

Chronomètres et traceurs isotopiques *

LA MESURE DU TEMPS

par J.-R. LANCELOT,
Professeur à Montpellier II.

« The terror with which men await the end of the world decides me to chronicle the years already passed, that thus one may know exactly how many have elapsed since the earth began ».

Saint Grégoire le Grand (540-604).

A) INTRODUCTION.

En Sciences de la Terre, en Biologie évolutive, en Astronomie, et en Astrophysique, le paramètre temps s'exprime couramment en millions ou en milliards d'années. Avant de parvenir à la démonstration de la réalité de tels chiffres, l'homme a toujours été fasciné par le temps, dont la progression rapproche tout être de sa destruction physique finale. Il n'est donc pas étonnant que les textes religieux anciens se soient fréquemment targués de pouvoir fournir une réponse à la question sur l'âge et l'origine du monde qui nous entoure. Rédigé par les hindous, treize siècles avant notre ère, le livre des Vedas indique que Dieu est créateur mais aussi destructeur de mondes innombrables et que la terre aurait été créée il y a près de 2 milliards d'années, plus exactement il y a 1 972 947 101 ans. La précision de l'estimation est plaisante mais l'évaluation est cependant d'une surprenante réalité par rapport aux croyances du monde antique occidental selon lesquelles l'âge de la Terre est de l'ordre de grandeur de l'âge de l'homme. La notion de temps en Sciences de la Terre, a été introduite par plusieurs horloges en particulier par l'horloge biologique constituée par l'évolution des espèces au cours du temps, évolution détectable à l'aide des fossiles (restes d'êtres vivants plus ou moins transformés), mais encore fallait-il attribuer une signification à ces fossiles !

La Science grecque les mentionne fréquemment, THALÈS, PYTHAGORE, HÉRODOTE, concluent à l'origine organique des fossiles, mais d'autres théories comme celle d'ARISTOTE viendront jeter la confusion sur ces premières conceptions scientifiques, ces théories reprises par les Romains, puis par les Arabes, alimenteront

(*) Texte de la conférence donnée par M. le Professeur J.-R. LANCELOT lors des Journées U.d.P. de Montpellier en novembre 1983.

pendant plusieurs siècles, la science du Moyen Age et de la Renaissance. Un autre courant de pensée attribuant aux fossiles une origine organique reprendra vigueur du XIII^e au XVIII^e siècle, malheureusement ce courant sera complètement dévié par la notion de déluge biblique, introduit par le christianisme. Pendant cette période, seuls quelques hommes, des plus brillants comme LÉONARD DE VINCI ou des plus humbles comme BERNARD PALISSY réfuteront (1) à la fois la génération spontanée des fossiles dans le sol et la notion de déluge. Il faudra attendre 1778, pour que la conception biblique du déluge soit abandonnée, par BUFFON qui écrit dans « Les Epoques de la Nature » : « Ces couches stratifiées résultent d'une sédimentation dans les eaux, qui s'est prolongée pendant des millénaires et non seulement pendant les 40 jours du déluge ». Les bases de la paléontologie stratigraphie seront alors jetées avec les travaux de BRONGNIART, CUVIER, D'ORBIGNY et LYELL, dans la même période naîtront les grandes théories évolutionnistes de LAMARCK et de DARWIN. Cependant jusqu'au début du XX^e siècle, on ne disposera que d'une *chronologie* relative par les fossiles. A l'époque de la découverte de la radioactivité, trois essais de datations absolues conduiront à des âges de plusieurs dizaines ou centaines de millions d'années.

Ainsi en 1893, READE, observant les taux de sédimentation calcule un âge de 600 Ma pour le début du Cambrien (fig. 1), il est vrai que GOODCHILD à la même époque obtiendra un âge de 700 Ma par la même méthode. Sur la base des données de géochronologie absolue, la limite Précambrien-Cambrien a été fixée récemment à 570 Ma (2), puis à 550 Ma, toutefois le bon accord avec les premières estimations faites à partir des taux de sédimentation s'est révélé être une coïncidence, cette méthode ayant révélé ses limites par la suite. JOLY en 1899 tentera de déterminer l'âge des océans, en estimant la quantité de sodium actuellement dissout et le taux d'apport de cet élément en provenance des continents. JOLY publiera un âge de 90 Ma en 1899, LIVINGSTON en 1963 en reprenant ce type de calcul mais en tenant compte des problèmes de recyclage atteindra un chiffre compris entre 1 300 et 2 500 Ma. La même année 1899, KELVIN calcule un âge de 20 Ma pour le refroidissement d'une terre initialement fondue en tenant compte du flux de chaleur observé à la surface de la terre. Par la suite, KELVIN proposera des âges plus anciens, atteignant 400 Ma en perfectionnant son premier modèle.

Actuellement nous savons que l'âge de formation de la Terre comme celui de l'ensemble du système solaire est de

(1) Ce qui vaudra à BERNARD PALISSY d'être embastillé comme huguenot, après avoir voulu défendre ses thèses à la Sorbonne.

(2) $\text{Ma} = 10^6$ ans ; $\text{Ga} = 10^9$ ans.

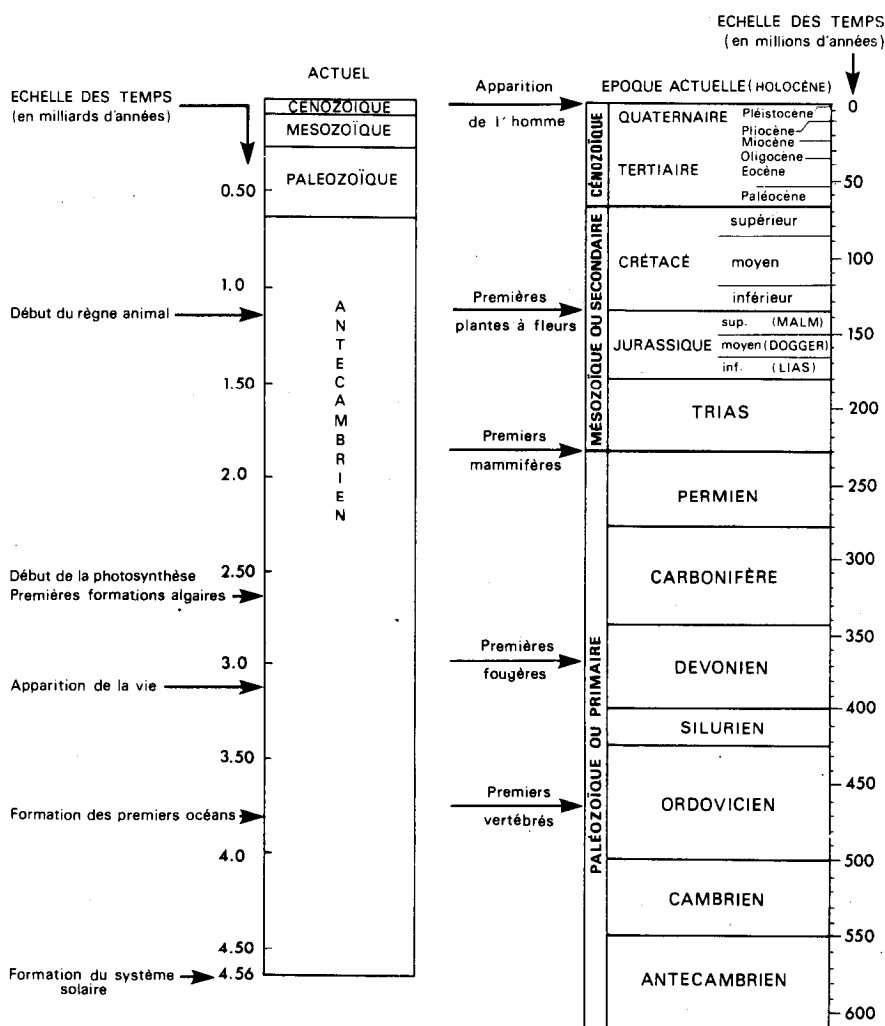


Fig. 1. — Echelle des temps et ses subdivisions stratigraphiques pour la Terre.

4,56 Ga (2) (fig. 1), ces résultats ont été obtenus à l'aide de chronomètres basés sur le phénomène de radioactivité naturelle. L'histoire de la Terre enregistrée dans les couches fossilifères ne représente que 12 % de l'histoire totale du globe, les temps antécambriens qui ne peuvent se caractériser par la présence de fossiles utilisables en stratigraphie, s'étalent en fait de 4,56 Ga

jusqu'à 550 Ma. L'étude de ces roches antécambriennes est fondamentale car rien ne prouve que les grands processus de différenciation de la Terre, observés actuellement ne soient perpétués immuablement dans le temps. On notera que les roches terrestres les plus anciennes datées à 3,8 Ga ont été trouvées au Groenland, aucun témoin de roches d'âge compris entre 4,56 et 3,8 Ga n'a encore été détecté sur terre ; mais les études isotopiques faites sur certaines roches volcaniques, et les fragments de roches de grande profondeur remontées par ces laves à la surface, impliquent que la Terre a le même âge de formation que la Lune et les météorites, mais présente une évolution ultérieure bien plus complexe.

Les traces des plus anciens océans datent de 3,8 Ga, la vie apparaîtra sur Terre, vers 3,1 Ga, le début de la photosynthèse et de la production d'oxygène débutera à 2,9 Ga (fig. 1).

Avant de rappeler les principes de base et décrire les techniques expérimentales permettant la datation absolue des roches et des minéraux, je voudrais enfin rappeler les progrès considérables réalisés dans ce domaine au cours de ces quinze dernières années, en microchimie analytique comme en spectrométrie de masse. L'impulsion a été donnée par la compétition engagée entre les laboratoires par :

- l'étude des météorites et des échantillons lunaires ramenés par les missions Apollo et Luna ;
- l'étude des roches draguées ou forées dans les fonds océaniques lors des campagnes D.S.D.P. (Deep Sea Drilling Project) et I.P.O.D. (International Project of Oceanic Drilling) ;
- le développement de l'industrie nucléaire qui utilise, pour les mesures isotopiques de U et Pu des spectromètres de masse de mêmes caractéristiques que ceux utilisés en géochimie isotopique.

B) PRINCIPES.

Après la découverte de la radioactivité par BECQUEREL en 1896 et les travaux de Pierre et Marie CURIE sur l'uranium, le thorium et le radium, de 1900 à 1902 de multiples expériences de CROOKES, BECQUEREL, RUTHERFORD et SODDY mettent en évidence la réalité du vieux rêve des alchimistes : la transformation d'un élément en un autre par la radioactivité. L'idée d'appliquer cette propriété à la mesure des temps géologiques apparaît dans une série de cours donnés en 1905 à l'Université de Yale par RUTHERFORD ; l'année suivante, il tentera les premières datations absolues sur 2 minéraux uranifères en mesurant les quantités d'uranium et d'hélium, des âges de l'ordre de 500 millions d'années

sont ainsi découverts et dès cette époque, RUTHERFORD fait remarquer qu'il s'agit d'âges minima en raison des pertes probables d'hélium. En 1905, BOLTWOOD propose que le plomb est le produit final stable de l'uranium, et dès 1907, BOLTWOOD publie des âges uranium-plomb allant de 412 à 2 200 millions d'années. Ces déterminations ont été réalisées avant que l'existence des isotopes soit démontrée en mesurant globalement les concentrations en uranium et en plomb pour en déduire un âge ; cette méthode dite « au plomb total » est encore pratiquée de nos jours par quelques rares chercheurs.

La comparaison des âges (exprimés en 10^6 ans) mesurés sur les mêmes minéraux en 1906 par BOLTWOOD et en 1965 par WETHERILL (en tenant compte des isotopes) montrent le degré d'incertitude des « âges au plomb total » :

1906	1965	
BOLTWOOD	WETHERILL et al.	
Plomb total	$^{238}\text{U} - ^{206}\text{Pb}$	$^{235}\text{U} - ^{207}\text{Pb}$
410	268	266
535	367	365
510	344	346 - 390

Quoiqu'il en soit, ces premières datations démontraient l'existence de roches et de minéraux dont les âges s'expriment en millions ou en milliards d'années ; cette découverte a ouvert un champ considérable de recherches fondamentales et appliquées qui se poursuivent activement à l'heure actuelle.

L'existence des isotopes a été proposée par CROOKES dès 1886, bien que le mot « isotope » soit apparu pour la première fois dans un article de SODDY en 1910. Il faudra attendre 1914 pour que THOMSON découvre l'existence des 2 isotopes du néon de masses 20 et 22 à l'aide du premier spectromètre de masse. Un de ses élèves, ASTON, après avoir amélioré l'optique du spectromètre de THOMSON démontre en 1920 l'existence d'un 3^e isotope du néon de masse 21. De 1920 à 1923, 70 isotopes de 29 éléments seront identifiés. C'est enfin en 1932 que CHADWICK découvrira le neutron, cette particule non chargée, de même masse que le proton, pouvant se trouver en nombre variable dans les noyaux des isotopes d'un même élément.

I. Rappels d'atomistique.

Les atomes d'un même élément présentent un nombre d'électrons égal à celui des protons se trouvant dans leur noyau, cette

caractéristique gouverne les mêmes propriétés chimiques de tous les atomes d'un élément. Ces atomes peuvent se différencier par le nombre de neutrons se trouvant dans leur noyau, autrement dit les divers isotopes d'un élément présenteront le même numéro atomique Z mais des nombres de masse A différents (Tableau 1).

Tableau 1 :

- Hydrogène	${}^1_1\text{H}$, ${}^2_1\text{H}$, ${}^3_1\text{H}^*$
- Oxygène	${}^{16}_8\text{O}$, ${}^{17}_8\text{O}$, ${}^{18}_8\text{O}$
- Potassium	${}^{39}_{19}\text{K}$, ${}^{40}_{19}\text{K}^*$, ${}^{41}_{19}\text{K}$
- Argon	${}^{36}_{18}\text{Ar}$, ${}^{38}_{18}\text{Ar}$, ${}^{40}_{18}\underline{\text{Ar}}$
- Rubidium	${}^{85}_{37}\text{Rb}$, ${}^{87}_{37}\text{Rb}^*$
- Strontium	${}^{84}_{38}\text{Sr}$, ${}^{86}_{38}\text{Sr}$, ${}^{87}_{38}\underline{\text{Sr}}$, ${}^{88}_{38}\text{Sr}$
- Uranium	${}^{235}_{92}\text{U}^*$, ${}^{238}_{92}\text{U}^*$
- Plomb	${}^{204}_{82}\text{Pb}$, ${}^{206}_{82}\underline{\text{Pb}}^*$, ${}^{207}_{82}\underline{\text{Pb}}^*$ et ${}^{208}_{82}\underline{\text{Pb}}^*$
- Thorium	${}^{232}_{90}\text{Th}^*$

X^* isotope radioactif,

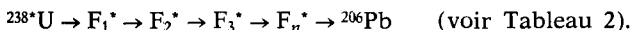
$\underline{Y}$ isotope radiogénique.

Certains isotopes possédant en général un numéro atomique élevé sont instables et se désintègrent naturellement en donnant un isotope fils dit radiogénique d'un autre élément. Cet isotope fils peut être stable, cas de la réaction ${}^{87}\text{Rb} \rightarrow {}^{87}\text{Sr}$ ou lui-même radioactif, sa désintégration donnera alors naissance à une chaîne de désintégration jusqu'à l'obtention d'un isotope fils radio-

Tableau 2 :
PRINCIPAUX COUPLES CHRONOMETRIQUES UTILISES
POUR LA DATATION ABSOLUE DES ROCHES ET DES MINERAUX

Mode de désintégration	P isotope père radioactif	F isotope fils radiogénique	constante de désintégration en an ⁻¹	T 1/2 période de demi vie en 10 ⁹ ans
Simple	⁸⁷ Rb	→ ⁸⁷ Sr	1.42 10 ⁻¹¹	48.81
Double	⁴⁰ K	→ ⁴⁰ Ar	0.585 10 ⁻¹⁰	11.85
		→ ⁴⁰ Ca	4.72 10 ⁻¹⁰	1.47
Chaîne	²³⁸ U	→ ²⁰⁶ Pb	0.155125 10 ⁻⁹	4.468
Chaîne	²³⁵ U	→ ²⁰⁷ Pb	0.98485 10 ⁻⁹	0.7038
Chaîne	²³² Th	→ ²⁰⁸ Pb	0.049475 10 ⁻⁹	14.01
Simple	¹⁴⁷ Sm	→ ¹⁴³ Nd	0.6539 10 ⁻¹¹	106
Simple	¹⁸⁷ Re	→ ¹⁸⁷ Os	1.52 10 ⁻¹¹	45.59
Simple	¹⁷⁷ Lu	→ ¹⁷⁷ Hf	1.98 10 ⁻¹¹	35.00

génique stable ; trois isotopes donnent naturellement naissance à de telles chaînes : ^{235}U , ^{238}U et ^{232}Th , dont les produits finaux stables sont respectivement ^{207}Pb , ^{206}Pb et ^{208}Pb par exemple :



La désintégration d'un atome père radioactif en un isotope fils radiogénique s'effectue en produisant des rayons α (noyau d'hélium ^4_2He), β^- (électron) et/ou γ (rayon électromagnétique). Le noyau peut ainsi capturer un électron de la couche K suivant la réaction $e^- + p \rightarrow n$. On remarque que de telles réactions de désintégration (Tableau 2) fournissent un isotope fils radiogénique dont le nombre de masse A et le numéro atomique Z sont proches de l'isotope père radioactif ; ceci n'est pas le cas de la fission naturelle, autre processus nucléaire au cours duquel un isotope lourd se scinde au moins en 2 isotopes de masses voisines.

II. La loi de désintégration radioactive.

Si un isotope radioactif P se désintègre en un isotope stable F radiogénique, le nombre d'atomes se désintégrant par unité de temps est proportionnel au nombre d'atomes présents, soit :

$$\frac{dP}{dt} = -\lambda P \quad (1)$$

λ représente la probabilité de désintégration d'un atome par unité de temps, et est appelée, constante de désintégration de l'isotope P. Cette constante n'est pas affectée (3) par les diverses variables thermodynamiques telles que la pression, la température, la fugacité en oxygène, etc. contrôlant l'évolution des roches et des minéraux au cours du temps, autrement dit les divers couples isotope père radioactif - isotope fils radiogénique sont autant de chronomètres potentiels (Tableau 2) permettant la datation absolue des roches et des minéraux. En intégrant l'équation (1), on obtient $P = P_0 e^{-\lambda t}$ en appelant P_0 la quantité initiale d'isotope père et P la quantité restante après que le temps t se soit écoulé. Comme la quantité d'isotope fils radiogénique F, produite est égale à $P_0 - P$,

$$F_r = P(e^{\lambda t} - 1). \quad (2)$$

Dans les « boîtes naturelles » (roches ou minéraux), une certaine quantité d'isotope fils F_0 peut se trouver présente à l'ins-

(3) Les constantes de désintégration ne sont pas affectées par les variations de l'environnement physique ou chimique car les quantités d'énergie impliquées dans les réactions nucléaires sont beaucoup plus grandes que celles impliquées au cours des réactions chimiques ou physiques naturelles.

tant initial dans la boîte en appelant F_m la quantité d'isotope fils mesurée à l'heure actuelle dans la boîte, on obtient :

$$F_m = F_o + F_r = F_o + P(e^{\lambda t} - 1). \quad (3)$$

Afin de visualiser la vitesse de désintégration d'un isotope radioactif, on définit classiquement sa période T (Tableau 2) comme étant le temps nécessaire à la désintégration de la moitié des atomes présents au départ, soit :

$$P = \frac{P_o}{2} = P_o e^{-\lambda t} \quad \text{d'où} \quad T = \frac{\text{Log } 2}{\lambda} = \frac{0,693}{\lambda} \quad (4)$$

III. Le problème du F_o chronomètre ou traceur ?

La présence ou l'absence d'isotopes fils à l'instant initial (F_o) va conditionner l'utilisation des couples chronométriques. Je prendrai pour exemple 3 minéraux : le zircon (ZrSiO_4), le feldspath potassique (KAlSi_3O_8) et l'apatite ($\text{Ca}_5(\text{F}, \text{Cl})(\text{PO}_4)_3$). Ces minéraux cristallisent très fréquemment au sein des liquides silicatés produits par la fusion partielle de roches préexistantes, lors par exemple de la formation des chaînes de montagne. Ces liquides silicatés contiennent donc une grande variété d'éléments et, entre autres, du plomb, de l'uranium et du thorium. Dans les roches formées lors de la cristallisation de ces liquides, le zircon et l'apatite se rencontrent communément sous forme de minéraux accessoires alors que le feldspath potassique apparaît en général en minéral majeur.

Lors de la cristallisation du zircon, les ions uranium U^{4+} ($r = 0,97 \text{ \AA}$) et thorium Th^{4+} ($r = 1,02 \text{ \AA}$) se substituent à l'ion zirconium Zr^{4+} ($r = 0,80 \text{ \AA}$) dont le réseau cristallin du zircon, ce qui n'est pas le cas de l'ion plomb Pb^{2+} ($r = 1,20 \text{ \AA}$). A l'instant initial, il n'y a donc pas de plomb dans la boîte « zircon » et le plomb qui sera détecté à l'heure actuelle dans une telle boîte ne sera composé que des 3 isotopes fils ^{206}Pb , ^{207}Pb , et ^{208}Pb issus respectivement de ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th . Le zircon constitue donc une « boîte riche » en isotope père radioactif pour laquelle $F_o \sim 0$ et donc $F_m = F_r = P(e^{\lambda t} - 1)$. Les systèmes U-Pb et Th-Pb de la boîte zircon sont donc théoriquement des chronomètres parfaits (fig. 2).

A l'inverse du zircon, lors de la cristallisation du feldspath potassique à partir du même liquide silicaté, l'ion plomb Pb^{2+} ($r = 1,20 \text{ \AA}$) se substitue à l'ion potassium K^+ ($r = 1,33 \text{ \AA}$) dans le réseau cristallin du feldspath alors que U^{4+} et Th^{4+} restent dans le liquide. A l'instant initial, il y a donc du plomb (F_o) et pas d'uranium et de thorium ($P_o = 0$) dans la boîte de feldspath, par conséquent il n'y aura pas production d'isotopes de plomb

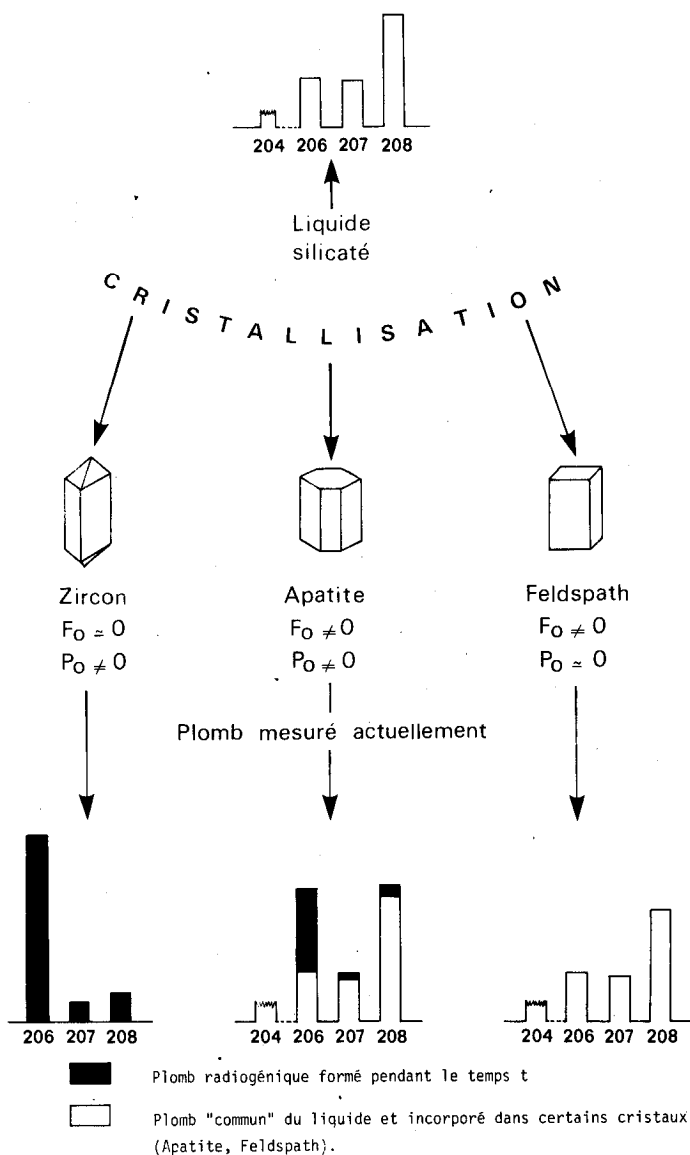


Fig. 2. — Variations des compositions isotopiques du plomb mesurées au temps présent dans 3 types de cristaux co-génétiques et synchrones, en fonction du taux d'incorporation de l'uranium et du plomb à l'époque de formation de ces cristaux.

radiogéniques pendant le temps t et le plomb détecté à l'heure actuelle dans le feldspath aura la composition isotopique en plomb du liquide qui a cristallisé il y a t millions d'années (fig. 2). L'information chronométrique sera perdue, par contre la composition isotopique en plomb du liquide ainsi détecté fournit de précieuses informations sur la nature des roches préexistantes ayant subi la fusion partielle. Les isotopes du plomb sont, dans ce cas, utilisés comme un traceur de l'origine des roches.

La plupart des minéraux, autres que le zircon et le feldspath, cristallisent à partir du même liquide silicaté auront des propriétés chimiques intermédiaires et incorporeront U^{4+} , Th^{4+} et Pb^{2+} dans des proportions variables, comme par exemple l'apatite.

Dans ce cas, qui est le plus général, l'équation (3) comporte 2 inconnues, la composition isotopique initiale du plomb (F_0) et t le temps écoulé depuis la cristallisation des minéraux. Il faut alors utiliser plusieurs boîtes (roches ou minéraux) cogénétiques et synchrones, afin de déterminer F_0 et t (fig. 2).

IV. Evolution en système clos ou en système ouvert.

L'utilisation d'un chronomètre pour une boîte, implique une évolution en système clos c'est-à-dire sans gain ni perte en isotopes pères ou isotopes fils au cours du temps t , autres que ceux dus à la radioactivité. Nous verrons que les boîtes naturelles n'évoluent pas toujours en système clos et que les événements thermiques ou tectoniques survenant après la cristallisation de la boîte peuvent induire une évolution en système ouvert qui se fait généralement par perte en isotopes fils radiogéniques ou gain en isotopes pères radioactifs, se traduisant par un rajeunissement artificiel des âges mesurés du fait de la diminution du rapport F_r/P égal à $(e^{\lambda t} - 1)$.

On peut donc penser que la datation absolue de roches anciennes se heurtera à des difficultés insurmontables, la probabilité d'enregistrement d'événements thermiques ou tectoniques par ces roches croissant en général avec leur âge. Les recherches systématiques de géochronologie absolue des vingt dernières années ont démontré que ces craintes n'étaient pas fondées, et que la diversité des chronomètres disponibles dans la palette du géochronologiste permet en fait de dater la quasi-totalité des roches et des minéraux se rencontrant communément à la surface du globe terrestre ainsi que les événements thermiques et tectoniques ayant affecté ces roches.

C) TECHNIQUES EXPERIMENTALES.

I. Les buts.

La composition isotopique des éléments constituant notre système solaire s'est établie suivant les lois de la nucléosynthèse,

processus qui s'est achevé il y a 4,56 milliards d'années. Depuis, les compositions isotopiques des éléments ont pu varier suivant deux grands types de mécanismes (4) :

- pour les éléments légers de masse atomique inférieure ou égale à 40, les molécules isotopiques ($^{18}\text{O}_2$, ^{18}O , ^{16}O , $^{16}\text{O}_2$ par exemple) ont des énergies de vibration différentes, car la fréquence de vibration est une fonction inverse des masses des atomes constituant la molécule. Leurs niveaux d'énergie quantiques et donc leurs énergies de liaison seront différentes. Les fractionnements isotopiques qui en résultent peuvent être produits par des vitesses de réaction différentes des molécules isotopiques (fractionnement cinétique) ou par des différences de propriétés physiques,
- pour les éléments lourds de masse atomique supérieure à 40, les fractionnements dus au mécanisme précédent sont faibles voire négligeables, mais parmi ces éléments lourds, la radioactivité naturelle va faire varier au cours du temps, les compositions isotopiques des éléments renfermant un ou des isotopes radioactifs ou radiogéniques.

La composition d'un élément possédant un ou des isotopes radioactifs variera donc dans le temps mais sera constante à un même moment pour toutes les roches et les minéraux du système solaire (fig. 3). Autrement dit, au temps présent, une fois que la composition isotopique d'un élément comportant un ou des isotopes radioactifs a été déterminée, il n'est point nécessaire de refaire cette mesure pour chaque échantillon de roche. Par contre, la composition isotopique d'un élément possédant un ou plusieurs isotopes radiogéniques est telle que :

$$F_{mes} = F_o + F_r = F_o + P(e^{-\lambda t} - 1) \quad (5)$$

En rapportant l'abondance de l'isotope radiogénique F à celle d'un isotope stable non radiogénique F' du même élément, on obtient :

$$\frac{(F)}{(F')_{mes}} = \left(\frac{F}{F'} \right)_o + \frac{F_r}{F'} = \left(\frac{F}{F'} \right)_o + \left(\frac{F}{F'} \right)_{mes} (e^{-\lambda t} - 1). \quad (6)$$

Le rapport isotopique $(F/F')_{mes}$ variera en fonction du rapport F_o/F_r (quantité initiale d'isotope F par rapport à la quantité d'isotopes radiogéniques F produits par la désintégration de $P_o - P$ atomes d'isotope père) et du fait que le rapport F_r/F' est fonction à la fois de l'âge t de la boîte et de l'abondance de l'élément père dans la boîte.

(4) Les variations isotopiques dues à l'action des rayons cosmiques sur les éléments des corps extraterrestres dépourvus d'atmosphère ne sont pas prises en considération dans cet exposé, de même que celles dues aux phénomènes de nucléosynthèse se poursuivant dans le soleil.

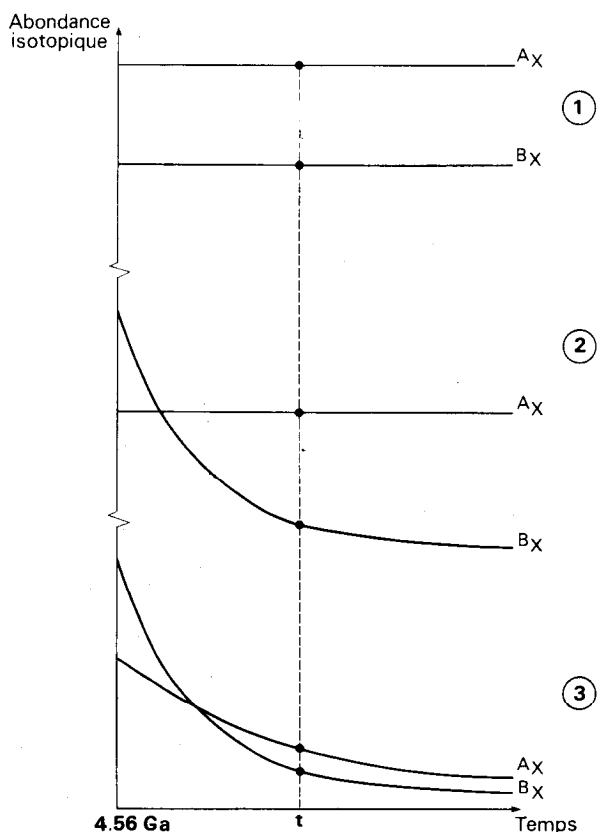


Fig. 3. — Variation du rapport isotopique A_X/B_X en fonction du temps :

Cas 1 : les 2 isotopes A_X et B_X sont stables et non radiogéniques (avec $Z > 40$),

Cas 2 : A_X est stable et non radiogénique (avec $Z > 40$),
 B_X est radioactif,

Cas 3 : A_X et B_X sont radioactifs avec des constantes de désintégration différentes.

Dans chaque cas, au même temps T , tous les minéraux et toutes les roches auront la même composition isotopique A_X/B_X .

La détermination d'âges absolus implique en fait la détermination des 3 paramètres suivants :

— l'abondance actuelle de l'isotope père P ,

- l'abondance actuelle de l'isotope fils F,
- la composition isotopique de l'élément renfermant F.

Ces mesures permettent de calculer les rapports actuels (F/F') et (P/P') des boîtes à F_0 non négligeable, et le couplage des 2 chronomètres $^{238}\text{U} - ^{206}\text{Pb}$ et $^{235}\text{U} - ^{207}\text{Pb}$ pour des boîtes à F_0 négligeable. La composition isotopique de l'élément renfermant F, sera mesurée au spectromètre de masse ou à la sonde ionique après, en général, une séparation chimique rigoureuse de cet élément du reste de la matrice (roche ou minéral).

La mesure des abondances isotopiques actuelles de P et de F dans un échantillon s'effectue par une méthode très précise de dosage dite de dilution isotopique.

II. La dilution isotopique.

Les méthodes de détermination de la teneur d'un élément en traces dans une roche ou un minéral (matrice constituée de silicates, de phosphates, d'oxydes, de carbonates, et/ou de sulfures) impliquent en général une séparation de l'élément de la matrice puis son dosage. Aucune méthode de séparation physico-chimique n'a un rendement reproductible de 100 %. En raison des très faibles variations de la teneur des éléments dans une « boîte » provoquées par la radioactivité naturelle, la mesure des concentrations des éléments renfermant les isotopes d'un certain couple chronométrique doit se faire avec une très grande précision. Pour cela, on utilise la méthode du dosage par dilution isotopique, pour laquelle les variations du rendement de séparation des 2 éléments du couplage n'a pas d'influence sur la mesure de la concentration de ces 2 éléments. Soit une roche, ou un minéral à dater par le couple $^xA \rightarrow ^yB$, lors de la dissolution de l'échantillon de poids P_E on ajoute un poids P_S de traceur (appelé aussi spike) qui est une solution aqueuse faiblement acide renfermant les 2 éléments A et B, mais très enrichis artificiellement respectivement en 2 isotopes $^{x'}A$ et $^{y'}B$ différents de xA et yB . Dans le mélange traceur + échantillon, les éléments A et B auront alors une composition (fig. 4) telle que :

$$\left(\frac{^{x'}A}{^xA} \right)_M \left(= \frac{^{x'}A_E + ^{x'}A_S}{^xA_E + ^xA_E} \right) \quad (7)$$

Ainsi pour l'uranium naturel renfermant 2 isotopes ^{238}U et ^{235}U avec $(^{238}\text{U}/^{235}\text{U}) = 137,88$, on utilisera un traceur enrichi en ^{235}U tel que $8\,000 \leq ^{235}\text{U}/^{238}\text{U} \leq 16\,000$, on essaiera lors de l'analyse du mélange échantillon + traceur, d'obtenir un rapport $(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})_M$ compris entre 2 et 10, pour réduire au minimum les erreurs sur la détermination de la concentration en $(^{238}\text{U})_E$. La concentration en $(^{235}\text{U})_E$ sera ensuite calculée :

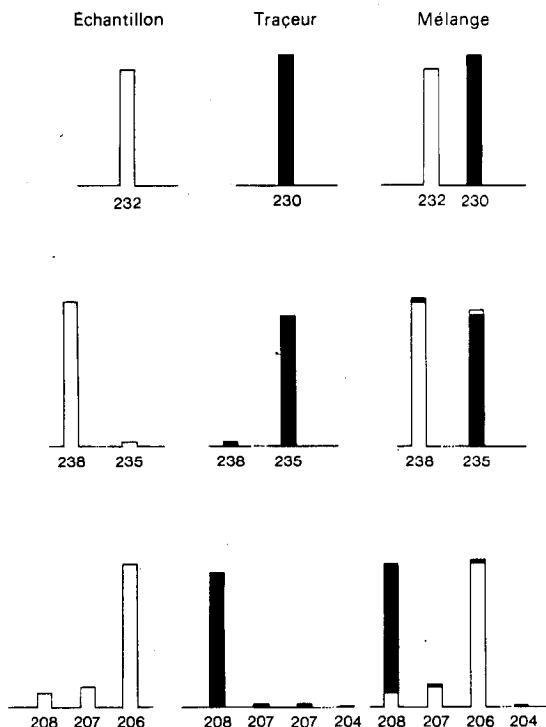


Fig. 4. — Détermination par dilution isotopique des concentrations en thorium, en uranium et en plomb d'un échantillon de zircons. Les rapports isotopiques du mélange ($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$), ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$) et ($^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$) sont mesurés au spectromètre de masse, les concentrations des divers isotopes dans l'échantillon sont ensuite calculées à partir de l'équation du mélange.

$$(^{235}\text{U})_E = (^{238}\text{U})_E / 137,88.$$

Après dissolution et l'ajout du traceur, le stade suivant consiste dans la séparation de A et B de la matrice. L'importance du rendement de la séparation est pratiquement nulle, car la mesure des concentrations des éléments A et B se réduit à la mesure du rapport $(^x\text{A}/^x\text{A})_M$ et $(^y\text{B}/^y\text{B})_M$ du mélange échantillon plus traceur. Il suffit que le rendement de la séparation permette de récupérer des quantités pures de A et de B respectivement nécessaires pour l'analyse isotopique par spectrométrie de masse (1 à $50 \cdot 10^{-9}$ g pour l'uranium et le plomb).

III. Séparation microchimique en salle blanche.

Les méthodes de datation absolue nécessitent la séparation chimique de microquantités des deux éléments renfermant respectivement les isotopes P et F, à partir de l'échantillon à dater, pouvant être une roche ou un minéral. Après diverses opérations (broyage, tamisage, quartage, séparation des minéraux, etc.) l'échantillon est pesé puis dissous par attaque acide, par exemple en milieu $\text{HF} - \text{HNO}_3$; la prise d'une aliquote est effectuée, à laquelle sera ajoutée le traceur pour les mesures de concentration de P et F, la solution restante étant utilisée pour la mesure de la composition isotopique de F. Les éléments renfermant P et F sont alors séparés du reste de la solution par des méthodes comme la coprécipitation, l'électrolyse, ou beaucoup plus fréquemment, la séparation sur microcolonne de résine échangeuse d'ions; dans ce dernier cas, les fractions contenant respectivement P et F sont évaporées à sec et après ajout de quelques microlitres d'un activateur (gel de silice + H_3PO_4 pour le plomb, oxyde de tantale pour le strontium et l'uranium, etc.), trois dépôts sont effectués respectivement sur un filament porteur qui sera introduit dans le spectromètre de masse pour les mesures d'abondance isotopique; ces trois dépôts serviront respectivement aux mesures des concentrations de P et de F, et à celle de la composition isotopique de F.

Les quantités déposées étant fréquemment de l'ordre de 10 à $50 \cdot 10^{-9}$ g, il est évident que les opérations de microchimie doivent se faire en milieu protégé de la pollution par les poussières ou les gaz (cas du plomb, en raison de sa présence dans les gaz d'échappement des voitures). La microchimie est donc faite dans des salles blanches, où l'air est filtré (filtre absolu, filtre à charbon actif), climatisé et mis en surpression. Les travaux s'effectuent dans des hottes à flux laminaire vertical ou horizontal, les réactifs « suprapurs » du commerce y sont *redistillés 3 à 5 fois* dans des appareils en quartz ou en téflon et le matériel tout téflon utilisé pour la microchimie est nettoyé par passage aux ultrasons et 2 à 3 lavages à l'acide après *chaque* utilisation.

IV. Analyse isotopique par spectrométrie de masse.

Le spectromètre de masse est un appareil qui produit des ions à partir d'un élément et les sépare suivant leur rapport m/q (m étant la masse et q la charge électrique de l'ion). Fonctionnant sous un vide poussé de 10^{-7} à 10^{-8} torr, ce qui permet le déplacement des ions libres, le spectromètre de masse comprend essentiellement 3 parties :

- la source lieu de production, d'accélération et de focalisation des ions,

- le système analyseur, constitué par un tube coudé passant dans l'entrefer d'un électro-aimant où s'effectue la séparation suivant le rapport m/q ,
- le détecteur (cage de Faraday ou multiplicateur d'électrons) qui détermine pour chaque masse l'intensité du faisceau ionique.

A ces 3 parties et leurs annexes, est adjoint un système d'acquisition et de traitement des données, piloté par un micro-ordinateur qui fournit donc le spectre de masse de l'échantillon.

A) LA SOURCE.

La production des ions se fait dans la source par bombardement électronique, thermo-ionisation, étincelle de haute fréquence ou bombardement ionique. La source va donc produire des ions, les accélérer dans la direction de l'axe optique du spectromètre et les concentrer sur une fente appelée fente objet. A la sortie de cette fente, l'énergie cinétique des ions sera :

$$\frac{1}{2} m v_o^2 = q V_o \quad (9)$$

m , q et v_o étant respectivement la masse, la charge et la vitesse de l'ion, V_o le potentiel d'accélération est de l'ordre de 10 000 à 15 000 V dans une source de spectromètre à thermo-ionisation de type TSN 206S ou TM5 5A de CAMECA, MT 261 de FINNIGAN-MAT ou ISOMASS 354 E de V.G. INSTRUMENTS.

Dans ces machines, un élément déposé sur un filament se vaporise et s'ionise au contact du filament chaud sous vide, ou au contact d'un autre filament (la configuration de la source pouvant comporter 1, 2 ou 3 filaments (fig. 5.1).

En admettant que l'échantillon solide qui s'évapore est en équilibre thermique avec la surface chaude, le rapport du nombre d'ions formés n^+ au nombre de molécules vaporisées n^0 est égal à :

$$\frac{n^+}{n^0} = e^{(E-I)/kT} \quad (10)$$

avec E l'énergie d'extraction d'un électron hors de la surface métallique, I l'énergie d'ionisation de l'élément, k la constante de Boltzmann, T la température absolue. Pour favoriser l'ionisation des éléments à potentiel d'ionisation élevé, on utilise des filaments en tungstène, tantale ou rhénium, métaux à forte énergie d'extraction. Quant $E < I$, il faut opérer à T élevée, d'où l'intérêt des sources multifilaments, possédant un ou deux filaments évaporateurs et un filament ionisateur porté à très haute tempéra-

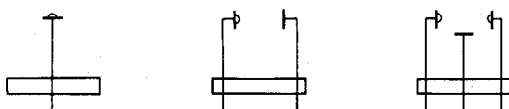
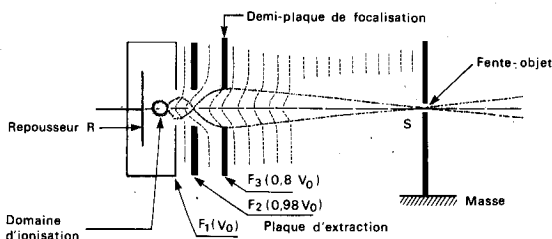
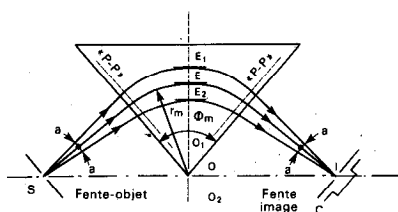
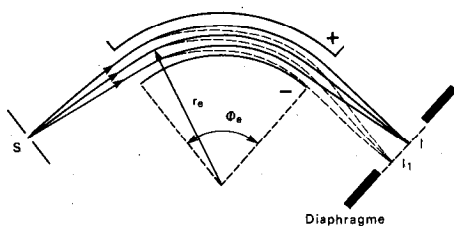
5.15.25.35.4

Fig. 5

- (5.1) Montage de l'échantillon en simple, double ou triple filament.
- (5.2) Schéma d'une source de spectromètre de masse à thermo-ionisation, montrant la formation, l'accélération et la focalisation des ions.
- (5.3) Séparation et focalisation des ions par prisme magnétique.
- (5.4) Filtration en énergie par condensateur à champ électrique radial.

ture (fig. 5.1). Ces sources à thermo-ionisation permettent l'analyse de faible quantité d'échantillon (10^{-7} à 10^{-11} g) si celui-ci a été préalablement purifié chimiquement.

Dans les spectromètres de masse récents, la source possède un barillet rotatif permettant d'introduire 6 à 20 échantillons à la fois, ce qui évite de « casser » le vide trop fréquemment à chaque introduction d'échantillon. D'autre part, le prototype de spectromètre TMS 5A réalisé par la société CAMECA dispose d'un système de navette permettant la prise de l'échantillon, l'introduction dans un sas, avant l'entrée et le positionnement dans la source qui est alors maintenue en permanence sous un vide de 10^{-7} à 10^{-8} torr, dans des conditions idéales de travail.

Les ions créés sont extraits, accélérés et focalisés sur la fente objet par un système d'électrode à fentes (fig. 5.2). Dans la source d'un spectromètre de masse en particulier à thermo-ionisation, un phénomène de discrimination de masse se produit. Les atomes de l'isotope le plus léger s'ionisant plus vite que ceux de l'isotope le plus lourd de l'élément analysé, le fractionnement isotopique qui en résulte est appelé discrimination de masse. Cette discrimination peut altérer considérablement les résultats isotopiques et leurs interprétations. Pour les éléments possédant un rapport isotopique constant ($^{88}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 8,3752$ pour le strontium) un facteur de discrimination est calculé à partir des 2 valeurs mesurées et réelles de ce rapport, et est appliqué au rapport isotopique variable ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$), ce dernier peut être mesuré avec une précision de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-5} .

Pour les éléments ne possédant pas de rapport isotopique constant (cas du plomb, avec un seul isotope stable non radio-génique : ^{204}Pb), il faut analyser un standard de composition isotopique connue, et normaliser par rapport à ce standard, en essayant de se placer dans les conditions optima de reproductibilité lors des analyses du standard et des échantillons, ceci limite la précision des mesures des compositions isotopiques du plomb à 10^{-3} .

B) LE SYSTÈME ANALYSEUR.

1° Spectromètre de masse à simple focalisation.

Dans un tel appareil, la séparation en plusieurs faisceaux ioniques est assurée par un prisme magnétique à champ homogène normal au faisceau. Sous l'action de ce champ magnétique (fig. 5.3), les ions vont décrire des cercles de rayon r_m et converger en un point unique F (fente image) :

$$r_m = \frac{1}{B} \sqrt{2V \frac{m}{q}} \quad (11)$$

où r_m est le rayon exprimé en mètres, B est l'induction magnétique en teslas, V est la tension d'accélération des ions en volts, m la masse de l'ion exprimée en u.m.a., et q la charge. Dans le spectromètre à thermo-ionisation, en général $q = 1$ et la déviation dans le secteur magnétique est uniquement fonction de la masse de l'ion. La variation progressive de l'induction magnétique (ou de la tension d'accélération) permet de focaliser successivement les ions de masses différentes sur la fente image.

2° Spectromètre à double focalisation.

En toute rigueur (9) ne s'applique qu'aux ions ayant à l'instant de leur formation une vitesse nulle, l'énergie cinétique de l'ion ne dépendant alors que de V_0 . Certaines sources (en particulier, la source à étincelles) peuvent produire des ions animés de vitesses initiales non négligeables, à la dispersion en énergie qui en résulte correspond un élargissement de l'image ionique ; pour compenser cet effet, on ajoute un filtre en énergie (condensateur à champ électrique radial Φ_e , voir fig. 5.4) ; ne traversent le filtre, que les ions pour lesquels le rayon r_e de la trajectoire correspondra à la trajectoire moyenne imposée par le condensateur :

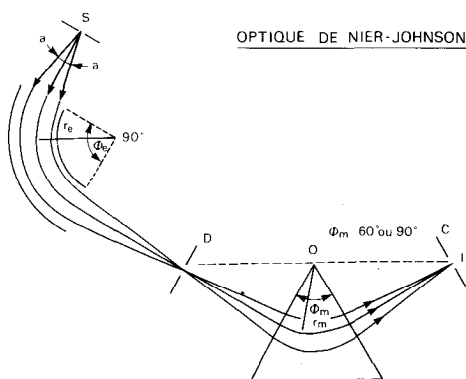
$$r_e = \frac{mv^2}{qE} \quad (12)$$

où E est l'intensité du champ électrique en volts par mètre. Les optiques ioniques employées permettent alors une focalisation en un point (spectromètre de type NIER-JOHNSON, fig. 6.1) ou sur un plan (spectromètre de type MATTAUCH-HERZOG, fig. 6.2). Cette dernière optique obtient actuellement une seconde jouvence à la suite des travaux récents de NIER, qui construit maintenant les spectromètres de masse, de petites dimensions, ultra légers, embarquables dans un container sur un bateau océanographique ou dans une fusée (analyse automatique des atmosphères de Mars et de Vénus, lors du programme Viking).

C) DÉTECTION ET MESURE.

L'intensité des courants ioniques traversant la fente image d'un spectromètre de masse varie entre 10^{-9} et 10^{-19} A. Les ions peuvent être collectés directement sur une cage de Faraday et mesurés après amplification. Cette mesure s'effectue à l'aide d'un voltmètre numérique donnant une mesure quasi instantanée de l'intensité, ou d'un convertisseur tension fréquence, intégrant le courant durant le temps de mesure et produisant un nombre d'impulsions proportionnel à ceux-ci. L'utilisation du convertisseur tension fréquence, nécessite la vérification périodique de la courbe d'étalonnage à l'aide d'une source-étalon.

6_1



6_2

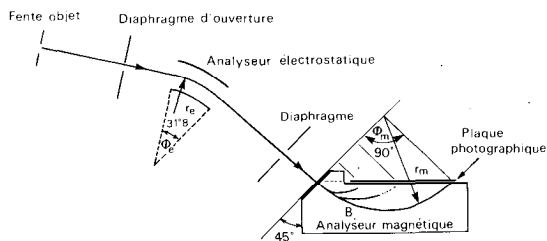


Fig. 6. — Optique des spectromètres de masse à double focalisation associant champ magnétique et électrique.

Pour des courants inférieurs à 10^{-14} A, il est préférable d'amplifier les courants ioniques à l'aide d'un multiplicateur d'électrons constitué de plusieurs dynodes. Lorsqu'un électron d'énergie E, supérieur à un seuil, frappe une dynode, celle-ci libère plusieurs électrons qui sont accélérés d'une dynode à l'autre par une d.d.p. On notera que l'utilisation d'un multiplicateur d'électrons provoque une discrimination de masse, le nombre d'électrons produits par la première dynode sous l'impact d'un ion

dépendant de l'énergie cinétique de l'ion, donc de sa masse. Cette discrimination inverse de celle produite dans la source, se corrige facilement au cours du traitement des données.

Le mode d'acquisition des mesures peut enfin se faire en simple collection ou en multicollection. En simple collection, les faisceaux ioniques correspondant à chaque isotope de l'élément analysé, sont amenés successivement sur la fente image par variation discontinue de l'induction magnétique. On procède alors à un balayage discontinu du spectre de masse en calant successivement l'induction magnétique sur le sommet des pics (mesure de l'intensité de chaque faisceau) et sur une vallée (mesure du bruit de fond) après avoir fixé les temps de mesures, les temps de commutation, le nombre de cycles (un cycle correspondant à un balayage complet du spectre de masse), etc. le tout piloté par un micro-ordinateur. Les résultats sont édités sur un enregistreur graphique, sur bande magnétique et télétype ou plutôt actuellement sur une console de visualisation avec édition sur une imprimante à la demande de l'analyste.

La méthode de mesure en multicollection se développe actuellement activement et consiste à recevoir simultanément chaque faisceau ionique sur un collecteur distinct. Cette méthode apporte deux avantages :

- réduire le temps d'acquisition des données,
- obtenir des analyses de haute précision.

En effet, une variation discontinue de l'intensité ionique dans la source, se reflète instantanément sur l'ensemble des faisceaux, elle provoquera une aberration bien plus marquée en simple collection sur le pic en cours de mesure qu'en multicollection. Des variantes de ce dispositif sont actuellement à l'étude, l'une d'elles prévoit la possibilité d'avoir un système de multicollection avec un collecteur escamotable permettant la mesure d'un faisceau ionique de faible intensité sur multiplicateur, avec dans le même temps, mesure des faisceaux ioniques de fortes intensités sur les collecteurs. Pour certaines analyses, nécessitant la mesure de rapports supérieurs ou égaux à 50 000 ($^{232}\text{Th}/^{230}\text{Th}$) un tel dispositif risque de révolutionner le domaine de datations pour des périodes récentes par exemple inférieure à 10^6 ans.

V. Application en sciences de la terre.

L'équation de la désintégration radioactive s'écrit donc sous sa forme la plus générale $F_{mes} = F_o + P(e^{\lambda T} - 1)$ (3). Lors de l'analyse des abondances isotopiques au spectromètre de masse, on rapporte l'abondance variable de l'isotope radiogénique F, à celle d'un isotope non radiogénique F' du même élément :

$$\left(\frac{F}{F'}\right)_{mes} = \left(\frac{F}{F'}\right)_o + \left(\frac{P}{F'}\right)(e^{\lambda T} - 1). \quad (13)$$

Cette équation est de la forme $y = ax + b$ en prenant :

$$y = \left(\frac{F}{F'}\right)_{mes} \quad \text{et} \quad x = \left(\frac{P}{F'}\right)_{mes}.$$

Pour être applicable, il faut donc qu'à l'instant initial, au temps T , les systèmes étudiés (roches, minéraux) présentent le même rapport initial $\left(\frac{F}{F'}\right)_o$, ce qui est très fréquemment le cas des roches

d'origine magmatique, c'est-à-dire cristallisant à partir d'un même liquide silicaté provenant de la fusion partielle au temps T d'autres roches plus anciennes. Cette caractéristique se vérifie par l'étude des roches magmatiques cogénétiques, se formant au temps présent. Ainsi, les laves d'un même édifice volcanique aux Nouvelles Hébrides présentent la même composition isotopique

initiale en strontium $\left(\frac{F}{F'}\right)_o = \frac{{}^{87}\text{Sr}}{{}^{86}\text{Sr}} = 0,704$ (fig. 7.2). Par

contre, les roches et les minéraux de cet édifice volcanique auront des rapports Rb/Sr différents les uns des autres, le rubidium ayant tendance à se concentrer dans le liquide au cours de la différenciation par cristallisation progressive de ce liquide magmatique ; à l'inverse, le strontium étant incorporé dans le réseau des cristaux en cours de formation, sa concentration diminuera dans le liquide, et les diverses roches et minéraux formés au cours de cette cristallisation progressive présenteront des rapports Rb/Sr différents (fig. 7.1).

Par conséquent, des roches et des minéraux cogénétiques et synchrones, d'origine magmatique seront représentés dans un diagramme $({}^{87}\text{Sr}/{}^{86}\text{Sr}) = f(\text{Rb}/{}^{86}\text{Sr})$, à l'instant initial, lors de leur formation, par une droite parallèle à l'axe des abscisses. Ensuite, chaque atome de ${}^{87}\text{Rb}$ en se désintégrant donnera un atome de ${}^{87}\text{Sr}$, et les points représentatifs des roches et des minéraux évolueront dans ce diagramme, suivant des droites de pentes égales à -1 .

Au temps présent, si l'évolution isotopique s'est faite en système clos, sans perte ni gain en ${}^{87}\text{Rb}$, ${}^{87}\text{Sr}$ ou ${}^{86}\text{Sr}$, autres que ceux dus à la radioactivité, dans le diagramme $({}^{87}\text{Sr}/{}^{86}\text{Sr}) = f({}^{87}\text{Rb}/{}^{86}\text{Sr})$, les points représentant les roches et les minéraux cogénétiques et synchrones, s'aligneront suivant une droite nommée isochrone (fig. 7.3), de pente égale à $(e^{\lambda T} - 1)$ et d'ordonnée à l'origine $({}^{87}\text{Sr}/{}^{86}\text{Sr})_o$. Ces deux informations : l'âge et la composition

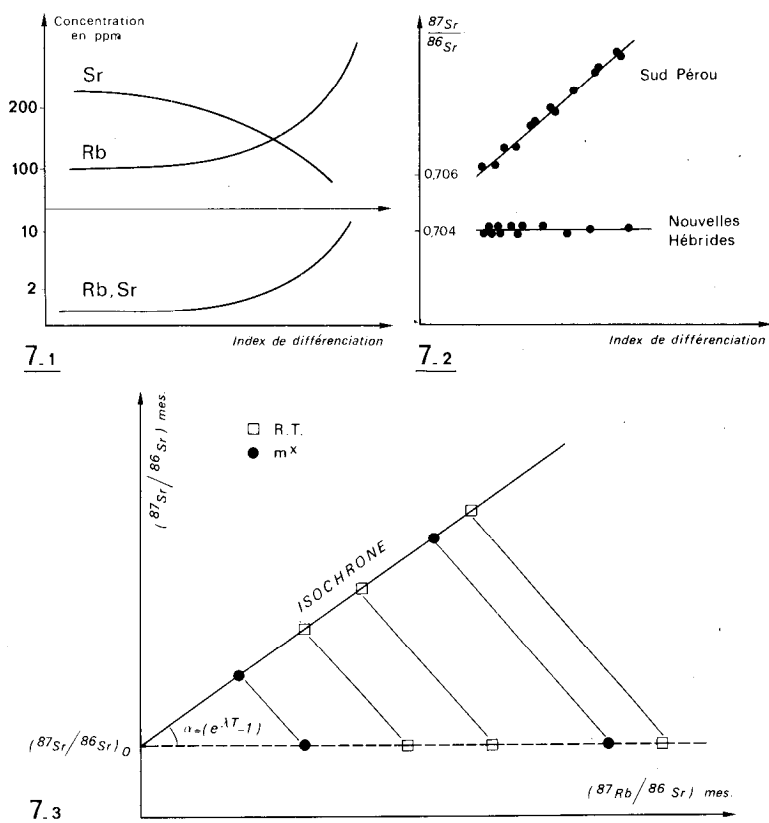


Fig. 7

- (7.1) Variation des teneurs en rubidium et en strontium et du rapport (Rb/Sr) au cours de la cristallisation de roches à partir d'un même liquide magmatique.
- (7.2) En général, de telles roches présentent la composition isotopique ($\frac{87\text{Sr}}{86\text{Sr}}$) du liquide à partir duquel elles cristallisent (cas des Nouvelles Hébrides), exceptionnellement, une contamination du liquide par l'encaissant de la poche magmatique peut conduire à une non-homogénéité isotopique initiale (cas du Sud Pérou).
- (7.3) Evolution en système clos, pour le couple Rb-Sr de trois roches totales cogénétiques et synchrones (R.T.) et de 2 minéraux (m^*) d'une de ces roches.

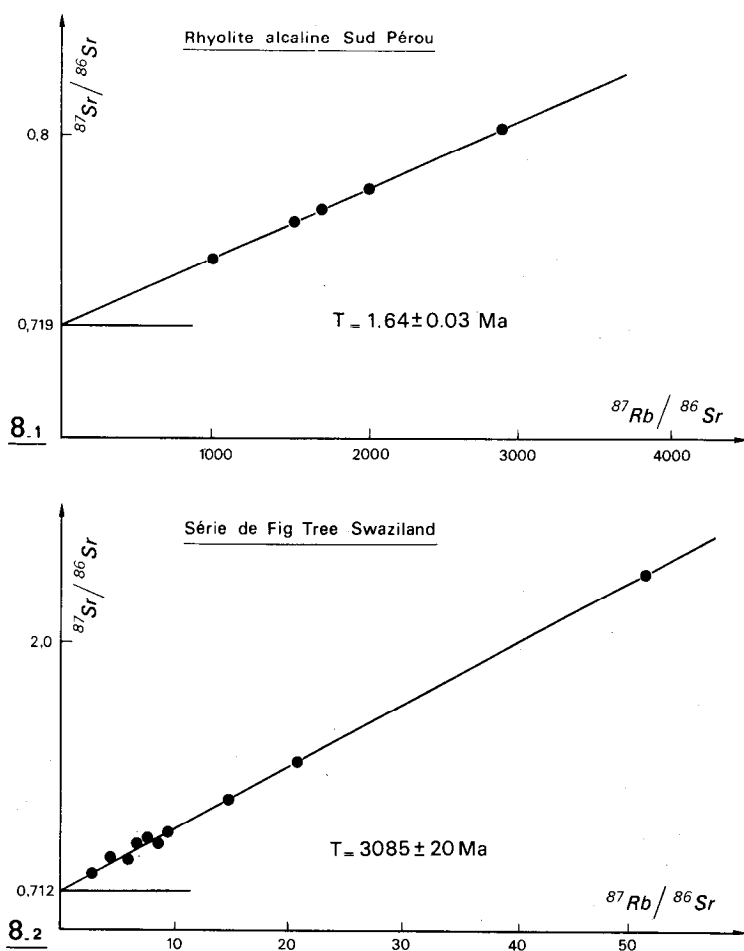


Fig. 8. — Exemple de datation de roches par la méthode Rb-Sr. Notez la différence des valeurs des rapports ($^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$).

isotopique initiale, seront utilisées par le géochimiste dans sa quête de la reconstitution de l'évolution de la Terre. Je donnerai pour exemple de datations absolues réalisées par cette méthode le cas de laves, très récentes du Sud Pérou, datées à $1,64 \pm 0,03$ millions d'années et celui de roches très anciennes de Rhodésie datées à $3,08 \pm 0,02$ milliards d'années (fig. 8).

La différence des valeurs des rapports ($^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$) des 2 séries d'échantillons est évidente, en fait, la datation des laves du Sud Pérou n'a été rendue possible qu'en raison des rapports ($^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$) anormalement élevés de ces laves. Pour des valeurs de ce rapport, comprises entre 0,1 et 20, valeurs communément rencontrées dans les roches terrestres, la datation d'événements vieux de quelques millions d'années ne serait pas possible, la quantité de ^{87}Sr radiogénique produite étant trop faible :

$$\left(\frac{F}{F'}\right)_r \simeq 0, \left(\frac{F}{F'}\right)_{mes} \simeq \left(\frac{F}{F'}\right)_o$$

Un événement thermique ou thermotectonique (4) peut venir perturber l'évolution de tels chronomètres. Ces événements se produisent couramment par exemple lors de l'évolution des continents, et peuvent induire une réhomogénéisation isotopique des minéraux d'une roche formée au temps T_1 . Cette réhomogénéisation s'effectue par échange isotopique de l'isotope F (expl : ^{87}Sr) entre des minéraux riches en ^{87}Sr radiogénique (minéraux donneurs à haut rapport $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$) et des minéraux pauvres en cet isotope (minéraux accepteurs à bas rapport $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$) (fig. 9.1). Les échanges isotopiques cesseront lorsque la totalité des minéraux constituant une roche, présenteront la composition isotopique ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) moyenne de la roche au temps T_2 de l'événement thermique ou thermotectonique. Au temps présent, on observera alors 2 isochrones dans le diagramme ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) = $f(^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr})$ définies respectivement par les points expérimentaux, correspondant aux roches (isochrone I) et aux minéraux (isochrone I') (fig. 9.2). Les pentes de ces isochrones fourniront l'âge T_1 de cristallisation (en toute rigueur, cet âge n'est que celui de la dernière homogénéisation isotopique des roches, souvent et abusivement confondu avec l'âge de cristallisation de ces roches) et l'âge T_2 de réhomogénéisation isotopique des minéraux. Un bon exemple d'un tel mécanisme a été observé dans les Appalaches, sur la côte Est des U.S.A. (fig. 10.1) où l'analyse Rb-Sr en roche totale, d'anciens granites a fourni un âge de $1 \cdot 05$ Ga (isochrone I) alors que les minéraux de chacun de ces granites correspondent à des points définissant des isochrones parallèles (isochrones I') de même âge (290 Ma), aux erreurs d'expériences près. Cette disposition est due à la réhomogénéisation isotopique en ^{87}Sr de ces minéraux, lors d'un important événement thermique, lié à la formation à l'échelle mondiale à environ 300 Ma, des chaînes de montagnes hercyniennes réactivant des terrains plus anciens d'âge 600 Ma, 1 000 Ma ou plus (les Appalaches aux U.S.A., le Massif Central, la Bretagne, les Vosges, les Pyrénées en France, etc.).

(4) Événement thermotectonique : événement thermique accompagné d'une déformation.

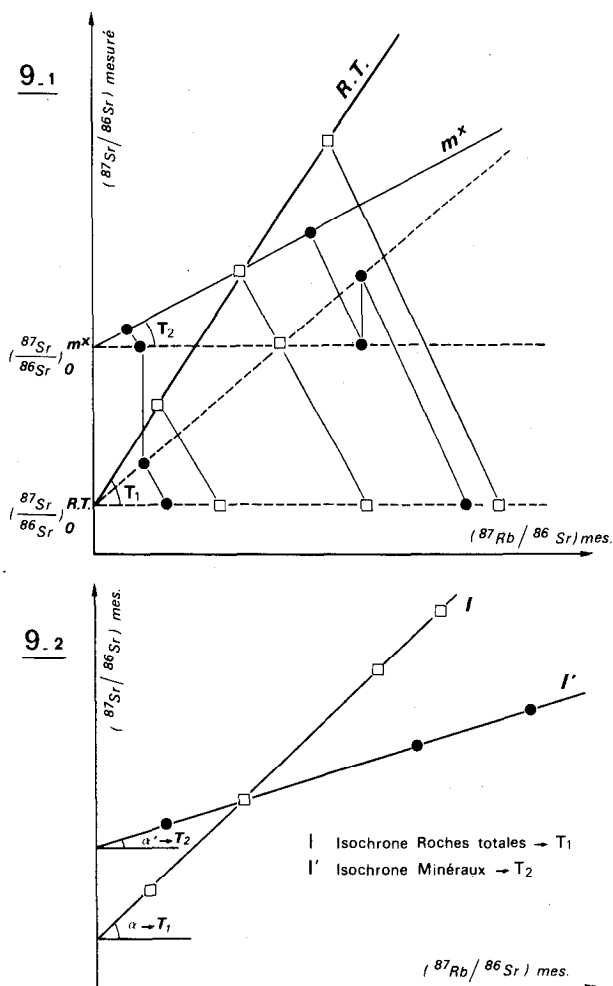


Fig. 9. — Evolution RbSr, de roches totales cogénétiques formées au temps T_1 , et des minéraux d'une de ces roches dans le cas d'un événement thermique ou thermo-tectonique d'âge T_2 , ayant provoqué la réhomogénéisation isotopique de ces minéraux.

Un événement tectonique se superposant à un événement thermique peut accélérer le processus d'homogénéisation isotopique par diffusion du ^{87}Sr radiogénique, et affecter non seule-

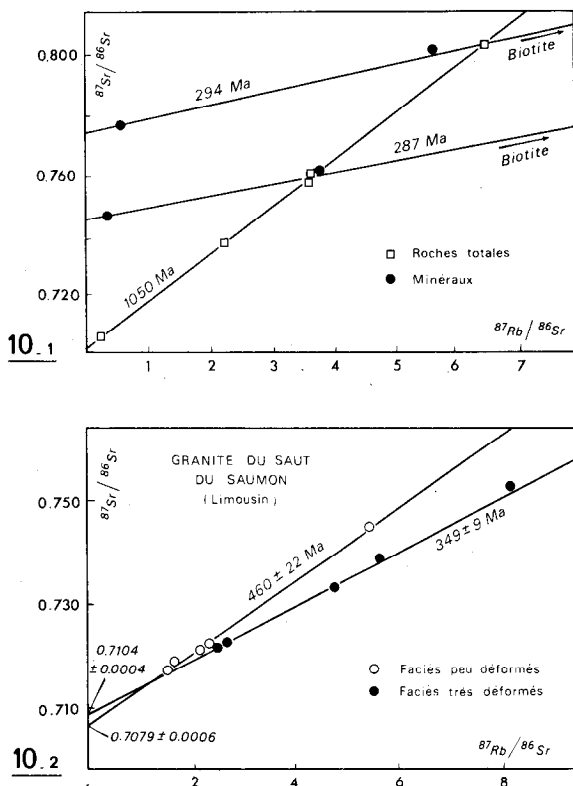


Fig. 10

- (10.1) Réhomogénéisation isotopique hercynienne des minéraux d'anciens granites des Monts Appalaches formés à 1050 Ma. Les points expérimentaux correspondant aux biotites (mica noir) ne peuvent figurer à cette échelle.
- (10.2) Réhomogénéisation isotopique des roches totales d'un ancien granite lors de l'événement thermo-tectonique hercynien dans le Massif Central.

ment les minéraux mais aussi la roche totale. Ainsi, un ancien granite du Limousin présente à l'affleurement des faciès peu déformés et d'autres très déformés par la tectonique hercynienne. Par la méthode Rb-Sr, les échantillons peu déformés de ce granite fournissent un âge de $460 \pm 22 \text{ Ma}$ interprété comme âge de cristallisation, alors que les échantillons de roches très déformées,

indiquent un âge de 349 ± 9 Ma (fig. 10.2) interprété comme étant l'âge de l'événement thermotectonique hercynien dans le Limousin. D'après les données pétrographiques, l'intensité de l'événement thermique a été pratiquement la même pour tous les échantillons, *alors que la réhomogénéisation isotopique, atteignant ici l'échelle de la roche totale*, n'affecte que les zones très déformées.

La mesure actuelle des rapports isotopiques $\left(\frac{F}{F'}\right)$ et $\left(\frac{P}{F'}\right)$ de minéraux ou de roches cogénétiques et synchrones permet d'obtenir d'une part des âges d'homogénéisation isotopique (assimilés à des âges de cristallisation) et des âges de réhomogénéisation (événement perturbateur par exemple thermotectonique) et d'autre part la composition isotopique initiale $\left(\frac{F}{F'}\right)_o$.

La connaissance de cette information est aussi fondamentale que celle de l'âge et le couple P-F est alors utilisé comme traceur de l'origine des roches et des minéraux. En partant de la même

équation $\left(\frac{F}{F'}\right)_{mes} = \left(\frac{F}{F'}\right)_o + \left(\frac{P}{F'}\right)_{mes} (e^{\lambda T} - 1)$, on porte

alors $\left(\frac{F}{F'}\right)_{mes}$ en fonction du temps T ; pour une évolution en système clos, on obtient alors une représentation graphique (fig. 11.1) dans laquelle des droites de pente égales à $\left(\frac{P}{F'}\right)_{mes}$

convergent vers le point représentant le stade initial où les roches et les minéraux ont cristallisé avec la même composition iso-

topique $\left(\frac{F}{F'}\right)_o$. Lors de l'étude géochimique de l'origine des

granites, roches magmatiques caractéristiques de la « croûte continentale » (5), le problème se pose fréquemment de savoir si ces granites proviennent :

- de la fusion partielle de roches d'une ancienne croûte continentale,
- de la fusion partielle de roches situées à beaucoup plus grande profondeur dans le « manteau » (6),
- d'un mélange de produits mantelliques et crustaux.

(5) Croûte continentale : couche superficielle limitée à 30-40 km sous les continents.

(6) Manteau : couche intermédiaire entre la croûte et le noyau, limitée en profondeur à 2 900 km.

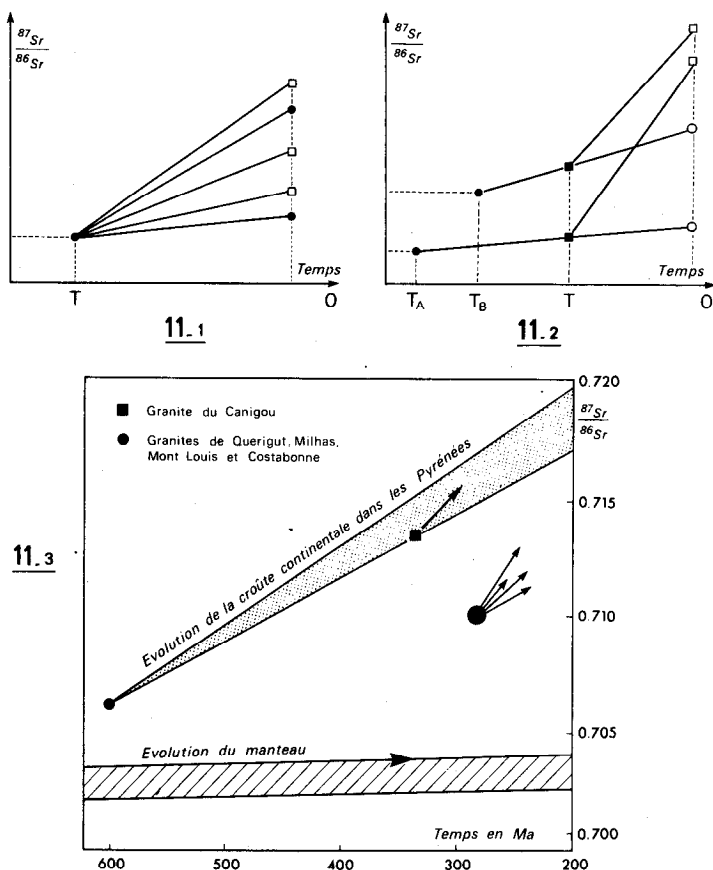


Fig. 11. — Utilisation du couple Rb-Sr comme traceur de l'origine des roches.

- (11.1) Représentation de l'évolution en système clos de roches et de minéraux co-génétiques et synchrones dans un diagramme $(\frac{87\text{Sr}}{86\text{Sr}}) = f(T)$.
- (11.2) Détermination de la source de roches formées au même temps T par fusion partielle de milieux (croûte continentale, manteau) formés à T_A ou à T_B .
- (11.3) Cas réel, des granites hercyniens des Pyrénées-Orientales (voir texte).

Une représentation des données isotopiques du système Rb-Sr dans un diagramme $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}) = f(T)$ permet de répondre à cette question (fig. 11.2 et 11.3). Ainsi dans les Pyrénées, un composant majeur de la croûte continentale s'est formé il y a environ 600 Ma, et il a été possible de démontrer qu'à l'époque hercynienne, il y a environ 300 Ma, certains granites comme celui du Canigou, se sont formés par fusion partielle de l'ancienne croûte continentale formée à 600 Ma, alors que d'autres comme ceux de Querigut, de Mont-Louis, de Costabonne et de Milhas, dérivent vraisemblablement d'un processus de mélange binaire, avec une source mantellique et une source crustale (fig. 11.3).

Pour des minéraux présentant un très haut rapport (P/F') , l'équation de la désintégration radioactive se présente sous sa forme simplifiée :

$$\frac{F_r}{P} = e^{\lambda T} - 1 \quad (2) \quad \text{car} \quad \left(\frac{F}{F'} \right)_o \simeq 0 \quad \text{et} \quad \left(\frac{F}{F'} \right)_{mes} \simeq \left(\frac{F_r}{F'} \right).$$

On a alors intérêt à coupler les 2 chronomètres U-Pb et à reporter $(^{207}\text{Pb}_r/^{235}\text{U}) = f(^{206}\text{Pb}_r/^{238}\text{U})$; dans un tel diagramme, en calculant ces 2 rapports pour chaque temps T , on trace une courbe appelée Concordia, graduée en temps (fig. 12.1 et 12.2) et correspondant au lieu géométrique des points pour lesquels les 2 chronomètres U-Pb fournissent des âges concordants. Ce diagramme s'utilise en routine depuis une dizaine d'années, pour discuter les données U-Pb obtenues sur les zircons et les minéraux uranifères [systèmes riches, à haut rapport (P/F')]. Si les points expérimentaux se placent sur la courbe Concordia, il y a concordance des âges fournis par les 2 chronomètres U-Pb et la datation absolue du minéral considéré est donc réalisée.

Pour les zircons, les points expérimentaux se placent fréquemment au voisinage de la courbe Concordia, mais sous cette courbe, en formant un alignement lorsqu'on analyse plusieurs fractions granulométriques de zircons extraits d'une même roche. Cette disposition caractéristique résulte de perte en plomb radiogénique à partir des zircons. Au cours du temps, cette perte peut être continue en raison de la désorganisation progressive du réseau cristallin des zircons, provoquée par leur propre radiocativité (fig. 12.1) ou discontinue en réponse à un intense événement thermique (fig. 12.2).

En cas de perte discontinue, on démontre que les points se disposent suivant une droite dont les intercepts avec la courbe Concordia fournissent T_1 , l'âge de cristallisation des zircons, et T_2 l'âge de l'événement thermique perturbateur (fig. 12.2). En cas de perte continue, les points se disposent suivant théoriquement des courbes de diffusion, mais dans la réalité ces pertes continues

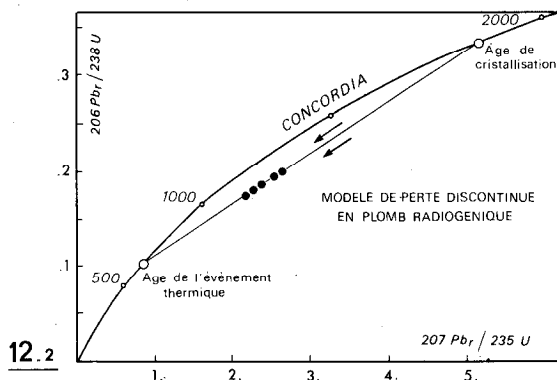
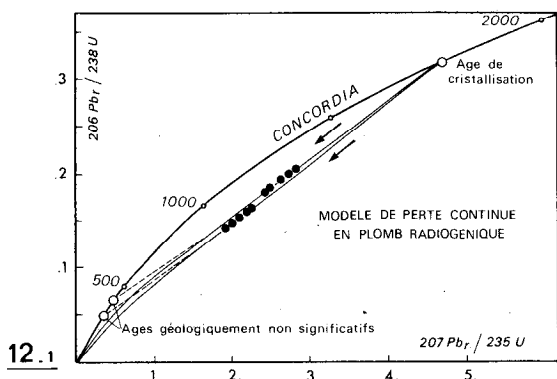


Fig. 12. — Représentation des données U-Pb dans le diagramme Concordia $(^{206}\text{Pb}_r/^{238}\text{U}) = f(^{207}\text{Pb}_r/^{235}\text{U})$

(12.1) avec perte continue en plomb radiogénique pour des zircons formés à T_1 ;

(12.2) avec perte discontinue en plomb radiogénique de zircons d'âge T_1 lors d'un événement thermique à T_2 .

sont faibles, et les points obtenus se placent dans la partie supérieure linéaire de ces courbes. L'intersection supérieure de la droite de régression avec la courbe Concordia fournit alors dans ce cas, l'âge de cristallisation T_1 de ces zircons, par contre l'intercept inférieur n'a aucune signification géologique (fig. 12.1).

Un bon exemple de mesures U-Pb est fourni par l'étude du granite de Bokan Mountain (Alaska) et du gisement d'uranium

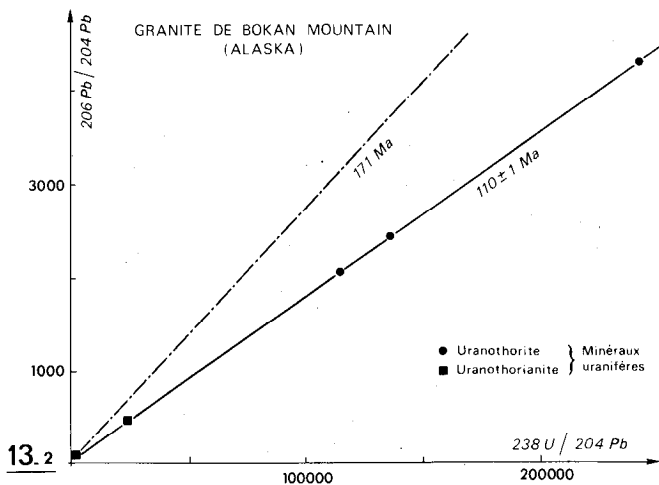
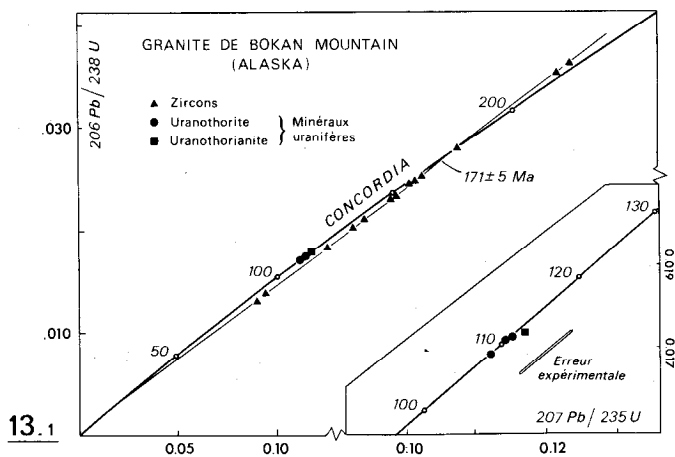


Fig. 13. — Exemple de datation U-Pb réalisée sur le granite minéralisé en uranium et en thorium, de Bokan Mountain (Alaska). Les zircons extraits des faciès minéralisés ou stériles de ce granite indiquent un âge de 171 ± 5 Ma. La minéralisation associée s'est formée 60 Ma après la mise en place du granite. On note :

- 1) que les minéraux urano-thorifères renferment du plomb initial et n'ont pas perdu de plomb radiogénique, ce qui permet l'utilisation des diagrammes isochrones de type $(F/F') = f(P/P')$ (13.2), comme pour le système Rb. Sr,
- 2) que pour les âges récents, la courbe Concordia devient de plus en plus linéaire, ce qui limite la précision des données U-Pb pour les âges « récents ».

et de thorium associé à ce granite. Extraites des faciès minéralisées ou stériles du granite, les diverses fractions de zircons séparées suivant leur taille ou leurs propriétés magnétiques, définissent une droite dans le diagramme Concordia, dont l'intercept supérieur avec la courbe Concordia fournit l'âge de cristallisation des zircons à 171 ± 5 Ma, âge assimilé à celui de la mise en place du granite. Les minéraux uranothorifères constituant le gisement (uranothorite, uranothorianite) ont été aussi analysés par la méthode U-Pb et fournissent un âge de cristallisation à 110 Ma, c'est-à-dire 60 Ma plus jeune que la mise en place du granite à laquelle classiquement on associait la formation du gisement. De telles mesures isotopiques, utilisant les couples P-F connaissent actuellement un développement sans précédent dans le secteur de la géologie appliquée à l'étude des conditions de formation et d'évolution des gisements métalliques.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES SOMMAIRES

- Bernard GRIFFITHS. — *Essai sur la signification des âges au strontium dans une série métamorphique : le Bas Limousin (Massif Central français)*, Thèse Univ. Clermont-Ferrand (1975), 243 p.
 - C.E.A. — *Spectrométrie de masse. Application à l'analyse chimique*, Ed. Eyrolles, 131 p.
 - B. DE SAINT-ANDRÉ, J.-R. LANCELOT et B. COLLOT. — *U-Pb geochronology of the Bokan Mountain peralkaline granite, southeastern Alaska*, Canadian Journal of Earth Sciences, 20, 2 (1983), 236-245.
 - B. DE SAINT-ANDRÉ, J.-R. LANCELOT et B. COLLOT. — *U-Pb isotopic systematics and the age of the Uranium-Thorium mineralization at Bokan Mountain, S.E. Alaska*, Uranium (sous presse) (1984).
 - A. TITRAC-MICHARD. — *Chronologie et développement d'une orogénèse : exemple des Pyrénées-Orientales*. Thèse Univ. Paris VII (1975), 140 p. + annexes.
 - G.-W. WETHERILL, G.-L. DAVIS et C. LEE-HU. — *Rb-Sr measurements on whole rocks and separated minerals from the Baltimore Gneiss, Maryland*, Geological Society American Bulletin, 79 (1968), 757-762.
-