

## CHIMIE DES NEIGES ANTARCTIQUES ET TAUX DE DEPOSITION DE MATIERE EXTRATERRESTRE – DEUXIEME ARTICLE

F.HANAPPE \*, M.VOSTERS \*\*, E.PICCOTTO and S.DEUTSCH \*\*

*Service de Géologie et Géochimie Nucléaires, Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, Belgique*

Received 15 July 1968

Sodium, magnesium, potassium, calcium, iron, manganese and nickel were measured in firn samples from Base Roi Baudouin (BRB, 70°S, 24°E), Amundsen-Scott Station (ASS, 90°S) and Plateau Station (PLA, 79°S, 40°E). The rates of snow accumulation at the three stations are respectively, in  $\text{g.cm}^{-2}.\text{yr}^{-1}$ : 40, 6 and 2.8.

The analyses were carried out by neutron activation, atomic absorption and isotope dilution. In most cases, Fe, Mn, Ni were measured simultaneously by two or three methods on aliquots of the same sample. The corrections for contamination never exceeded 10%.

Average concentrations found at BRB (5 samples, 14 kg total) and at PLA (4 samples, 32 kg) respectively are as follows, in p.p.b.: Na 250–30; Mg 29–5; K 29–5; Ca 17–8; Mn 0.1–0.35; Fe 6–7; Ni 0.36–0.08. At AAS (2 samples, 3 kg): Na 9; Mn 0.2; Ni 0.1.

On account of the everpresent possibility of contamination, these values must be considered as upper limits.

The following conclusions are drawn from the results:

1) The earlier Ni measurements at BRB and ASS are erroneously high. The accretion rate of extraterrestrial matter derived from these data is too high by an order of magnitude.

2) At PLA which is, amongst the three stations, the one furthest away from sources of terrestrial contamination, the fallout rate of inorganic matter (soluble as well as particulate) is of the order of  $10^{-6}\text{g.cm}^{-2}.\text{yr}^{-1}$ . The relative abundances of the measured elements are compatible with the assumption that this matter is a mixture of 98% of average crustal material and 2% of chondritic matter. In such a case, 80% of the Ni found would be of cosmic origin.

If a cosmic origin and an abundance of 1.3% (the value in ordinary chondrites) are postulated for all the Ni found, an upper limit of  $10^5$  tons/yr is calculated for the influx rate of extraterrestrial matter over the earth. The deposition is assumed to be uniform.

3) At BRB, the fallout rate of inorganic matter is at least  $10^{-4}\text{g.cm}^{-2}.\text{yr}^{-1}$ , indicating an overwhelming terrestrial contribution as it could be expected from the geographical location. Nevertheless, the Fe/Ni ratio is found to be much closer to the chondritic ratio at BRB than at PLA.

4) The upper limit of  $10^5$  tons/yr for the influx rate is an order of magnitude lower than other estimates based on the Ni, Co, Fe contents of Greenland ice. On the other hand, it is in agreement with the value derived from the Ir and Os content of deep-sea sediments. Both sets of results indicate that at the utmost 2% of the Ni in the ocean could be of cosmic origin.

### 1. INTRODUCTION

Dans un article précédent [1], Brocas et Picciotto ont proposé une estimation du taux de déposition de matière extra-terrestre, basée sur la composition chimique de neiges antarctiques. D'après les résultats d'analyse par activation, ils ont estimé les taux de dé-

position du nickel à  $10^{-8}\text{g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$  au Pôle Sud et  $1,7 \times 10^{-7}\text{g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$  à la Base Roi Baudouin (70°S, 24°E).

Au Pôle Sud, les abondances relatives de Na, K, Ca, Mg par rapport au Ni sont beaucoup plus proches des rapports chondritiques que des rapports typiques des roches crustales. Cette observation a été prise comme indication que la majeure partie du nickel serait d'origine extra-terrestre. A la Base Roi Baudouin, par contre, on a conclu à une contribution terrestre importante.

\* Aussi département Physique du Neutron, C.E.N., Mol.

\*\* Chercheur à l'I.I.S.N.



En supposant que tout le nickel mesuré au Pôle Sud soit d'origine extra-terrestre, que son abondance dans la matière extra-terrestre soit de 1,35% (abondance chondritique) et que sa déposition soit uniforme sur tout le Globe, ces auteurs ont déduit un taux de déposition globale de matière extra-terrestre de  $3,7 \times 10^6$  tonnes par an.

Après la publication de cet article, de nouveaux résultats ont été publiés qui tendent à montrer que cette valeur est fortement surestimée. Nous renvoyons à ce propos aux revues récentes [2,3].

Des contradictions nous étaient apparues très vite après l'obtention des résultats précédents, grâce surtout à des discussions avec divers collègues que nous tenons à remercier ici, notamment E.Anders, G. Arrhenius, J. Barker, W. Broecker and P.Gast.

Sans tenir compte ici des résultats d'observations récentes dans l'espace ou la haute atmosphère, une contradiction importante a été soulevée par les mesures d'osmium et d'iridium dans les sédiments pélagiques [3], mesures conduisant à un taux de déposition globale de matière chondritique inférieure à  $10^5$  tonnes par an.

Une contradiction encore plus évidente ressort de la comparaison du taux de déposition du nickel sur le Continent Antarctique et sur le fond des océans. L'estimation du taux de déposition du nickel dans les océans est compliquée par l'incertitude sur les taux de sédimentation des sédiments pélagiques [4,5] et, à un degré moindre, par le rôle mal défini que pourraient jouer les nodules de manganèse dans le bilan du nickel océanique (G.Arrhenius, communication privée).

Le tableau 1 rassemble quelques cas de carottes de sédiments pélagiques, dont la concentration en nickel est bien connue, et pour lesquelles on peut raisonnablement admettre que l'incertitude sur le taux de sédimentation ne dépasse pas un facteur 2. On y voit que les taux de déposition du nickel dans la région centrale de l'Océan Pacifique sont de l'ordre de  $10$  à  $20 \times 10^{-9}$  g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>. Ce taux de déposition est peu compatible avec celui trouvé au Pôle Sud car il impliquerait qu'une fraction notable du nickel océanique soit d'origine extra-terrestre, hypothèse déjà avancée [6] mais fortement critiquée depuis [3,7]. De plus, le taux de déposition à la Base Roi Baudouin est 10 à 20 fois plus grand que dans les océans, ce qui paraît difficile à admettre, même si l'on

tient compte de la proximité de l'océan et d'une chaîne de montagnes importante.

Ces diverses considérations nous ont amenés à remettre en cause la validité des résultats précédents [1], à vérifier soigneusement la technique expérimentale utilisée et à en développer d'autres. Ces techniques ont été appliquées à des échantillons, du Pôle Sud et de la Base Roi Baudouin, choisis dans la série qui avait servi aux mesures précédentes, et à des échantillons provenant d'un troisième site: la station américaine de Plateau Station. Cette base est située à environ 40°E et 79°S, près de la zone la plus continentale et la plus élevée de la calotte glaciaire antarctique.

Les échantillons de Plateau Station ont été prélevés avec le maximum de soins et conservés à l'état solide jusqu'au moment de l'analyse, comme les précédents.

Les détails sur les méthodes de prélèvement et sur les techniques analytiques seront publiés ailleurs. On donne brièvement ici le principe des méthodes en insistant sur le contrôle des contaminations, problème majeur dans la mesure de concentrations aussi basses.

## 2. METHODES ANALYTIQUES

Trois méthodes indépendantes ont été utilisées: l'activation neutronique (pour Ni, Mn, Na), la spectrophotométrie d'absorption atomique (pour Ni, Fe, Mn, Ca, K, Mg, Na) et la dilution isotopique (pour Ni et Fe).

Certains échantillons ont été irradiés encore à l'état congelé. D'autres ont été concentrés par évaporation; le concentré a été analysé par une ou plusieurs des méthodes simultanément.

### 2.1. Activation neutronique

Le procédé général est similaire à celui décrit dans [1]. En plus du Ni, nous avons mesuré simultanément sur le même échantillon Mn, Na et K.

L'échantillon de 1,5 kg environ, contenu dans un tube de lucite, est irradié à l'état congelé, pendant 2h dans un flux de l'ordre de  $10^{12}$  n.cm<sup>-2</sup>.sec<sup>-1</sup>.

Le <sup>65</sup>Ni est identifié par son activité  $\beta$  décroissant avec une demi-vie de 2,56 h. Un soin particulier a été apporté à l'élimination des deux interférents les

Tableau 1  
Déposition du nickel dans le pacifique central.

Carotte	Position	Concentration Ni % sédiment sec [12]	Taux de sédimentation en mm/10 <sup>3</sup> ans		Taux de déposition du Ni en 10 <sup>-9</sup> g.cm <sup>-2</sup> .an <sup>-1</sup>	
			min. [11]	max. [5]	min.	max.
Cap 33 BG	12°46'S 143°33'W	0,039	0,3	0,9	5,85	17,5
Cap 23 HG	16°59'S 161°35'W	0,034	0,4	0,6	6,80	10,2
Cap 49 BG *	9°17'N 124°09'W	0,031 (BP)	1,6 (BG)	2,4	24,8	37,2
Cap 50 BG *	14°55'N 124°12'W	0,017 (BP)	1,0 (BG)	2,1	8,5	17,8
Wigwam 5	27°38'N 124°26'W	0,016	1,0	2,0	8,0	16,0
Ck 4	42°30'N 162°08'W	0,016	1,5	3,0	12,0	24,0
Moyenne		0,025	0,93	1,8	10	20,4

\* Les taux de sédimentation et les concentrations en nickel sont mesurés sur des carottes différentes mais très voisines (BG et BP).

plus dangereux du fait de leur demi-vie très proche:  
<sup>56</sup>Mn et <sup>31</sup>Si.

Le niveau de contamination a été défini par un essai à blanc particulièrement sévère, en irradiant un tube de lucite vide pendant deux heures, à plus de 60°C. Le tube a ensuite été rincé avec une solution acide contenant des sels de Ni, Mn, Na, K comme entraîneurs. On a trouvé 4 × 10<sup>-9</sup> g de Ni et 7 × 10<sup>-9</sup> g de Mn correspondant, pour un échantillon moyen de 1,5 kg, aux concentrations de 3 × 10<sup>-12</sup> g/g de Ni et 5 × 10<sup>-12</sup> g/g de Mn.

Le manganèse et le nickel ont aussi été mesurés par activation neutronique sur une aliquote de quelques ml de l'échantillon concentré par évaporation.

L'expérience a montré que les meilleures conditions, au point de vue contamination, sont obtenues en conservant et en irradiant la solution à l'état congelé dans un tube en lucite. La contamination apportée par cette opération est négligeable par rapport aux contaminations introduites lors de l'évaporation (voir paragraphe 2.2).

## 2.2. Absorption atomique

Les limites de détection de cette méthode nécessi-

tent, dans notre cas, une concentration de l'échantillon d'un facteur 200 à 500. Un effort considérable a été consacré à contrôler et à minimiser les dangers de contamination introduite par cette opération. Toutes les manipulations sont effectuées dans un laboratoire en surpression d'air filtré.

Après élimination de la surface, l'échantillon de névé, de 2 à 5 kg, est transféré par fragments successifs dans un ballon de quartz de 2 litres, où il est concentré à quelques ml. On ajoute ensuite 10 ml d'eau régale pour solubiliser d'éventuelles particules solides. La solution est évaporée presque à sec et reprise par 10 ml de HNO<sub>3</sub> à 5%.

Les éléments Na, K, Ca, Mg, Fe, Ni et Mn sont mesurés à l'aide de l'instrument Perkin-Elmer 303 muni d'un enregistreur.

On a vérifié que les erreurs dues aux interférences mutuelles de ces éléments sont inférieures à 10%. L'absence de pertes lors de l'évaporation a été vérifiée sur la plupart des échantillons et des blancs, à l'aide de traceurs radioactifs ou stables de Fe et de Ni.

La contamination introduite lors de la concentration et de la solubilisation a été estimée en menant

Tableau 2  
Résultats des analyses chimiques des neiges antarctiques.

Origine et <sup>1)</sup> numéro de l'échantillon	Niveaux en cm	Années <sup>2)</sup> présümées	Poids en kg	Méthodes <sup>3)</sup>	Concentration en 10 <sup>-9</sup> g/g <sup>4)</sup>						
					Na	Mg	K	Ca	Mn	Fe	Ni
BRB 64.I.16	120-150	1962	2,18	A.A.					0,15 ± 0,03 (0,4)	11 ± 1 (26)	0,42 ± 0,08 (1)
BRB 64.I.17	120-150	1962	2,01	A.A. D.I.	226 ± 11 (290)	27 ± 3 (35)	44 ± 7 (57)	27 ± 3 (35)		15 ± 3 (19)	0,80 ± 0,15 0,74 ± 0,08 (1)
BRB 64.I.18	120-150	1962	1,73	A.N.					0,19 ± 0,02 (0,45)		0,42 ± 0,04 (1)
BRB 64.I.19	120-160	1962	5,65	A.A. D.I.	251 ± 12 (910)	31 ± 3 (110)	30 ± 4 (110)	18 ± 3 (65)	0,05 ± 0,01 (0,2)	2,6 ± 0,4 2,3 ± 0,3 (10)	0,26 ± 0,04 0,29 ± 0,03 (1)
BRB 64.I.20	120-160	1962	2,38	A.A. D.I.	265 ± 13 (2.000)	28 ± 3 (215)	16 ± 2 (120)	7,1 ± 1,5 (55)	0,12 ± 0,02 (0,9)	2,8 ± 0,3 (22)	0,13 ± 0,04 (1)
ASS 63.I.16	190-240	1952-1950	1,04	A.N.	9 ± 1 (180)		< 15 (< 300)		0,075 ± 0,03 (1,5)		0,05 ± 0,02 (1)
ASS 63.I.17 <sup>5)</sup>	190-240	1952-1950	1,82	A.N.					0,29 ± 0,03 (2)		0,14 ± 0,035 (1)
PLA 67.II.1	200-230	1942-1938	4,71	A.A.	18 ± 2 (> 260)	3,4 ± 0,4 (> 50)	4,5 ± 0,9 (> 60)	0,6 ± 0,3 (> 9)	< 0,02	7,0 ± 0,7 (> 100)	< 0,07
PLA 67.II.2	140-170	1950-1945	4,62	A.A. A.N.*	35 ± 3 (210)	6,4 ± 0,6 (38)	13 ± 2 (76)	13 ± 2 (76)	0,24 ± 0,04 0,21 ± 0,03 (1,3)	6,5 ± 0,7 (38)	0,2 ± 0,1 0,17 ± 0,03 (1)
PLA 67.III.1	130-150	1951-1949	1,37	A.N.					0,27 ± 0,03 (1,7)		0,16 ± 0,03 (1)

Tableau 1 (continué)

Origine et <sup>1)</sup> numéro de l'échantillon	Niveaux en cm	Années <sup>2)</sup> présumées	Poids en kg	Méthodes <sup>3)</sup>	Concentration en $10^{-9}$ g/g <sup>4)</sup>						
					Na	Mg	K	Ca	Mn	Fe	Ni
PLA 67.III.2	160-180	1947-1944	21,03	A.A.	32 ± 2	4,9 ± 0,4	3,5 ± 0,7	8,6 ± 0,9	0,41 ± 0,04	7,4 ± 0,7	0,062 ± 0,010
				D.I.					7,1 ± 0,4	0,063 ± 0,006	
				A.N. *				0,37 ± 0,04	0,064 ± 0,007		
					(510)	(78)	(56)	(135)	(6)	(120)	(1)
Essais à blanc <sup>6)</sup>				A.A.	2	0,5	1,4	1,3	< 0,05	0,4	< 0,1
				D.I.					0,0007	0,15	0,003
				A.N. *					↙		< 0,001
				A.N.					0,005		0,003

1) Les trois premières lettres indiquent l'origine: BRB: Base Roi Baudouin (70°S-24°E); ASS: Amundsen-Scott Station (90°S); PLA: Plateau Station (79°S, 40°E). Les deux chiffres suivants indiquent l'année de collection.

2) Pour la série BRB, l'intervalle de temps représenté par chaque échantillon est de l'ordre de quelques mois. Pour les autres séries, chaque échantillon intègre au moins deux ans.

3) A.A.: absorption atomique, D.I.: dilution isotopique, A.N.: activation neutronique de l'échantillon non fondu, A.N. \*: activation neutronique après concentration.

Lorsque plus d'une méthode est mentionnée par échantillon, les analyses ont été faites sur des aliquotes de l'échantillon préalablement fondu et concentré.

4) Les nombres entre parenthèses représentent le rapport de la concentration de l'élément à celle du nickel.

5) Cet échantillon a été filtré après irradiation sur filtre millipore de 0,045 μ de porosité. Le filtrat et la fraction insoluble ont été analysés séparément. Les fractions insolubles sont respectivement de 38% pour Mn et 78% pour Ni.

6) Valeurs moyennes des essais à blanc ramenées à un échantillon de 2 kg.

cinq essais à blanc, dans les mêmes conditions et à partir de volumes de 1 à 5 litres d'eau soigneusement désionisée.

### 2.3. Dilution isotopique

Le fer et le nickel ont été mesurés par dilution isotopique sur des aliquotes de l'échantillon préalablement concentré suivant les modalités décrites au paragraphe 2.2.

Le spectromètre de masse utilisé est du type NIER 60<sup>0</sup>, de 33 cm de rayon de courbure, équipé d'un multiplicateur d'électrons et d'une source à ionisation thermique (construite en molybdène pour réduire les contaminations en fer et nickel).

Le nickel a été mesuré à l'état de nitrate sur filament simple de platine recouvert d'une couche de silicate de zirconium servant d'activateur [8]. Ces conditions ont permis un gain considérable de sensibilité par rapport aux résultats reportés dans la littérature [9]. Un faisceau d'ions mesurable est encore obtenu avec  $2 \times 10^{-8}$  g de Ni. La contamination supplémentaire introduite par cette opération est de l'ordre de  $5 \times 10^{-9}$  g de Ni.

Le fer a été mesuré à l'état de nitrate, avec une source à double filament de tantale. La quantité minimum mesurable est de l'ordre de  $10^{-6}$  g de Fe, la contamination introduite par cette opération est de l'ordre de  $3 \times 10^{-7}$  g de Fe.

## 3. RESULTATS ET DISCUSSION

Les résultats expérimentaux sont reportés au tableau 2.

Une correction pour les contaminations systématiques a été appliquée sur la base des essais à blanc. Cette correction est toujours inférieure à 10%, sauf dans le cas du Ca de l'échantillon PLA 67-II-1, où elle atteint 50%.

Les erreurs indiquées représentent une estimation de l'incertitude globale sur les résultats.

Une comparaison directe des trois méthodes, sur le même échantillon solide, n'est pas possible à cause de l'hétérogénéité du névé. Nous ne pouvons comparer, dans le tableau 2, que les résultats obtenus à partir d'aliquotes d'une même solution homogène. On observe que, chaque fois que Fe, Mn ou Ni ont été mesurés par plusieurs méthodes, les résultats sont con-

Tableau 3  
Comparaison des concentrations en nickel d'après Brocas et Picciotto [1] et d'après le présent travail.

Station	Concentration moyenne en Ni, en $10^{-9}$ g/g	
	Brocas-Picciotto [1]	Ce travail
Base Roi Baudouin	4,3	0,36
Amundsen-Scott Station	1,5	0,11

cordants dans les limites des erreurs expérimentales.

Cette concordance démontre l'absence d'erreurs systématiques dans les trois méthodes, mais elle ne garantit pas l'absence de contaminations accidentelles lors du prélèvement des échantillons et de leur concentration. Remarquons cependant que:

- les contaminations accidentelles sont moins probables lors de l'activation à l'état solide que dans les autres méthodes. On voit, dans le tableau 2, que les résultats obtenus par les trois méthodes, pour un même site, sont en accord raisonnable, compte tenu de l'hétérogénéité possible des échantillons.
- d'éventuelles contaminations lors du prélèvement et du transport ne peuvent pas être exclues a priori. Nous estimons cependant qu'elles sont peu probables, étant donné les précautions prises lors de l'échantillonnage et du transport des échantillons à l'état congelé.

Ces divers arguments nous donnent confiance dans les résultats présentés ici, et nous amènent à la conviction que les résultats antérieurs [1] sont erronés par excès, d'un facteur 10 environ (voir tableau 3).

A l'heure présente, nous n'avons pu définir les causes de cette erreur. Nous avons envisagé une séparation incomplète des nuclides de période voisine de 2,5 h ou une contamination lors de l'activation, mais aucun de ces facteurs n'a été mis en évidence avec certitude et ne pourrait, à lui seul, expliquer l'écart observé.

Le tableau 4 donne, pour chaque élément et pour les divers sites échantillonnés, les valeurs moyennes des concentrations, les abondances relatives par rapport au nickel et le taux de déposition locale. A titre de comparaison on a ajouté des résultats publiés par d'autres auteurs.

A partir des données concernant le fer et le nickel, nous avons estimé les taux maxima respectifs

Tableau 4  
Concentrations, rapports chimiques et taux de dépôt de divers éléments dans des neiges polaires\*.

Sites	Années présumées	Poids total en kg	Na	Mg	K	Ca	Mn	Fe	Co	Ni	Références
Base Roi Baudouin (70°S, 24°E)	1962	14	250 (1050) [10 <sup>4</sup> ]	29 (120) [1160]	29 (100) [1160]	17 (60) [680]	0,10 (0,41) [4]	6,2 (17) [248]		0,36 (1) [14]	présent travail
Amundsen-Scott Station (90°S)	1950-1952	3	9 (180) [59]				0,21 (1,9) [1,4]			0,11 (1) [0,72]	présent travail
Amundsen-Scott Station (90°S)	1865 et 1963	100	12 [78]		7 [45]						(13)
Plateau Station (79°S, 40°E)	1938-1951	32	30 (450) [84]	4,9 (70) [14]	5,1 (60) [14]	8,0 (125) [22]	0,35 (5,2) [1,0]	7,2 (100) [20]		0,08 (1) [0,22]	présent travail
Camp Century (77°N, 61°O)	± 1760	5 × 10 <sup>6</sup>						5,2 (47) [166]	4,5 × 10 <sup>-3</sup> (0,04) [0,14]	0,11 (1) [3,5]	(10)
Croûte terrestre			(315)	(310)	(280)	(550)	(13)	(750)	(0,33)	(1)	(14)
Chondrites			(0,5)	(11)	(0,07)	(0,92)	(0,19)	(18)	(0,04)	(1)	(15)

\* Dans chaque cas sont donnés successivement (par exemple pour Na à la Base Roi Baudouin):

250: la concentration moyenne en 10<sup>-9</sup> g/g

(1050): l'abondance relative moyenne par rapport à Ni

[10<sup>4</sup>]: le taux de dépôt en 10<sup>-9</sup> g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>

Les taux de dépôt ont été calculés à partir des valeurs suivantes de l'accumulation de la neige, exprimée en g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>: Plateau Station 2,8 [16];

Amundsen-Scott Station 6 [17]; Base Roi Baudouin 40 [17]; Camp Century 32 [18].

de déposition globale de matière extra-terrestre, en faisant les hypothèses suivantes:

- a) tout le fer, ou tout le nickel, est extra-terrestre;
- b) l'abondance de ces éléments dans la matière extra-terrestre est la même que dans les chondrites;
- c) la déposition de matière extra-terrestre est uniforme sur tout le Globe.

Ces valeurs sont reprises au tableau 5, en même temps que les estimations d'autres auteurs, basées sur les mêmes hypothèses.

#### 4. CONCLUSIONS

De l'examen des tableaux précédents, il ressort que:

1<sup>o</sup>) Les concentrations en nickel, publiées par Brocas et Picciotto [1], et le taux de déposition globale de matière chondritique qui en a été déduit, sont erronés par excès d'un facteur 10 au moins.

2<sup>o</sup>) A *Plateau Station*, qui est la station la plus éloignée des sources de contamination terrestre, on peut estimer que la déposition annuelle en matière minérale est de l'ordre de  $10^{-6}$  g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup> (somme des oxydes de Na, K, Mg, Ca, Fe additionnée d'une quantité raisonnable de SiO<sub>2</sub> et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>).

Les rapports chimiques sont compatibles avec l'hypothèse simpliste que cette matière est un mélange de 98% de matière terrestre de composition crustale moyenne, et de 2% de matière chondritique (seul le sodium serait en excès). Dans ce cas, le nickel trouvé se partagerait en 80% de nickel extra-terrestre et 20% de nickel terrestre.

Le taux de déposition du nickel "extra-terrestre" à *Plateau Station* serait de  $0.18 \times 10^{-9}$  g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>, soit une déposition globale de matière supposée chondritique et uniformément répartie de  $7 \times 10^4$  tonnes par an. Vu la possibilité toujours présente de contamination, ce chiffre doit être considéré comme une limite supérieure. De plus, nous ne considérons pas les rapports chimiques comme un critère certain de l'origine des éléments trouvés.

3<sup>o</sup>) A la *Base Roi Baudouin*, la déposition totale en matière minérale serait de l'ordre de  $10^{-4}$  g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>. Les abondances relatives reportées au tableau 4 ne sont pas compatibles avec le modèle d'un mélange de matière crustale et de matière chondritique. Ceci n'a rien d'étonnant vu la proximité de l'océan et d'une chaîne de montagnes, et vu aussi l'importante contribution biogénique visible dans les

particules insolubles (débris de diatomées notamment). Il est donc impossible de faire aucune hypothèse raisonnable sur la proportion du nickel qui pourrait être d'origine extra-terrestre.

Un fait mérite d'être souligné: bien que la contribution terrestre soit beaucoup plus importante à la *Base Roi Baudouin* qu'à *Plateau Station*, les rapports Fe/Ni y sont beaucoup plus proches du rapport chondritique qu'à *Plateau Station*. Que l'excès de nickel soit dû à une contamination humaine ou à une source naturelle, ce fait montre qu'il est dangereux de conclure à une origine extra-terrestre sur la seule base de rapports chimiques [10].

4<sup>o</sup>) Une discussion plus détaillée nous semble inutile avant d'avoir obtenu un plus grand nombre de résultats expérimentaux.

Nous observerons que les taux de déposition du fer et du nickel trouvés à *Camp Century*, Groenland [10], sont proches de ceux que nous proposons pour la *Base Roi Baudouin*, mais sont nettement supérieurs à ceux de *Plateau Station*. Il nous semble que, tenant compte des conditions géographiques des trois sites, les résultats expérimentaux de McCorkell et al. [10] sont parfaitement compatibles avec les nôtres, mais pas leur conclusion quant à l'origine extra-terrestre de ces éléments.

Les taux de déposition du nickel à la *Base Roi Baudouin*, présentés ici, ne sont plus en contradiction avec la déposition du nickel dans les océans. Les résultats, obtenus à *Plateau Station*, conduisent à des conclusions en bon accord avec celles tirées des mesures d'osmium et d'iridium dans les sédiments pélagiques [3]. Malgré la grande différence dans les intervalles de temps considérés, ces deux séries de résultats s'accordent pour suggérer que 2% du nickel déposé dans le Pacifique Central est d'origine extra-terrestre, et que la retombée globale en matière extra-terrestre n'excède pas  $10^5$  tonnes par an.

#### REMERCIEMENTS

Les nouveaux échantillons de neige provenant de la station américaine de *Plateau Station* ont pu être collectés par l'un de nous (E.P.) grâce au soutien de l'Office of Antarctic Programs, National Science Foundation (NSF Grant GA-530). Le soutien logistique de la U.S. Naval Support Force, Antarctica, et la coopération de l'équipe de *Plateau Station* 1966, et

Tableau 5

Taux de déposition maximum d'une hypothétique matière extra-terrestre de composition chondritique, obtenus en supposant que la totalité de l'élément est d'origine extra-terrestre et que la déposition est uniforme.

(en  $10^6$  tonnes par an)

Echantillon	Origine	Années présumées	Fe	Co	Ni	Os	Ir	Références
Névé	Plateau Station	1938-1951	0,4		0,08			présent travail
Névé	Amundsen-Scott Station	1950-1952			~ 0,3 *			présent travail
Névé	Base Roi Baudouin	1962	5,2		5,4			présent travail
Glace	Camp Century	~1760	3,5	1,3	1,3			[10]
Sédiments	Pacifique				4	0,05	0,1	[3] voir tableau 1

Les calculs sont basés sur les abondances chondritiques suivantes en %:

Fe = 24,4; Co = 0,0054; Ni = 1,35 [15]

Os =  $5,2 \cdot 10^{-5}$ ; Ir =  $4,2 \cdot 10^{-5}$  [3]

\* Valeur basée sur seulement deux échantillons de 1,5 kg encore disponibles.

spécialement du scientific leader J.Pranke, ont été particulièrement appréciés.

Nous tenons à remercier le Centre d'Etude de l'Energie Nucléaire à Mol et, spécialement, l'équipe du réacteur BR 1, le Dr. P. del Marmol pour leur généreuse et efficace collaboration.

Ce travail a bénéficié de l'aide financière de L'Institut Interuniversitaire des Sciences Nucléaires et du Fonds de la Recherche Collective Fondamentale (programme 243).

L'un de nous (F.Hanappe) remercie l'I.R.S.I.A. pour l'octroi d'une "Bourse de Perfectionnement".

## REFERENCES

- [1] J.Brocas and E.Picciotto, Nickel content of Antarctic snow: Implications on the influx rate of extraterrestrial dust, *J. Geophys. Res.* 72 (1967) 2229.
- [2] D.W.Parkin and D.Tilles, Influx measurements of extraterrestrial material, *Science* 159 (1968) 936.
- [3] J.L.Barker Jr. and E.Anders, Accretion rate of cosmic matter from iridium and osmium contents, *Geochim. Cosmochim. Acta* 32 (1968) 627.
- [4] W.M.Sackett, Measured deposition rates of marine sediments and implications for accumulation rates of extraterrestrial dust, *Ann. N.Y. Acad. Sci.* 119 (1964) 339.
- [5] T.L.Ku, W.S.Broecker and N.Opdyke, Comparison of sedimentation rates measured by paleomagnetic and the ionium methods of age determination, *Earth Planet. Sci. Letters* 4 (1968) 1.
- [6] H.Pettersson and H.Rotschi, The nickel content of deep-sea deposits, *Geochim. Cosmochim. Acta* 2 (1952) 81.
- [7] A.A.Smales and J.D.H.Wiseman, Origin of nickel in deep-sea sediments, *Nature* 175 (1955) 464.
- [8] P.A.Akishin, O.T.Nikitin and G.M.Panchenkov, A new effective ionic emitter for the isotopic analysis of lead, *Geochemistry (translation of Geokhimiya)* (1957) 500.
- [9] A.M.Turnbull, Surface ionisation techniques in mass spectrometry, AERE Report R.4295 (1963). E.J.Spitzer and J.R.Sites, Isotopic mass spectrometry of the elements, ORNL Report 3528 (1963).
- [10] R.H.McCorkell, E.L.Fireman and C.C.Langway Jr., Dissolved iron, nickel, and cobalt in Greenland ice, *Trans. Am. Geophys. Union* 48 (1967) 158.
- [11] E.D.Goldberg and M.Koide, Geochronological studies of deep-sea sediments by the ionium/thorium method, *Geochim. Cosmochim. Acta* 26 (1962) 417.
- [12] E.D.Goldberg and G.Arrhenius, Chemistry of Pacific pelagic sediments, *Geochim. Cosmochim. Acta* 13 (1958) 153
- [13] A.T.Wilson and D.A.House, Chemical composition of south polar snow, *J. Geophys. Res.* 70 (1965) 5515.
- [14] S.R.Taylor, Abundance of chemical elements in the continental crust: a new table, *Geochim. Cosmochim. Acta* 28 (1964) 1273.

- [15] H.C.Urey, A review of atomic abundances in chondrites and the origin of meteorites, *Rev. Geophys.* 2 (1964) 1.
- [16] E.Picciotto, R.Cameron, G.Crozaz, S.Deutsch and S.Wilgain, Determination of the rate of snow accumulation at the Pole of Relative Inaccessibility, East Antarctica. A comparison of glaciological and isotopic methods, à paraître dans *J. Glaciology*.
- [17] G.Crozaz, E.Picciotto and W.De Breuck, Antarctic snow chronology with Pb-210, *J. Geophys. Res.* 69 (1964) 2597.
- [18] G.Crozaz and C.C.Langway Jr., Dating Greenland firn-ice cores with Pb-210, *Earth Planet. Sci. Letters* 1 (1966) 194.