

Une application originale de la radioactivité :

LA METHODE DE DATATION PAR LE RADIOCARBONE

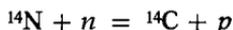
par J. EVIN,

Université Claude-Bernard, Villeurbanne.

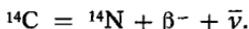
I. Découverte du radiocarbone : La radioactivité artificielle à la recherche de la radioactivité naturelle.

La radioactivité de certains éléments de la nature est maintenant bien connue et facilement mesurable : ainsi en est-il de la plupart des éléments de la famille de l'Uranium dont les teneurs dans les roches sont évaluées en prospection par les célèbres compteurs Geiger-Muller portatifs. Mais certaines autres radioactivités naturelles sont si faibles que, non seulement elles ne sont pas mesurables directement sur le terrain, mais que leur existence même n'a pu être que supposée par un calcul théorique, et vérifiée par l'utilisation de la radioactivité artificielle ; ainsi en est-il du radiocarbone ou carbone 14.

Dès 1936, des physiciens avaient calculé la possibilité de formation d'un atome de ^{14}C par l'action d'un neutron thermique sur un atome d'azote suivant la réaction nucléaire :



mais le caractère instable de cet élément et la longueur de sa période, conditions pour qu'il soit présent dans la nature, ne pouvaient être déterminés que si une quantité suffisante pouvait en être produite. C'est ce qui fut plus tard réalisé en irradiant un composé chimique azoté par un flux de neutrons lents. Il fut bien alors détecté une importante proportion de l'élément ^{14}C recherché et l'on a pu évaluer sa période : environ 5 500 ans. Il se désintègre pour redonner l'azote par la réaction nucléaire :



Ainsi l'utilisation de la radioactivité artificielle a pu poser les jalons essentiels à la mise au point de la méthode de datation par le radiocarbone naturel.

C'est le physicien LIBBY qui, autour des années 1942-1945, connaissant l'existence possible de l'isotope, sachant la quantité de flux cosmique générateur de neutron dans la haute atmosphère et évaluant la masse totale de carbone présent dans la bio-

sphère et les eaux des océans, calcula la teneur en isotope ^{14}C des matières carbonées en échange avec le gaz carbonique de l'atmosphère. Dans les années qui suivirent, LIBBY, aidé par ANDERSON à Chicago et, indépendamment, DE VRIES à Groningue, mirent au point des détecteurs assez sensibles pour mesurer cette très basse radioactivité naturelle. La méthode ne fut établie véritablement comme une méthode de datation que lorsque de nombreuses mesures sur des échantillons d'âge varié (historiquement datés ou non) démontrèrent que la teneur en Carbone 14 des échantillons fossilisés diminuait bien uniquement en fonction du temps.

II. Principe de la méthode : Une très faible radioactivité partout répandue.

Le principe de la méthode de datation par le carbone 14 est donc assez simple et repose sur le cycle naturel de cet isotope qui peut ainsi se résumer (fig. 1) : dans la haute atmosphère se

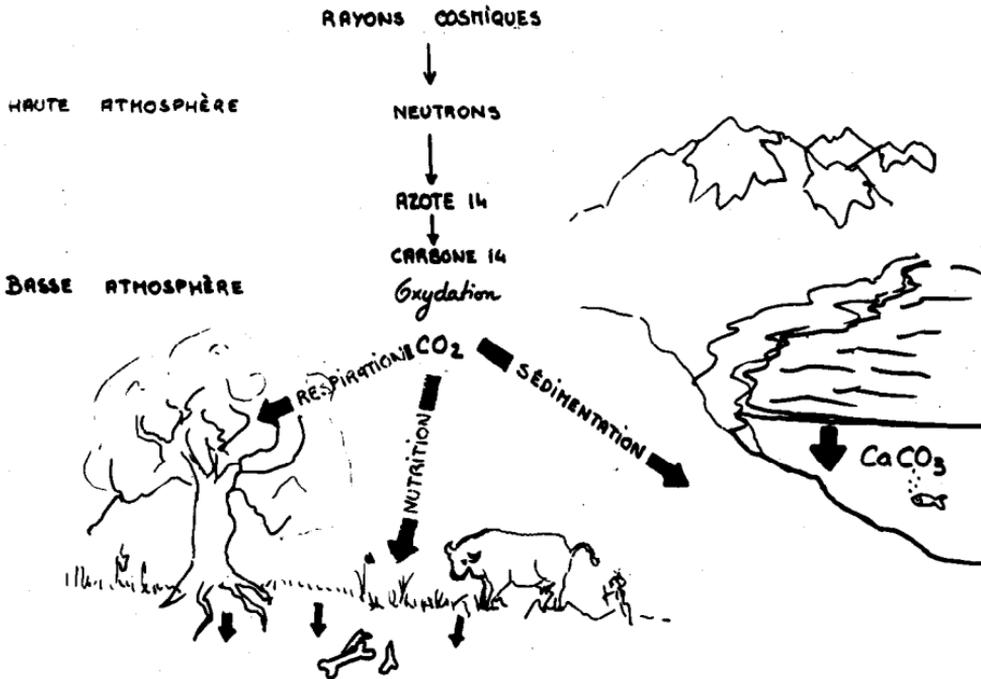


Fig. 1. — Le cycle du carbone 14.

forme du radiocarbone en quantité presque constante par l'action du rayonnement cosmique sur l'azote. Ce carbone 14 nouvellement formé se répartit très uniformément dans tout le dioxyde de

carbone contenu dans l'atmosphère et le bicarbonate de calcium dissout dans les eaux des océans. Tous les composés carbonés, en échange plus ou moins direct avec l'atmosphère ou l'eau de la mer, sont donc marqués d'une très faible teneur en radiocarbone, teneur qui demeure constante tant que l'échange se poursuit. Mais si la mort biologique ou la précipitation chimique arrête l'échange, c'est-à-dire coupe la source de renouvellement en carbone 14, la teneur en cet isotope des matières carbonées ainsi fossilisées diminue suivant sa période c'est-à-dire qu'elle baisse de moitié après chaque 5 710 années. Dater un fossile carbone sera donc possible si l'on peut mesurer sa quantité résiduelle en radiocarbone et la comparer avec celle qu'il avait lors de sa formation.

On peut ainsi déterminer l'âge d'une très grande variété de matériaux puisque le carbone est l'un des éléments les plus répandus dans la nature. Chacun sait que l'on date ainsi les charbons de bois des foyers préhistoriques ou les bois des « cités lacustres ». On sait moins que les meilleures datations sont souvent obtenues par les mesures faites sur le collagène extrait des ossements fossiles. De nombreux matériaux calcaires peuvent parfois être mesurés, mais comme on connaît souvent mal leur teneur originelle en radiocarbone, le calcul exact de leur âge est souvent difficile ; cependant, dans certaines études géologiques nécessitant moins de précision, on date les coquilles de mollusques terrestres lacustres ou marins, les tufs calcaires continentaux ou les boues marines. Enfin, on évalue très approximativement les âges des eaux fossiles ce qui, dans les pays arides, permet de calculer les réserves disponibles des nappes aquifères de grande profondeur.

Ainsi les domaines d'application de la méthode sont devenus maintenant très nombreux : en premier lieu, bien sûr, toute la préhistoire des 30 ou 50 derniers millénaires : c'est-à-dire depuis l'apparition de l'Homo sapiens sapiens, au moment de l'extinction de l'Homo sapiens neanderthalis. En second lieu, les toutes dernières périodes de la fin des temps glaciaires : c'est-à-dire le dernier maximum glaciaire avec ses diverses phases de retrait et l'interglaciaire dans lequel nous sommes depuis quelque 10 millénaires. Le radiocarbone est aussi impliqué dans de nombreuses études géophysiques dont les conséquences sur la vie économique sont essentielles : par exemple la constance du flux cosmique, la répartition des grands courants océaniques, leur comportement durant les 40 derniers millénaires, la vitesse de formation des sédiments de grand fond, l'âge des principales phases volcaniques de diverses régions, la périodicité des phases de dessèchement ou d'humidité relative des zones semi-arides, etc. On envisage enfin quelques applications industrielles comme par exemple le contrôle des matières premières de produits manu-

facturés : si l'origine de leurs ingrédients est naturelle, leur radioactivité ^{14}C sera proche de celle de l'atmosphère actuelle ; s'ils ont été fabriqués à partir de produits chimiques de synthèse, ils ne contiendront pas de radiocarbone puisque ceux-ci sont obtenus à partir de produits pétroliers.

III. Mise en œuvre de la méthode : Divers procédés de mesure pour détecter de très faibles concentrations en radiocarbone.

La datation par l'analyse du radiocarbone consiste à mesurer la teneur résiduelle en cet isotope dans un échantillon fossile et à la comparer à celle de l'atmosphère actuelle puisque l'on suppose que celle-ci est la même que celle qu'avait l'échantillon lorsqu'il était « vivant ». En fait, on ne compare pas avec la teneur en radiocarbone de l'atmosphère de l'année civile en cours parce que depuis l'ère industrielle, la combustion d'abondantes quantités de composés carbonés fossiles (charbon, pétrole et gaz naturel) a fait baisser artificiellement la teneur en radiocarbone du gaz carbonique de l'atmosphère ; de plus, les expériences de bombes thermonucléaires effectuées au début des années 60 a fortement perturbé le cycle du radiocarbone en doublant localement sa production.

Deux procédures d'analyse sont théoriquement possibles pour mesurer la quantité de carbone 14 contenue dans un échantillon. Ou bien on isole physiquement les atomes ^{14}C par spectrométrie de masse à partir de toutes les autres atomes ou molécules de masse 14 (azote ou composés hydrogénés de ^{12}C ou ^{13}C) : c'est la technique dite des accélérateurs qui est actuellement en cours de mise au point ; ou bien, on mesure directement la radioactivité ^{14}C des échantillons en introduisant leur carbone dans des détecteurs à très bas bruit de fond : ce sont les techniques des compteurs proportionnels et des détecteurs à scintillation liquide qui sont pour l'instant les seules utilisées en comptage de routine.

La préparation au laboratoire consiste d'abord à éliminer toutes les molécules carbonées d'origine secondaire contenues dans l'échantillon (matières humiques, carbonates de substitution, radicales ou poussières diverses). L'échantillon ainsi nettoyé est ensuite brûlé ou attaqué à l'acide s'il s'agit de carbonate. Le gaz carbonique obtenu peut, après purification, ou bien être introduit directement dans un compteur proportionnel utilisant ce gaz comme gaz de comptage, ou bien, être transformé en méthane ou acétylène et introduit dans un autre type de compteur proportionnel réglé pour ces gaz de comptage (fig. 2).

Mais de nos jours, plus de la moitié des laboratoires ont abandonné cette technique pour utiliser la détection en scintil-

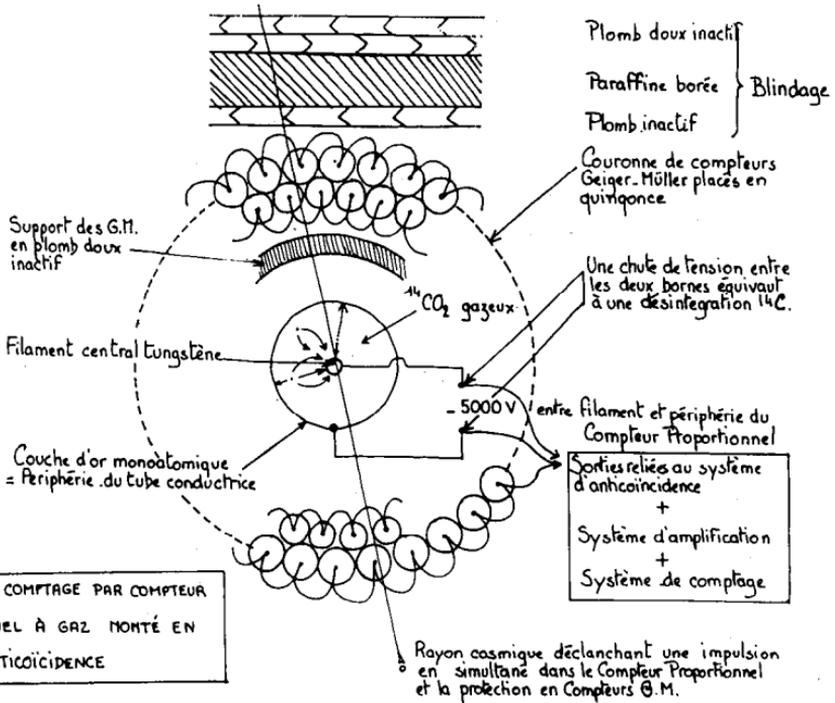


Fig. 2. — Appareillage de datation avec utilisation du compteur proportionnel.

lution liquide : le dioxyde de carbone est transformé successivement en carbure et en acétylène et finalement en benzène, forme sous laquelle il lui est additionné un mélange scintillant. L'échantillon est alors placé entre des cellules photoélectriques très sensibles qui comptent sa radioactivité (fig. 3).

Quelque soit le moyen de détection utilisé, la datation se fait en trois temps : on détermine d'abord le taux de radioactivité ou de rayonnement parasite que l'appareil détecte lorsqu'on introduit dedans un échantillon dépourvu de radiocarbone, préparé par exemple à partir d'anthraxite. On obtient le bruit de fond de l'appareillage, ce qui permet d'apprécier le taux de radioactivité détectable le plus bas ; ainsi la limite de détection des appareillages les plus courants correspond à environ 1 % de la teneur originelle en ^{14}C , ce qui fait une limite de mesure d'âge de 35 à 45 000 ans. On mesure ensuite un échantillon standard définissant la radioactivité de l'année 0 du calendrier ^{14}C ; c'est en fait un échantillon artificiellement marqué au radiocarbone à une concentration en ^{14}C telle qu'elle corresponde à celle qu'il y avait dans l'atmosphère avant l'ère industrielle, c'est-à-dire au

début du XIX^e siècle. On mesure enfin la radioactivité de l'échantillon d'âge inconnu et l'on fait le rapport de celle-ci à celle du standard, une fois défalqué le bruit de fond. On peut alors calculer l'âge à partir de la classique formule :

$$t = -\frac{T}{0,693} \text{Ln} \frac{\text{Aech} - \text{Bdf}}{\text{Astand} - \text{Bdf}}$$

où t est l'âge, T la période du ^{14}C , Aech et Astand les activités mesurées de l'échantillon et du standard actuel, et Bdf le bruit de fond de l'appareillage.

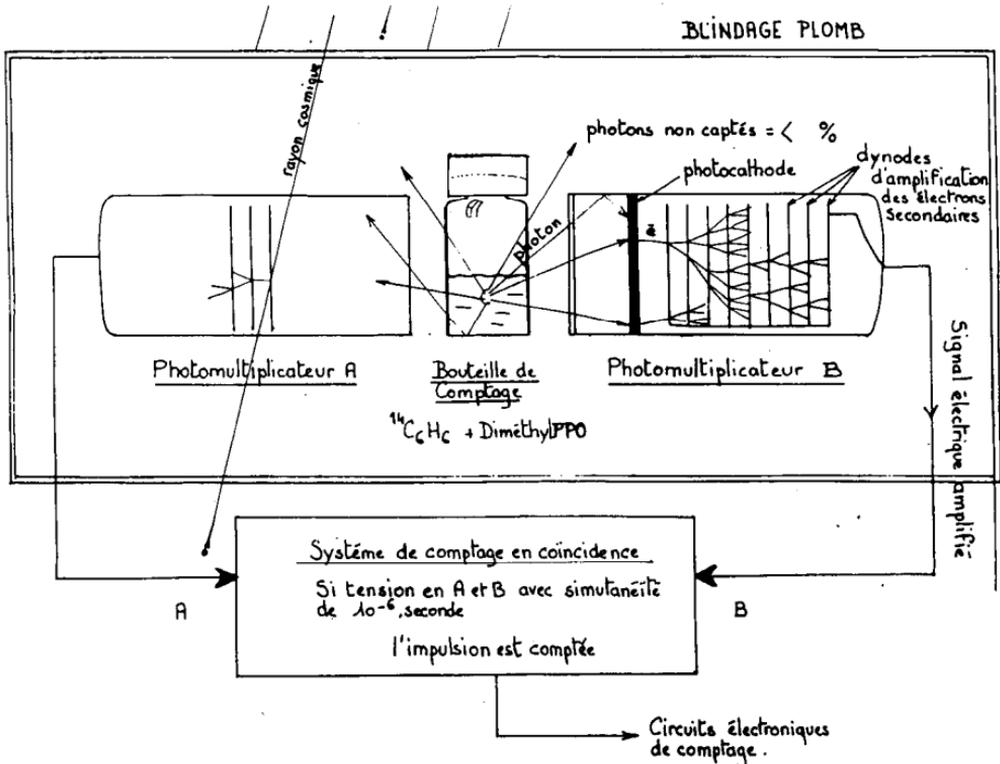


Fig. 3. — Appareillage de datation avec utilisation du compteur à scintillation liquide.

Il est bien évident que toutes ces mesures étant celles de phénomènes aléatoires, on doit tenir compte dans le résultat des erreurs statistiques et des imprécisions faites à tous les stades de la préparation : chaque résultat est donc affecté d'une marge d'incertitude en plus ou moins que l'on a basée sur le critère d'une seule déviation standard. Pratiquement, dans la plupart

des laboratoires, les analyses sont ainsi faites, à $\pm 1\%$ à condition que la quantité d'échantillon disponible ait été de l'ordre de 1 à 3 grammes après le prétraitement. Cette dernière condition implique que l'on doive parfois partir d'un poids d'échantillon considérable : s'il suffit en général de 5 à 6 grammes de charbon de bois ou de 10 grammes de bois, on doit par contre parfois traiter jusqu'à un kilogramme d'ossements ou 50 à 100 litres d'eau.

Cette très grande exigence de poids pour l'échantillon est sûrement l'une des principales limites pratiques d'application de la méthode avec le fait que les comptages sont nécessairement très longs : plusieurs jours par échantillon ; si bien que dans l'état actuel de la technique de mesure, les datations radio-carbone ne peuvent être faites en grand nombre et nécessitent une rigoureuse sélection des échantillons. Ainsi, étant donné la longueur et le coût des opérations, on est encore loin d'avoir pu dater toutes les civilisations préhistoriques ou toutes les périodes climatiques récentes et de nombreuses études hydrogéologiques ont été arrêtées faute de moyens techniques ou financiers suffisants.

SCHEMA DE PRINCIPE D'UN SYSTEME
DE COMPTAGE ^{14}C PAR ACCÉLÉRATEUR

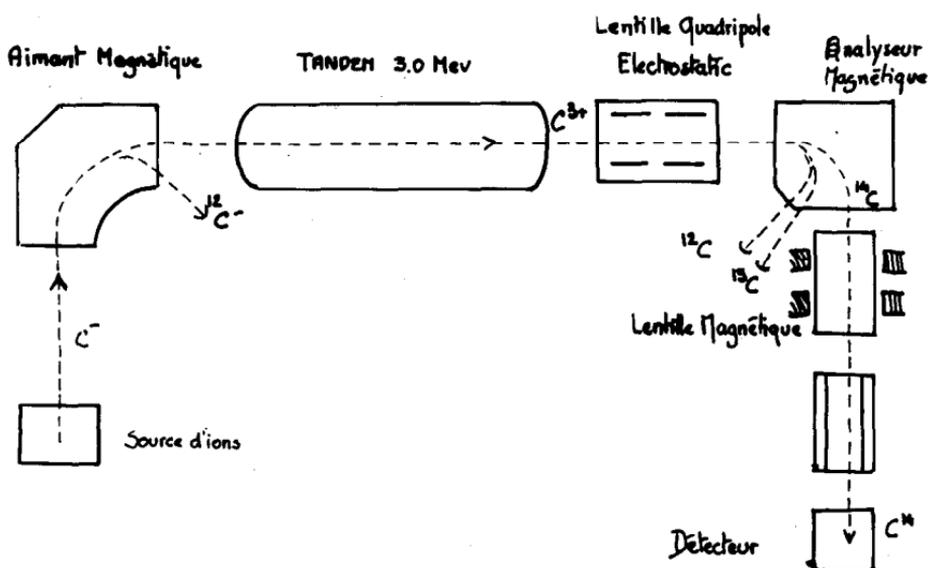


Fig. 4. — Nouvelle technique de datation utilisant un accélérateur et un spectromètre de masse.

Il existe cependant un sérieux espoir de réduire considérablement ces inconvénients quand la méthode dite « des accélérateurs » actuellement en cours de mise au point, viendra à être opérationnelle en routine. A l'opposé de la méthode actuelle qui compte quelques atomes de radiocarbone au moment de la désintégration pendant un temps nécessairement limité, la technique nouvelle consiste à mesurer tous les atomes de carbone 14 présents dans l'échantillon et qui ne se sont pas encore désintégrés. Ils sont évidemment infiniment plus nombreux que ceux qui se désintègrent même si l'échantillon est très vieux. Pour les isoler, on cherche d'abord à séparer tous les atomes ou molécules de masse 14, ^{14}C et ^{14}N principalement, et à éliminer ces derniers en formant des ions négatifs puisque les $^{14}\text{N}^-$ sont instables. Cette double opération est réalisée dans un accélérateur tandem d'un type spécial dénommé « tandétron » dont quelques prototypes sont en cours de montage en particulier un en France à Gif-sur-Yvette (fig. 4). Lorsque cette technique sera maîtrisée, on sera capable de mesurer quelques milligrammes de carbone en 1 heure ou 2, ce qui permettra l'accès à des applications nécessitant des analyses sur des échantillons beaucoup plus finement prélevés et qui, peut-être, reculera la limite des âges mesurables jusque vers 60 ou 70 000 ans.

IV. Utilisation du radiocarbone dans la recherche : Quelques exemples concrets dans divers domaines.

La découverte de la méthode du radiocarbone et la construction de nombreux laboratoires (il en existe actuellement 2 ou 3 par pays) dans les années 60, ont fait faire depuis, un bond considérable à toute la recherche tant en préhistoire qu'en géologie du quaternaire. Il est possible, pour illustrer cela, de citer quelques exemples pris en divers domaines : en protohistoire, l'un des dogmes qui semblait le mieux établi était l'antériorité du Proche-Orient pour toutes les importantes innovations techniques qui ont marqué les débuts du passage de l'humanité de la civilisation des chasseurs cueilleurs à celle des agriculteurs et des citadins. On admettait un très large décalage de temps, parfois de plusieurs millénaires, pour l'apparition de nouvelles techniques entre le Proche-Orient et l'Europe Centrale. Les centaines de datations qui ont été effectuées ces dernières années à partir des produits de fouille depuis l'Iran, la Turquie jusqu'en Espagne ou en Grande-Bretagne, ont considérablement tempéré cette prépondérance et cette antériorité de l'Est sur l'Ouest : on s'est aperçu que les décalages chronologiques entre ces régions se réduisaient souvent à moins de quelques siècles, ce qui implique une bien plus grande mobilité des idées et des peuples qu'il ne l'était jusque-là supposé.

Dans le même ordre de chose, on a pu démontrer que des faciès culturels très précis de la préhistoire ancienne se retrou-

vaient parfois complètement contemporains bien que découverts dans des sites distants de plusieurs milliers de kilomètres. Ceci remet en cause l'habituel schéma des chasseurs paléolithiques vivant par tous petits groupes dans des aires géographiques limitées et sans intercommunication. Pour cette même époque, on a récemment pu dater l'une des premières œuvres d'art, une peinture effectuée sur la paroi d'une grotte dans les gorges de l'Ardèche. On avait retrouvé au pied de cette paroi les fragments d'une torche qu'avait sans doute utilisé l'artiste préhistorique pour s'éclairer, et la datation a montré que l'œuvre avait été exécutée environ 19 500 ans avant Jésus-Christ (fig. 5).

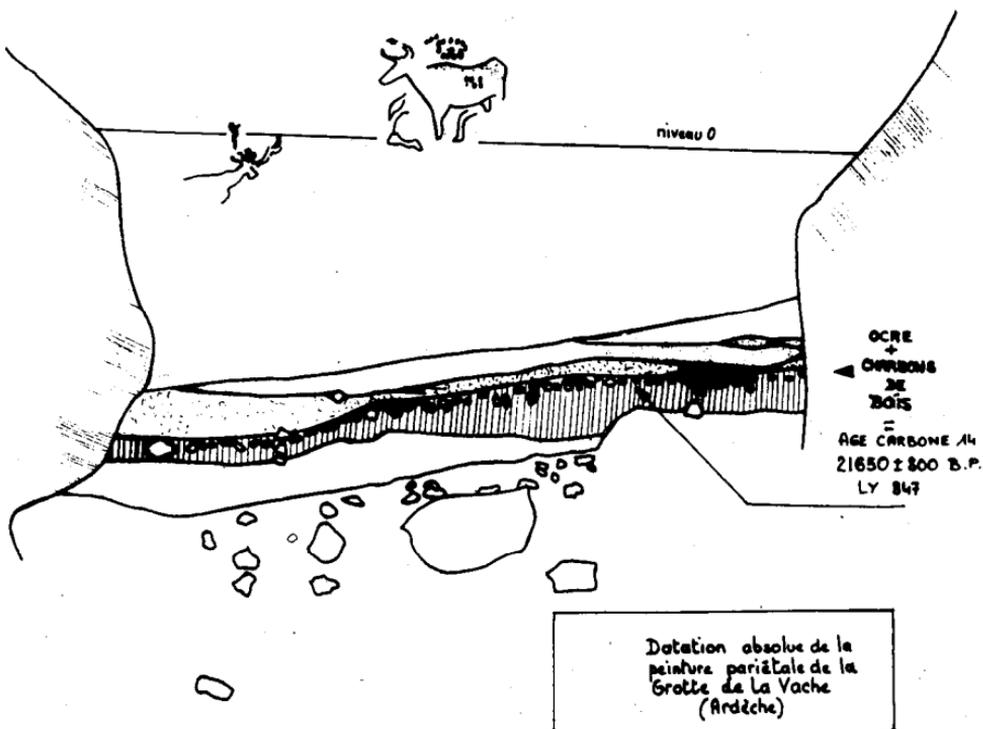


Fig. 5. — Un exemple typique d'utilisation de la datation par le carbone 14.

Il était jusqu'en 1950 bien supposé que certains des volcans de la chaîne des Puys étaient relativement récents. De très nombreuses mesures faites sur des bois récoltés sous les dernières émissions volcaniques ont montré que celles-ci s'étaient seulement produites il n'y a pas plus de 3 ou 4 000 ans, ce qui, à l'échelle

des temps géologiques, est tout à fait actuel, mais cela ne veut pas dire cependant qu'il y aura une imminente reprise du phénomène volcanique dans la région.

En hydrogéologie, on avait calculé par divers procédés la vitesse de déplacement des eaux fossiles dans certaines nappes profondes. Des chiffres très bas de moins de 1 mètre par an, impliquaient des centaines de milliers d'années dans des grands bassins sédimentaires entre les zones d'alimentation et les exutoires. Les mesures de radiocarbone sont venues confirmer et préciser ces hypothèses montrant ainsi que par exemple les puits artésiens du Jardin des Plantes à Paris, font ressurgir des eaux tombées en pluie en Lorraine, peut-être avant la dernière glaciation, il y a 120 000 ans.

CONCLUSION.

Qui aurait pu penser, il y a 50 ans, que la découverte de la radioactivité artificielle aurait des conséquences dans l'étude de questions aussi variées que celles évoquées par les quelques exemples précédents ? Et pourtant, de la simple observation d'une irradiation de neutrons sur de la matière azotée, on a pu déduire l'âge d'eaux fossiles et celui d'une des premières peintures. Qu'en sera-t-il lorsque l'affinement de la technique de mesure de la radioactivité ^{14}C naturelle permettra l'analyse de milligrammes de carbone ? Le champ d'application de la méthode du carbone 14 sera alors considérablement étendu et l'aspect sous lequel elle est actuellement le plus connue, à savoir la datation des événements préhistoriques ne sera peut-être que tout à fait accessoire et ceci d'autant plus que l'utilisation d'autres isotopes ou d'autres phénomènes physiques fournira des renseignements peut-être plus utiles aux préhistoriens. Mais pour l'instant, la méthode de datation par le radiocarbone reste l'une des plus belles applications de la radioactivité.
