

## RADIOCARBONE - I

# LA MESURE DES AGES PAR LE RADIOCARBONE

(2<sup>ème</sup> partie)

## 5 OPERATIONS A EFFECTUER POUR DATER UN ECHANTILLON

Les échantillons à dater sont d'abord débarrassés par voies physique et chimique des impuretés qu'ils contiennent. Le carbone en est ensuite extrait par combustion, puis déposé sous forme solide ou introduit par synthèse dans un gaz ou un liquide destiné au détecteur de radiations. Après synthèse, ce gaz ou ce liquide doivent généralement être encore soigneusement purifiés.

L'installation de mesure comporte un détecteur (compteur Geiger-Müller, compteur proportionnel ou scintillateur), un château de plomb destiné à réduire le mouvement propre du détecteur et un appareillage électronique de comptage.

Pour dater un échantillon, **trois mesures** successives sont nécessaires :

- **Mesure du mouvement propre du détecteur**, effectuée sur un échantillon de carbone fossile.
- **Mesure de l'activité du carbone récent**, réalisée sur un échantillon de bois, ou mieux sur l'échantillon standard international.
- **Mesure de l'activité de l'échantillon à dater.**

Chaque mesure prend de **12 à 48 h** suivant les caractéristiques de l'installation. L'âge de l'échantillon est ensuite calculé à partir des résultats de ces mesures.

## 6 CALCUL DE L'AGE D'UN ECHANTILLON

*Notations :*

D	demi-vie du C <sub>14</sub>
T	âge de l'échantillon
T <sup>max</sup>	âge maximum mesurable par une installation
M	mouvement propre de l'installation, en cpm
n <sub>0</sub>	activité d'un échantillon de carbone récent, en cpm
n	activité de l'échantillon étudié, en cpm
t <sub>m</sub>	durée de la mesure du mouvement propre
t <sub>0</sub>	durée de la mesure de l'échantillon de carbone récent
t <sub>n</sub>	durée de la mesure de l'échantillon

M	nombre de coups comptés en un temps $t_m$ ( $M = mt_m$ )
$N_o$	$n_o t_o$
N	$nt_n$
$\sigma$	déviatoin standard : $\sigma_N = \sqrt{N}$ (distribution de Poisson)

## 6.1 Relations fondamentales.

L'activité du  $C_{14}$  décroît suivant une loi exponentielle de la forme :

$$A = A_o e^{-\lambda T}$$

ou

$$A = A_o 2^{-\frac{T}{D}}$$

où la constante radioactive est liée à la demi-vie D du  $C_{14}$  par la relation :

$$\lambda = \frac{\log 2}{D}$$

En mesurant successivement, dans les mêmes conditions, l'activité de l'échantillon à étudier et l'activité d'un échantillon du même poids de carbone récent, on peut écrire :

$$T = \frac{D}{\log 2} \log \frac{n_o}{n}$$

ou

$$T = \frac{D}{\log 2} \log \frac{N_o}{N}$$

en supposant

$$t_o = t_n$$

## 6.2 Influence du mouvement propre du détecteur.

L'activité du carbone récent dans une bonne installation de mesure peut être de l'ordre de 10 cpm par gramme d'échantillon et le mouvement propre de 1 à 2 cpm. Dans une telle installation, un échantillon vieux de plus de 16.500 ans (3 fois la demi-vie) aura donc une activité égale ou inférieure au bruit de fond, un échantillon de 33.000 ans, une activité 10 fois inférieure au bruit de fond.

Comme l'activité N de l'échantillon en un temps t est mesurée en même temps que le mouvement propre M, N est obtenu par différence entre (N+M) et M.

On démontre que la déviation standard  $\sigma_N$  relative à la différence est donnée par la relation :

$$\sigma_N = \sqrt{(\sigma_{N+M})^2 + \sigma_M^2}$$

ou bien

$$\sigma_N = \sqrt{(M + N) + M}$$

et puisqu'en général  $N \ll M$

il vient

$$\sigma_N = \sqrt{2M}$$

qui est donc la déviation standard.

On considère en général que l'activité minimum mesurable pour obtenir un âge suffisamment précis est égale à 3 ou 4 fois cette déviation standard :

$$N_{\min} = k\sqrt{2M}$$

$$k = 3 \text{ ou } 4$$

L'âge maximum mesurable qui y correspond est donc :

$$T_{\max} = \frac{D}{\log 2} \log \frac{N_o}{k\sqrt{2M}}$$

$$T_{\max} = \frac{D}{\log 2} \log \frac{n_o \sqrt{\frac{t_o^2}{t_m}}}{k\sqrt{2m}}$$

avec

$$t = t_m = t_o = t_n$$

On voit que pour accroître l'âge maximum mesurable, d'une durée égale à une demi-vie  $D = 5.568$  ans, il faut soit doubler le signal du carbone moderne soit réduire le bruit de fond au quart soit multiplier les temps de mesure par quatre.

Dans un laboratoire effectuant de nombreuses mesures, le temps de mesure ne

peut normalement **pas dépasser 48 heures**. L'âge maximum susceptible d'être déterminé et la précision des mesures dépendront donc uniquement du rapport du détecteur.

L'amélioration de ce rapport est cependant limitée en pratique. En effet,  $n_0$  est proportionnel au poids de carbone introduit dans le détecteur. En général, la quantité d'échantillon dont on dispose est faible (quelques grammes) ce qui limite l'accroissement de  $n_0$ .

D'autre part, le mouvement propre est difficilement réductible, une fois prises les précautions classiques destinées à le réduire.

Pour ces raisons, l'**âge maximum mesurable** à l'aide d'un **compteur proportionnel** variera de **30.000 à 45.000 ans**, suivant la qualité de l'installation et le **poids de l'échantillon mesuré (1 à 13 gr)**. Le **système à scintillation** permettra, en utilisant un échantillon beaucoup plus important (**67 gr**) de porter l'**âge maximum à 53.000 ans**. Les limites de ces deux systèmes ne semblent plus pouvoir être notablement reculées.

## **7 PREPARATION DE L'ECHANTILLON**

Il est essentiel, pour déduire un âge valable de l'activité d'un échantillon, de s'assurer que le carbone qu'il contient aujourd'hui est bien celui qu'il contenait au moment où il a quitté le cycle du carbone atmosphérique.

On sait, en effet, que des échanges d'atomes de même nom peuvent se faire entre deux corps en contact. Un tel échange peut avoir lieu, par exemple, entre des coquillages et l'eau qui les entoure. Il peut également arriver que des acides humiques récents, s'infiltrant dans un terrain, viennent se déposer dans un échantillon végétal ancien. De telles modifications, introduisant du carbone récent dans l'échantillon, diminuent son âge apparent.

On a pu constater que les échanges atomiques sont moins probables dans les matières organiques et plus généralement dans les structures moléculaires lourdes que dans les molécules inorganiques.

Pour cette raison, **LIBBY** <sup>(1)</sup> classe les échantillons, au point de vue de la validité des informations qu'ils fournissent, selon leur origine :

- charbon de bois ou matières carbonisées ;
- bois bien conservé ;
- herbes, textiles ;
- cornes ou andouillers bien conservés ;
- coquillages bien conservés.

Les os non carbonisés sont toujours susceptibles d'altération.

---

<sup>1</sup> W.F. Libby, *Radiocarbon Dating*, second edition (1955), Univ. of Chicago Press.

Les conditions naturelles dans lesquelles un échantillon est prélevé sont donc toujours soigneusement notées afin d'estimer ses possibilités d'altération. De plus, avant d'extraire, par combustion, le carbone qu'il contient, l'échantillon est nettoyé, à la main, de ses impuretés (par exemple, radicales), traité à l'acide chlorhydrique, s'il est susceptible de contenir des dépôts de carbonates, ou à la soude, notamment quand il s'agit de charbon de bois, si des acides humiques récents peuvent s'y être infiltrés.

A partir de l'oxyde de carbone obtenu par combustion, l'échantillon est transformé chimiquement dans la forme requise par le mode de détection choisi : carbone solide, oxyde de carbone purifié, acétylène, méthanol, etc.

## 8 MOUVEMENT PROPRE DU DETECTEUR

Il serait aisé de déterminer les très faibles activités d'échantillons de carbone de grand âge, si celles-ci n'étaient pas masquées par le **mouvement propre** inévitable **du détecteur** de radiations.

Ce **mouvement propre** est dû aux **radiations parasites** provenant de trois sources :

- les radiations gamma émises par les matériaux (béton, bois, ...) entourant le détecteur et provoquant dans les parois de celui-ci l'éjection d'électrons secondaires ;
- les rayons cosmiques ;
- les impuretés radioactives se trouvant dans les matières utilisées pour la construction du détecteur lui-même.

Pour réduire le mouvement propre à un minimum, on agit par différents moyens sur chacune de ces trois causes.

Le rayonnement gamma peut être aisément éliminé en entourant le détecteur d'une protection de masse suffisante. L'intensité d'un faisceau de rayons gamma d'une énergie de 2 MeV est réduite de moitié par une épaisseur de plomb de 1,4 cm ou une épaisseur équivalente de fer de 2,8 cm. Une épaisseur de plomb de 10 cm autour du détecteur réduira au 100<sup>e</sup> l'effet des gammas provenant des matières entourant l'installation. Il n'est donc pas utile d'accroître la protection au-delà de cette épaisseur.

On a pu d'ailleurs constater que l'accroissement de la protection au-delà de cette épaisseur ne réduisait plus exponentiellement l'effet des radiations gamma. En effet, d'une part la contamination inévitable des matériaux de protection eux-mêmes et d'autre part l'action des rayons cosmiques très pénétrants font apparaître autant de gamma que cette protection supplémentaire en supprime <sup>(2)</sup>.

Les rayons cosmiques constituent la deuxième cause du mouvement propre du détecteur. Leur effet peut être considérablement réduit en entourant entièrement celui-ci

---

<sup>2</sup> A. Diethorn, *A Methane proportional counter system for natural radio-carbon measurements*, Carnegie Institut of Technology, Pittsburg, Penn. (1954).

d'un second système détecteur appelé ombrelle d'anticoïncidence. L'ombrelle la plus courante est constituée par un assemblage de tubes Geiger-Müller fonctionnant en parallèle. Les mésons, très ionisant, actionnent, en même temps, en les traversant, un compteur Geiger-Müller et le détecteur. Un dispositif électronique empêche le comptage des impulsions qui apparaissent à la sortie du détecteur lorsqu'une impulsion apparaît au même instant dans l'ombrelle.

Le rayonnement cosmique contient de plus un flux important de neutrons qui peuvent passer sans effet au travers de l'ombrelle et provoquer des impulsions dans le détecteur par interaction sur les matières de celui-ci <sup>(3)</sup>.

Une couche de 16 cm de paraffine au bore ralentit et absorbe presque entièrement le flux de neutrons. Cependant, les neutrons eux-mêmes sont produits par action des particules de haute énergie sur la matière. Pour éviter autant que possible que ces particules ne provoquent l'apparition des neutrons au-delà de la couche de paraffine, celle-ci est surmontée d'une nouvelle couche de 5 à 10 cm de plomb. Comme le faisceau des particules de haute énergie est presque entièrement concentré dans un angle de 30° autour de la verticale, il suffit heureusement de placer la couche de paraffine et la deuxième couche de plomb au-dessus du détecteur. Une protection ainsi conçue pèse environ 2 tonnes (fig.5).

Le prix du château de plomb constitue une partie importante du coût total d'une installation de datage. Le choix du détecteur doit donc être fait en tenant compte de la protection nécessaire pour réduire le mouvement propre au niveau désiré.

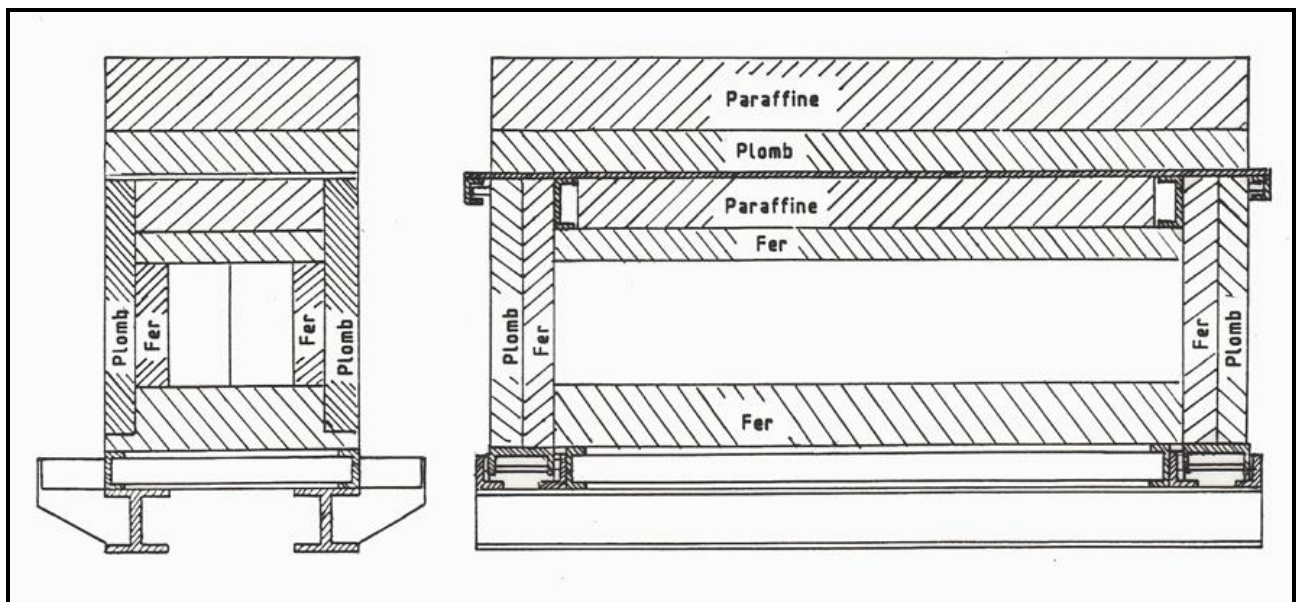


Fig. 5 – Principe d'un château de plomb (M.B.L.E.)

<sup>3</sup> H.E. de Vries, *Nuclear Physics*, Vol. 3, 65 (1957).

La troisième composante du mouvement propre est due à la contamination des matières utilisées pour la fabrication du détecteur. L'aluminium et le plomb, contenant des traces de produits de la famille de l'uranium, sont à proscrire. Les matériaux les plus intéressants sont les matières plastiques, le cuivre électrolytique et l'acier <sup>(4)</sup>. Le seul moyen sûr de contrôler la qualité des matériaux choisis est de fabriquer le détecteur et d'en étudier le mouvement propre.

Signalons également l'influence du dépôt, sur les parois extérieures du détecteur, de descendants radioactifs du radon et du thoron atmosphériques. Ce dépôt peut être très important si le détecteur est un compteur proportionnel dont la paroi extérieure est à un potentiel négatif.

Le tableau suivant donne le mouvement propre de différentes installations. Toutes les précautions mentionnées ici étant utilisées dans chacune d'elles, on peut considérer que les différences entre les mouvements propres de ces installations sont dues à la conception des détecteurs.

	Volume du compteur (litres)	Pression compteur (atmosph.)	Gr. de carbone	Carbone moderne cpm	Mouvement propre cpm	Efficac. comptage %	Age maximum 3 $\sigma$ , 48 h.
Compteur Geiger-Müller Carbone solide Libby			8	6,7	4,0	5	30.000
Compteur proportionnel CO <sub>2</sub> Groeningen		3		14,6	0,9		
Fergusson	8	3	13	103	14		47.000
Brannon	0,7	10	6	45	13	87	41.000
CH <sub>4</sub> Diethorm	1	5	2,5	30,6	10	75	34.000
Crèvecoeur	0,6	3	0,95	8,2	7,8	56	30.000
C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> Suess	1	1	1	10,7	2,3	65	36.000
Crathorn	3	1	3	39	16	85	39.000
Oeschger et M.B.L.E.	1,5	0,95	1,5	15,5	0,9	65	43.000
Scintillation	Volume de cellule						
Pringle (méthanol dans toluène)	20 cc. (1 PM)		1,9	14,2	6,2	49	34.500
Hayes (cymène de terpène)	90 cc. (2 PM)		67	470	60	45	53.000
Audric (acétylène dans toluène)	80 cc. (2 PM)		7	45	40	41	36.000

**Principales caractéristiques de différents types de détecteurs et âge maximum qu'ils permettent de mesurer**

(A suivre, « *Détecteurs...* »)

<sup>4</sup> H.E. de Vries, *Nuclear Physics*, Vol. 1, 477 (1956).