

CBPF-NF-047/84

LES DATATIONS PAR TRACES DE FISSION (TF) EN ARCHEOLOGIE.
1. PRINCIPES ET METHODES EXPERIMENTALES

par

G. Poupeau^{1,2} and E. Zuleta^{1,3}

¹Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - CNPq/CBPF
Rua Dr. Xavier Sigaud, 150
22290 - Rio de Janeiro, RJ - Brasil

²CNRS-ORSTOM, Paris, France

³Universidade Federal Fluminense
Departamento de Física
24.210 - Niterói, RJ - Brasil

A paraître dans: Las Ciencias en la Arqueologia,
Escuela Internacional "Multiciencias",
Cuzco (Peru) 20-31 août 1984

LES DATATIONS PAR TRACES DE FISSION (TF) EN ARCHEOLOGIE.

1. PRINCIPES ET METHODES EXPERIMENTALES

G. Poupeau^{1,2} et E. Zuleta^{1,3}

¹Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas
Rua Dr. Xavier Sigaud, 150 - Rio de Janeiro, Brasil.

²CNRS-ORSTOM, Paris, France.

³Universidade Federal Fluminense
Departamento de Física
24.210 - Niterói, RJ - Brasil

Septembre 1984

RÉSUMÉ

Dans ce résumé de communication, on expose brièvement les principes de la méthode de datation par Traces de Fission (TF) de l'uranium. Les conditions d'application à l'archéologie sont discutées, en particulier pour les verres volcaniques, où les traces de Fission Fossiles sont souvent affectées d'un début d'effacement.

Mots clés: Archéométrie; Datations; Traces de Fission.

La datation par TF (Price et Walker 1963, Fleischer et al. 1975, Naeser 1979, Poupeau 1981) repose sur le fait que les fragments de fission spontanée de l'uranium 238 (Fig. 1) induisent dans les verres et de nombreux minéraux une zone de dommages linéaire (Fig. 2) qu'il est possible de rendre visible en microscopie optique (Fig. 3) au moyen d'une attaque chimique sélective. Pour l'évaluation des applications de la méthode des traces à l'archéologie et à la paléanthropologie (Wagner 1978, Poupeau 1979), il est bon de savoir qu'un matériau renfermant 1 ppm d'uranium ne produit que quelques traces révélables par cm^2 en 1000 ans. Ceci limite l'utilisation du géochronomètre TF soit à la datation d'artefacts d'obsidienne, qui renferment typiquement de 1 à 5 ppm d'uranium (voir Poupeau et Zuleta 1984a), soit à celle de minéraux comme les zircons, dont les teneurs sont couramment supérieures à 100 ppm (Poupeau et Zuleta 1984b).

- DERIVATION D'UN AGE TF

Les traces de fission ne sont des défauts stables qu'au-dessous d'une température critique, ou température de fermeture (Dodson 1979). Pour des températures plus élevées, électrons et ions de la zone perturbée se recombinent et restaurent le réseau cristallin jusqu'à rendre toute révélation des traces impossible. Pour un minéral refroidi depuis un temps $t < 10^8$ ans au-dessous de sa température de fermeture, l'âge TF est donné par la relation:

$$t = \frac{D_f}{D_i} \frac{\sigma I \phi}{\lambda} \quad (1)$$

où D_f et D_i sont respectivement la densité (nombre/unité de surface) de traces de fission spontanée de ^{238}U (qui dépend de t et de la

teneur en uranium de l'échantillon) et celle de traces de fission induite de ^{235}U , ces dernières produites par une exposition à une dose Φ de neutrons thermiques dans un réacteur nucléaire (D_i est proportionnelle à Φ et à la teneur en uranium de l'échantillon); λ est la constante de décroissance par fission spontanée de ^{238}U , I le rapport isotopique naturel $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ et σ la section efficace de capture de neutrons thermiques pour la fission induite de ^{235}U . La dose Φ (en neutrons/cm²) peut être elle-même mesurée en principe par la méthode des traces si on utilise des verres standards dopés à l'uranium (les plus utilisés sont ceux du National Bureau of Standards, Washington D.C., voir Carpenter et Reimer, 1974). Une géochronométrie par la méthode des traces ne nécessiterait donc, en principe, que trois mesures de densités de traces (D_f , D_i et pour la détermination de Φ) effectuées à l'aide d'un microscope optique.

L'équation (1) n'est en réalité pas utilisable directement en géochronologie, car (i) la valeur de la constante de fission λ est encore très mal connue (voir par ex. Bigazzi 1981) et (ii) il est difficile d'évaluer correctement la dose de neutrons thermiques au sein de l'échantillon (Naeser et al. 1980, Hurford et Green 1981, 1982). On utilisera donc une des deux méthodes ci-dessous:

1. La pratique générale jusqu'à présent a consisté à effectuer une dosimétrie neutronique à l'aide de verres standards, la constante λ étant considérée comme un paramètre expérimentalement ajustable à partir de standards géologiques d'âges bien connus (cf. Naeser et al. 1980). Le plus utilisé de ces standards est constitué d'apatites et de zircons du Fish Tuff Canyon (Naeser et al. 1981).

2. Alternativement, si l'on pouvait disposer en quantité suffisante d'un standard géologique d'âge t_{st} dont on puisse irradier un aliquote avec chaque échantillon x à dater, on pourrait se rendre indépendant à la fois des incertitudes sur λ et Φ . En effet, dans ce cas, on aurait:

$$t_x = \frac{D_f}{D_i} \frac{\sigma I \Phi}{\lambda} \quad \text{et} \quad t_{st} = \frac{D'_f}{D'_i} \frac{\sigma I \Phi}{\lambda} \quad (2)$$

soit

$$t_x = \frac{D_f}{D_i} \frac{D'_i}{D'_f} t_{st}$$

Cette méthode, proposée il y a plus de 10 ans (Fleischer et Hart 1972, Fleischer et al. 1975), n'a cependant pas encore été appliquée. Elle pourrait l'être avec profit pour les obsidiennes, à partir d'échantillons standards indépendamment datés par K-Ar.

Les différentes techniques de mesure de D_f et D_i actuellement en usage ont été décrites à plusieurs reprises (Poupeau 1981, Gleadow 1981, Hurford et Green 1982). L'une des plus utilisées pour les zircons et les obsidiennes est la méthode dite du "détecteur externe", dans laquelle D_f est mesurée dans l'échantillon à dater et D_i dans un détecteur externe, feuille de mica ou de plastique (Kapton par exemple), placée contre l'échantillon à dater pendant l'irradiation, et qui enregistre les traces de fission induite de ^{235}U . Cette technique nécessite une calibration préalable pour tenir compte des différences de comportement de l'échantillon et du détecteur vis à vis de l'enregistrement et de la révélation des traces ("facteur géométrique" des zircons, Gleadow and Lovering 1977, Naeser et al. 1980, Gleadow 1981; "angle critique" des obsidiennes, Suzuki 1973).

Pour des datations d'intérêt anthropologique, la précision d'un âge TF (Johnson et al. 1979) varie typiquement, en fonction du type d'échantillon et de la période envisagée, entre $\pm 5\%$ et $\pm 10\%$ (1σ).

- VERRES VOLCANIQUES

Il arrive fréquemment que la dimension des traces fossiles dans un verre volcanique soit inférieure à celle des traces induites en réacteur. Cette différence résulte d'un phénomène de "vieillissement" des traces de fission spontanée de ^{238}U sous diverses conditions d'environnement. Cette diminution du diamètre apparent des traces révélables (Fig. 4) est corrélative d'une diminution de densité, comme le montrent des expériences de laboratoire (Fig. 5). Du point de vue de la datation, la conséquence de ce vieillissement est de donner des âges TF "trop" jeunes. Une comparaison des diamètres de traces fossiles et induites dans un verre volcanique (Fig. 6) permet de corriger les effets induits par ce vieillissement (Storzer et Wagner 1969). Une méthode alternative, plus récente, celle des âges-plateaux (Storzer et Poupeau 1973), fournit des âges TF directement compensés pour le raccourcissement éventuel des traces fossiles, avec l'avantage d'une meilleure précision. L'avantage de la méthode de correction d'âges basée sur les mesures de diamètres est de permettre éventuellement, lorsque la distribution des diamètres de traces fossiles est bimodale, de dater deux événements différents (voir Poupeau et Zuleta 1984a).

LEGENDES DES FIGURES

- Fig. 1 : Distribution relative, en masse, des fragments de fission induite de ^{235}U par les neutrons thermique. Chaque fission produit deux fragments de masses différentes avec des nombres de masse moyens de 108 et 143 et quelques neutrons, qui se partagent une énergie cinétique de l'ordre de 185 MeV.
- Fig. 2 : L'énergie cinétique impartie aux fragments de fission leur permet, dans les minéraux et les verres, un recul de l'ordre de quelques microns. Chaque fragment est fortement ionisé et le long de son parcours ionise lui-même les atomes du milieu. Il en résulterait, par répulsion coulombienne, la formation d'une zone de dommage permanente, ou trace latente (modifié, d'après Monnin, 1975). Le diamètre de la zone très perturbée du réseau cristallin serait $\lesssim 50 \text{ \AA}$.
- Fig. 3 : Visualisation des traces de fission pour la microscopie optique. En haut: atomes d'uranium (A) et traces latentes de fission (B) dans un minéral. La longueur d'une trace latente est caractéristique de chaque espèce minérale. Elle dépend de la densité électronique du réseau cristallin et donc, en première approximation de la densité d'un minéral. En bas: les traces intersectant une surface libre du minéral ont été "révêlées" par une attaque chimique qui a agrandi leur diamètre jusqu'au moins $0,3 \mu\text{m}$, limite de résolution de la microscopie optique. Toute la géochronologie par TF repose sur l'utilisation des traces de fission révélées.
- Fig. 4 : Traces de fission d'uranium dans un verre. Les traces présentent un aspect elliptique dû au fait que l'agent chimique à qui l'on doit leur révélation (acide fluorhydrique) dissout en même temps le verre "sain" à une vitesse non négligeable.

Fig. 5 : Corrélation entre diminution du diamètre des traces révélables dans un verre (on mesure le grand diamètre de l'ellipse, voir Fig. 4) et de la densité de traces. R_0 et D_0 , respectivement diamètre et densité de traces de fission de ^{235}U produites dans un réacteur nucléaire. Chaque point expérimental représenté est obtenu par une mesure de R et D après un recuit thermique plus ou moins intense. Pour un échantillon géologique, la mesure du rapport du diamètre moyen de traces fossiles à celui des traces induites $\frac{R_f}{R_0}$ permet, à l'aide d'une courbe de calibration préalablement établie, d'évaluer le taux de perte de traces fossiles et donc une correction d'âge (modifiée, d'après Storzer et Wagner 1969).

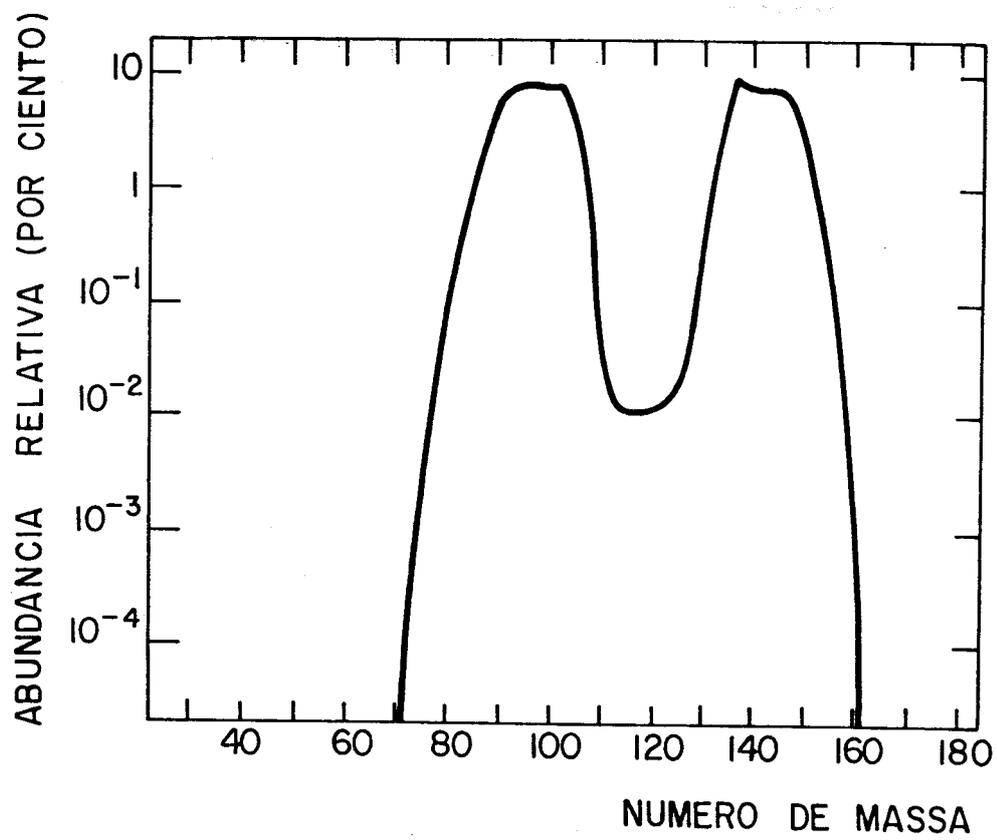


Fig. 1

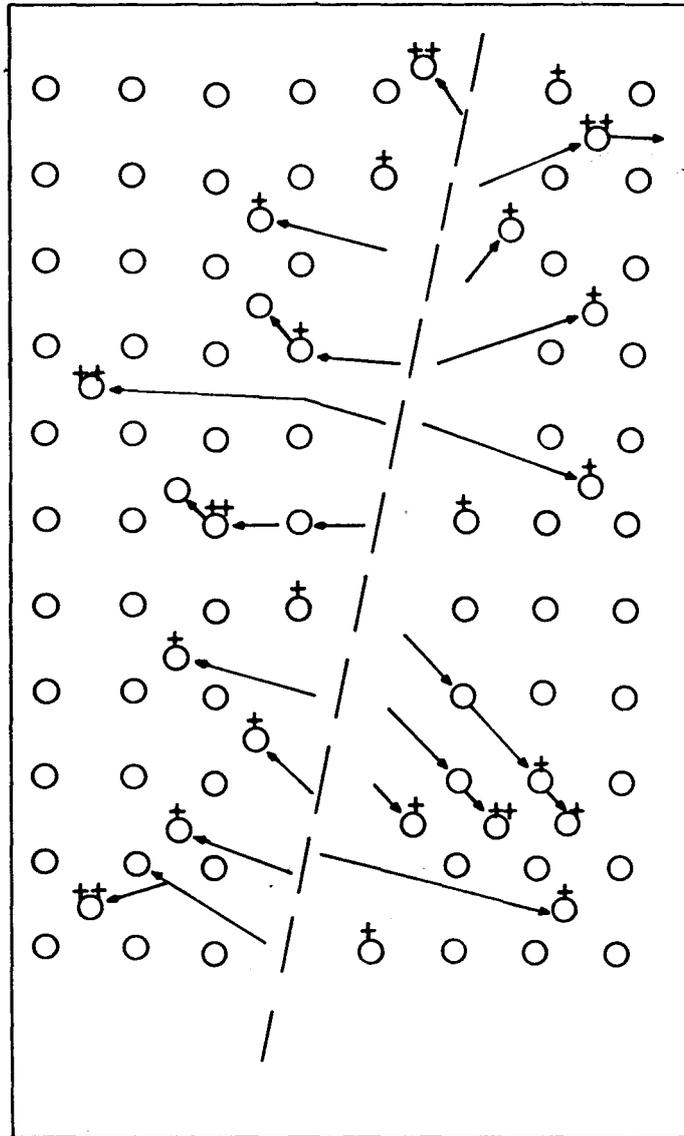


Fig. 2

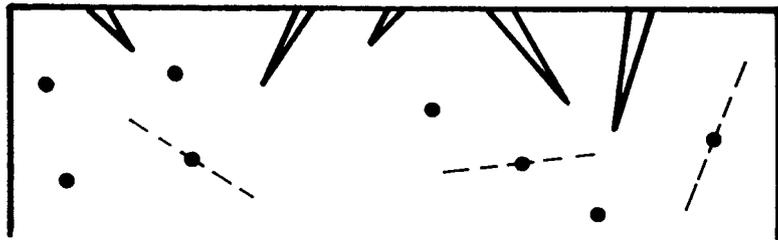
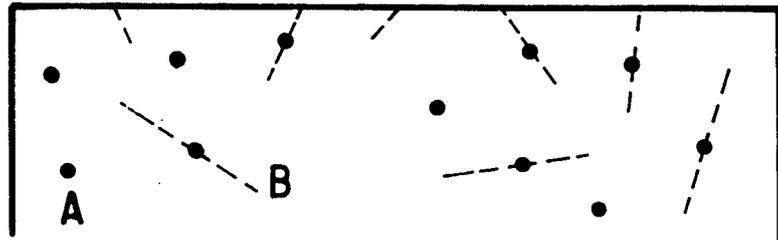


Fig. 3

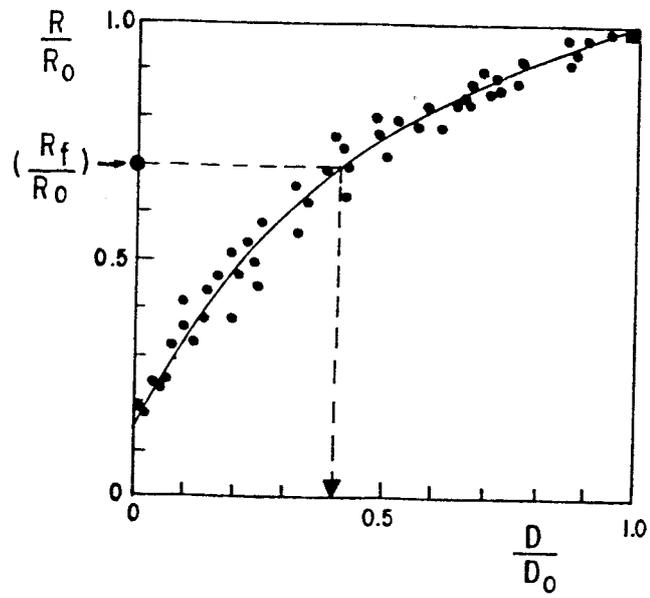


Fig. 5

REFERENCES

- BIGAZZI G, (1981)
The problem of the decay constant λ_f of ^{238}U
Nuclear Tracks, 5, 35-44
- CARPENTER B.S. & REIMER G.M. (1974)
Calibrated glasses for standards for fission-track use
NBS Special Publication 260-49
- DODSON (1979)
Lectures in Isotope Geology, Springer-Verlag, Berlin, 207-
- FLEISCHER R.L. & HART H.R. Jr. (1972)
Fission-track dating: techniques and problems.
Calibration of Hominoid Evolution, W.W. Bishop and J.A. Miller
Editors, Scottish Academic Press, 135-170
- FLEISCHER R.L., PRICE P.B. & WALKER R.M. (1975)
Nuclear Tracks in Solids
University of California Press, Berkeley, 604
- GLEADOW A.J.W. (1981)
Fission-track dating methods: what are the real alternatives?
Nuclear Tracks, 5, 3-14
- GLEADOW A.J.W. & LOVERING J.F. (1977)
Geometry factor for external track detectors in fission-track dating.
Nuclear Track Detection, 1, 99-106
- HURFORD A.J. & Green P.F. (1981)
A reappraisal of neutron dosimetry and uranium-238 λ_f values in
fission-track dating
Nuclear Tracks, 5, 53-61
- HURFORD A.J. & GREEN P.F. (1982)
A user's guide to fission-track dating calibration.
Earth Planet Sci. Letters, 59, 343-354
- JOHNSON N.M., MCGEE V.E. & NAESER C.W. (1979)
A practical method of estimating standard error of age in the
fission track dating method
Nucl. Tracks, 3, 93-99
- MONNIN M. (1975)
Track Processes
Radiation Damage Processes in Materials, Nato Advanced Study
Institute Series, Series E, n^o 8, Noordhoff, Leyden, 361-388
- NAESER C.W. (1979)
Fission-track dating
Lectures in Isotope Geology, Springer-Verlag, Berlin, 154

- NAESER C.W., IZETT G.A. et OBRADOVITCH J.D. (1980)
Fission-track and K-Ar ages of Natural glasses
United States Geological Survey, Bulletin 1498, 31 p.
- NAESER C.W., ZIMMERMANN R.A. & CEBULA G.T. (1981)
Fission-track dating of apatite and zircon: an interlaboratory comparison
Nuclear Tracks, 5, 65-72
- POUPEAU G. (1979)
Datations par traces de fission de l'uranium: principes et applications aux problèmes du quaternaire
Bull. Assoc. Fr. Quaternaire, n° 58-59, 15-26
- POUPEAU G. (1981)
Precision, accuracy and meaning of fission-track ages.
Proc. Indian Acad. Sci., Earth Planet. Sci., 90, 403-436
- POUPEAU G. et ZULETA E. (1984a)
Les datations par traces de fission en archéologie. 2. Caractérisation et datation des obsidiennes.
Ce séminaire
- POUPEAU G. et ZULETA E. (1984b)
Les datations par traces de fission (TF) en archéologie. 3. Téphrochronologie et datation des hominidés
Ce séminaire
- PRICE P.B. & WALKER R.M. (1963)
Fossil tracks of charged particles in micas and the age of minerals
J. Geophys. Res., 68, 4847-4862
- STORZER D. & WAGNER G.A. (1969)
Correction of thermally lowered fission-track ages of tektites
Earth Planet. Sci. Letters, 5, 463-468
- STORZER D. et POUPEAU G. (1973)
Ages-plateaux de minéraux et verres par la méthode des traces de fission.
C. R. Acad. Sci. Paris, 276D, 137-139
- SUZUKI M. (1973)
Chronology of Prehistoric Human Activity in Kanto, Japan.
J. Fac. Sci., Univ. Tokyo, section V, vol.IV, part 3, 241-318
- WAGNER G.A. (1978)
Archaeological applications of fission-track dating.
Nuclear Track Detection, 2, 51-64.