dpm g}^{-1}$ ). En termes de flux, le flux de  $U_{\text{auth}}$  est aussi plus important au dernier maximum glaciaire. Or, cette carotte présente des apports



**Fig. 3.** Concentrations d'uranium authigène (a) comparées aux traceurs de la paléoproduktivité (les flux d'opale, (b) et mesures du rapport Pa/Th, (c) sur la carotte MD 84-552. Les zones blanches caractérisent les périodes glaciaires (étages isotopiques pairs, [10]) et les zones grises représentent les périodes interglaciaires (étages isotopiques impairs, [10]).

**Fig. 3.** Authigenic uranium concentrations (a), compared to palaeoproduktivité proxies, i.e., opal fluxes (b) and Pa/Th ratios (c) of the core MD 84-552.

latéraux de matériel sédimentaire plus faibles en période glaciaire qu'à l'Holocène. Les résultats montrent que le flux de  $U_{\text{auth}}$  dans les sédiments de la zone Antarctique répond à un autre processus que celui des apports latéraux. Ainsi, la concentration maximale en uranium authigène en période glaciaire peut être le résultat d'une augmentation de la productivité et/ou d'une diminution de l'oxygénation de l'eau de fond. Des mesures de flux d'opale et de Pa/Th, tous les deux traceurs de la paléoproduktivité biologique, ont été effectuées sur cette carotte. Nous pouvons montrer que les rapports Pa/Th et les flux verticaux d'opale sont plus faibles en période glaciaire qu'à l'Holocène (Fig. 3). Cette plus faible productivité est probablement le résultat de la persistance de la glace de mer pendant une bonne partie de l'année en période glaciaire [7]. Puisque l'augmentation du dépôt d'uranium authigène dans les sédiments de cette carotte n'est pas liée à une augmentation de la production biologique ou à une augmentation des apports latéraux, nous déduisons, par élimination, qu'une diminution de l'oxygénation de l'eau de fond, en période glaciaire, peut



**Fig. 4.** Distributions de xMn, de l'uranium authigène, du bioBa et du carbone organique dans la carotte MD 88-769 au cours des 40 000 dernières années.

**Fig. 4.** xMn, authigenic uranium, biogenic baryum and organic carbon distributions in the core MD 88-769 during the last 40 000 years.

expliquer nos résultats. Cette hypothèse quant à une diminution de l'oxygénation de l'eau de fond en période glaciaire rejoint celle de François et al. [12].

### 3.2.3. Redistribution post-diagénétique

Les pics de  $U_{auth}$  observés dans les sédiments de la carotte MD 88-769 (Fig. 4) aussi bien que dans les autres carottes de la zone du Front Polaire présentent une forte amplitude, relativement localisée, avec une forme asymétrique (diminution abrupte dans la partie supérieure et exponentielle dans la partie inférieure).

Thomson et al. [20, 21] ont observé ce type de forme et ont démontré qu'il était associé à des redistributions post-diagénétiques, souvent liées à des changements importants des taux de sédimentation, tels que ceux rencontrés lors des alternances turbidites/dépôts hémipélagiques [20] ou sapropèle/dépôts hémipélagiques [23], ou lors des transitions Glaciaire-Interglaciaire dans l'Atlantique nord [21]. Compte tenu des changements significatifs des taux de sédimentation dans les carottes de la zone du Front polaire aux transitions Glaciaire-Interglaciaire, on peut s'attendre à ce que des processus de remobilisation post-diagénétique aient eu lieu.

La distribution de l'excès de Mn (xMn), de  $U_{auth}$ , du Ba biogène (bioBa) et du carbone organique dans les sédiments des derniers 40 000 ans de la carotte MD 88-769 fournit des informations intéressantes à ce propos. On observe un xMn jusqu'à 70 cm, profondeur à partir de laquelle les concentrations en  $U_{auth}$  commencent à augmenter. La précipitation d'xMn est observée en général lorsque les conditions redox sont oxiques, alors que celle de l'uranium commence dès lors que ces conditions deviennent suboxiques. La limite entre l'xMn et l'augmentation de  $U_{auth}$  pourrait donc correspondre au niveau actuel du front d'oxydo-réduction.

L'existence d'un front d'oxydation ayant progressé depuis plusieurs milliers d'années dans les sédiments glaciaires, plus réducteurs, est attestée par la comparaison des profils de bioBa et de carbone organique. En effet, ces deux paramètres ont des variations similaires, à l'exception de la zone comprise entre 30 et 70 cm. Dans cette zone, le carbone est présent en basses concentrations, alors que les valeurs de bioBa restent élevées. Le même phénomène a été observé dans les niveaux de sapropèles de Méditerranée [23]; il a été démontré qu'il était causé par la pénétration d'un front d'oxydation dans les niveaux de sapropèles [23]. Cette pénétration dans des sédiments plus anciens, riches en carbone organique, a pour conséquence de reminéraliser une partie de ce carbone organique enfouis et de redistribuer les éléments redox sensibles, tels que U, qui ont précipité antérieurement, en conditions suboxiques à anoxiques [10].

La bonne corrélation entre le carbone organique et le bioBa de la carotte MD 88-769 (excepté la zone 30–70 cm), est conforme à ce qui a été déjà observé dans d'autres environnements [6, 23]. Elle suggère l'idée que les variations du bioBa pourraient être utilisées, au moins de façon qualitative, comme traceurs de la production de carbone organique exporté. L'augmentation du bioBa pendant tout le Glaciaire et l'absence de pics de forte amplitude aux transitions, comme ceux observés par Van Os et al. [22], suggèrent que le profil de bioBa de la carotte MD 88-769 n'a probablement pas subi de modifications majeures. Même si une part importante du bioBa a dû être redissoute à l'interface eau-sédiment [14, 17], nous supposons que le profil de bioBa enregistré dans cette carotte représente un bon traceur des variations relatives du carbone organique préservé dans les sédiments, avant reminéralisation diagénétique post-dépôt.

Tout comme dans les sapropèles de Méditerranée, la différence de comportement entre les profils de carbone organique et de bioBa entre 30 et 70 cm est liée à la reminéralisation d'une partie de carbone organique préservé en période glaciaire, par la pénétration progressive d'un front d'oxydation, depuis environ 12 ka.

L'amplitude du pic de  $U_{\text{auth}}$  est, par ailleurs, grandement affectée par la redistribution de U, en relation avec la progression depuis 12 ka du front d'oxydation.

#### 4. Conclusion

Pour conclure, l'augmentation d'uranium authigène dans les sédiments glaciaires du secteur Indien de l'océan Austral est plus vraisemblablement le témoignage d'une augmentation des apports latéraux de matériel sédimentaire et d'une ventilation de l'eau de fond plus réduite, plutôt que d'une réelle augmentation de la production exportée dans les eaux superficielles.

**Remerciements.** Ce travail a reçu le soutien financier d'Ecos-Sud. Les auteurs remercient L. Labeyrie pour ses commentaires constructifs dans son rapport d'expertise. Les sédiments étudiés proviennent des campagnes océanographiques Apsara II (1984) et IV (1988) et Pacima (1994). Nous remercions les officiers et l'équipage du navire océanographique *Marion-Dufresne*. Ces missions ont été financées par les Territoires et Terres australes et antarctiques françaises (TAAF).

#### Références

- [1] R.F. Anderson, Redox behavior of uranium in an anoxic marine basin, *Uranium 3* (1987) 145–164.
- [2] R.F. Anderson, N. Kumar, R.A. Mortlock, P.N. Froelich, P. Kubik, P. Dittrich-Hannen, M. Sutter, Late-Quaternary changes in productivity of the Southern Ocean, *J. Mar. Syst.* 17 (1998) 497–514.
- [3] G. Bareille, M. Labracherie, P. Bertrand, L. Labeyrie, G. Lavaux, M. Dignan, Glacial–Interglacial changes in the accumulation rates of major biogenic components in Southern Indian Ocean sediments, *J. Mar. Syst.* 17 (1998) 527–539.
- [4] M. Bender, R. Jahnke, R. Weiss, W. Martin, D.T. Heggie, J. Orchard, T. Sowers, Organic carbon oxidation and benthic nitrogen and silica dynamics in San Clemente Basin, a continental borderland site, *Geochim. Cosmochim. Acta* 53 (1989) 685–697.
- [5] W.H. Berger, V.S. Smetacek, G. Wefer, Particle flux in the ocean: effects of episodic production, in: W.H. Berger, V.S. Smetacek, G. Wefer (Eds.), *Productivity of the Ocean: Present and Past*, John Wiley & Sons, New York, 1989, pp. 1–34.
- [6] S.E. Calvert, M.R. Fontugne, Geochemistry and origin of Mediterranean sapropels, *Eos* 69 (1988) 1234.
- [7] X. Crosta, Flux sédimentaires : Paléoproduktivité–paléocirculation de l'océan Austral au cours des 150 000 dernières années, thèse, université Bordeaux-1, 1998, 259 p.
- [8] L. Dezileau, Reconstitution de la paléoproduktivité du secteur Indien de l'océan Austral : approche radiochimique (U, Th), thèse, université Paris-6, 2000, 250 p.
- [9] L. Dezileau, G. Bareille, J.-L. Reyss, F. Lemoine, Evidence for strong sediment redistribution by bottom currents along the Southeast Indian Ridge, *Deep-Sea Research I* 47 (2000) 1899–1936.
- [10] C. Emiliani, Pleistocene temperatures, *J. Geol.* 63 (1955) 538–578.
- [11] R. François, M.P. Bacon, M.A. Altabet, L.D. Labeyrie, Glacial/Interglacial changes in sediment rain rate in the SW Indian sector of Subantarctic waters as recorded by  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ , U, and  $\delta^{15}\text{N}$ , *Paleoceanography* 8 (5) (1993) 611–629.
- [12] R. François, M.A. Altabet, E.-F. Yu, D.M. Sigman, M. Frank, M.P. Bacon, G. Bohrmann, G. Bareille, L.D. Labeyrie, Contribution of southern ocean surface-water stratification to low atmospheric  $\text{CO}_2$  concentrations during the last glacial period, *Nature* 389 (1997) 929–935.
- [13] M. Frank, Reconstitution of Late Quaternary environmental conditions applying the natural radionuclides  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{231}\text{Pa}$  and  $^{238}\text{U}$ : a study of deep-sea sediments from the eastern sector of the Antarctic Circumpolar Current System, PhD thesis, Alfred-Wegener Institut, Bremerhaven, 1996, 136 p.
- [14] F. Gingele, A. Dahmke, Discrete barite particles and barium as tracers of paleoproductivity in the South Atlantic sediments, *Paleoceanography* 9 (1994) 151–168.
- [15] N. Kumar, R.F. Anderson, R.A. Mortlock, P.N. Froelich, P. Kubik, P. Dittrich-Hannen, M. Suter, Increased biological productivity and export production in glacial Southern Ocean, *Nature* 378 (1995) 675–680.
- [16] M. Mangini Jung, S. Laukenmann, What do we learn from peaks of uranium and manganese in deep sea sediments?, *Mar. Geol.* 177 (2001) 63–78.
- [17] J. McManus, W.M. Berelson, G.P. Klinkhammer, T.E. Kilgore, D.E. Hammond, Remobilization of barium in continental margin sediments, *Geochim. Cosmochim. Acta* 58 (1994) 4899–4907.
- [18] C. Rabouille, J.-F. Gaillard, P. Treguer, Recycling of organic matter in Antarctic sediments: a transect through the polar front in the southern ocean (Indian sector), *Deep-Sea Res. II* (1998) 1151–1176.
- [19] D.W. Spencer, M.P. Bacon, P.G. Brewer, Models of the distribution of  $^{210}\text{Pb}$  in a section across the North Equatorial Atlantic Ocean, *J. Mar. Res.* 39 (1981) 119–138.
- [20] J. Thomson, N.C. Higgs, I.W. Croudace, S. Colley, D.J. Hydes, Redox zonation of elements at anoxic/post-oxic boundary in deep-sea sediments, *Geochim. Cosmochim. Acta* 57 (1993) 579–595.
- [21] J. Thomson, N.C. Higgs, S. Colley, Diagenetic redistributions of redox-sensitive elements in northeast Atlantic glacial/interglacial transition sediments, *Earth Planet. Sci. Lett.* 139 (1996) 365–377.
- [22] B.J.H. Van Os, J.J. Middelburg, G.J. De Lange, Possible diagenetic mobilisation of barium in sapropelic sediment from the eastern Mediterranean, *Mar. Geol.* 100 (1991) 125–136.
- [23] P.J.M. Van Santvoort, G.J. De Lange, J. Thomson, H. Cussen, T.R.S. Wilson, M.D. Krom, K. Ströhle, Active post-depositional oxidation of the most recent sapropel (S1) in sediments of the eastern Mediterranean Sea, *Geochim. Cosmochim. Acta* 60 (1996) 4007–4024.