

RADIOCARBONE - III

LA MESURE DES AGES PAR LE RADIOCARBONE

(3^{ème} partie)

10. DETECTEURS

On a vu plus haut que la qualité d'une **installation de mesure des faibles activités** est fonction du rapport entre le signal du carbone moderne et la racine carrée du mouvement propre.

Le signal du carbone moderne dépend uniquement de la quantité de carbone qui peut être introduite dans le détecteur et de l'efficacité de la détection. Le bruit de fond, en supposant que les moyens de réduction décrits ci-dessus soient bien utilisés, dépend principalement de la nature et de la surface des parois du détecteur (effet des gamma) et de la masse présente à l'intérieur du détecteur (effet des neutrons).

La qualité du détecteur dépend en outre de la stabilité et de la reproductibilité de ses mesures.

Trois types de détecteurs de radiations ont été développés successivement pour la **mesure du radiocarbone** :

- le compteur Geiger-Müller ;
- le compteur proportionnel à remplissage gazeux ;
- le scintillateur liquide.

10.1. Le compteur Geiger-Müller

C'est avec un **compteur Geiger-Müller** de construction spéciale que **LIBBY** et **ANDERSON** ont fait, **en 1947**, à Chicago, les **premières mesures de l'activité du carbone naturel** et les premiers datages.

Le compteur comporte en premier lieu une enveloppe cylindrique. Au centre de cette enveloppe se trouve l'anode du compteur Geiger-Müller constituée d'un fil placé suivant l'axe et la cathode constituée d'une grille.

Un manchon cylindrique long de deux tiers de l'enveloppe peut glisser entre celle-ci et la grille. L'échantillon recouvre seulement une moitié de la paroi interne du manchon. On peut ainsi mesurer le mouvement propre du compteur, puis, sans changer le remplissage gazeux, faire glisser l'échantillon en face de la grille et compter son activité (fig. 6).

Le compteur fonctionnant dans la zone Geiger-Müller a l'avantage d'être très

sensible aux rayons bêta, même de faible énergie. Il peut être utilisé pour la mesure d'autres radio-isotopes que le radiocarbone.

Ce compteur, aujourd'hui peu utilisé, présente **deux inconvénients** :

- Il nécessite une **quantité importante d'échantillon (8 gr. de carbone)**. Il faut en effet répartir celui-ci en "couche infime" (**25 mgr/cm**) pour éviter les erreurs dues aux variations d'auto-absorption des bêta du C dans une couche mince d'épaisseur inégale.
- De plus, le **carbone solide** déposé sur la paroi du cylindre est **très absorbant** et très **facilement contaminé** au cours de sa préparation par les radio-isotopes naturels et artificiels présents dans l'atmosphère, ce qui peut entraîner de graves erreurs de mesure.

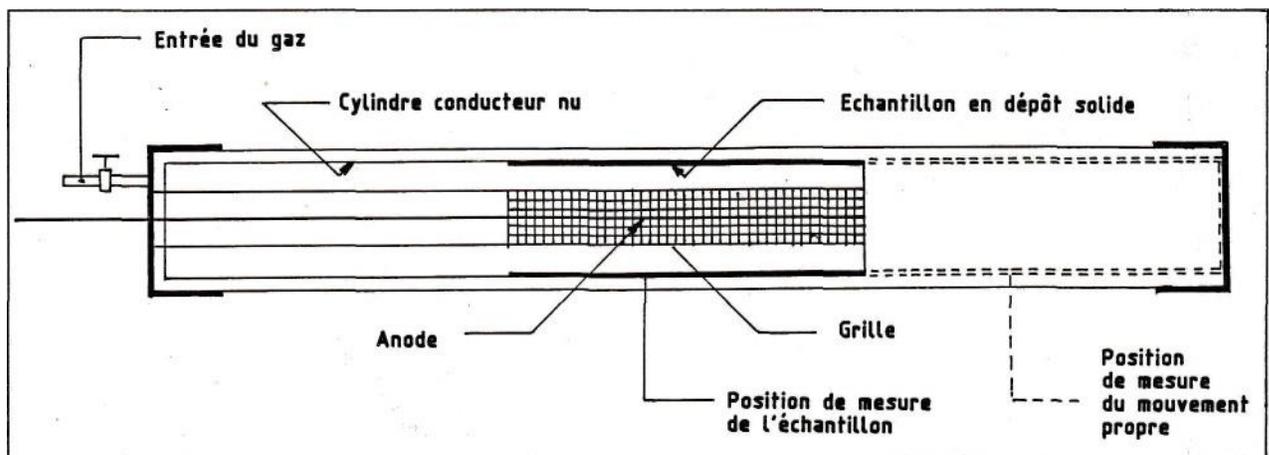


Fig. 6 - Schéma de principe du compteur Geiger-Müller de Libby.

10.2. Les compteurs proportionnels à remplissage gazeux

Ces inconvénients sont éliminés en introduisant l'échantillon dans un compteur proportionnel, sous forme de gaz.

Un échantillon de **1 à 2 gr.** suffit à remplir un compteur d'un **volume de 1 litre**. L'auto-absorption de l'échantillon solide étant supprimée, le comptage pour **1 gr. de carbone** sous forme gazeuse est égal au comptage de **12 gr. de carbone solide**. L'efficacité du comptage est donc considérablement accrue.

De plus la préparation du gaz et son introduction dans le compteur peuvent se faire en évitant toute possibilité de contamination extérieure.

Enfin, les impulsions sortant du compteur ont une amplitude proportionnelle à l'ionisation produite par chaque particule. On peut donc, à l'aide d'un discriminateur, éliminer du mouvement propre résiduel une partie importante des impulsions dues à la contamination alpha des matériaux utilisés pour la fabrication du compteur. Ces impulsions sont en effet beaucoup plus grandes que celles du radiocarbone.

Trois gaz sont couramment utilisés l'acétylène, le méthane et l'anhydride carbonique.

CRATHORN¹, SUESS², OESCHGER³ et BARKER⁴ utilisent l'acétylène depuis 1953. Ce gaz à l'avantage de contenir deux fois plus de carbone que l'anhydride carbonique et le méthane. Par contre, il ne peut être comprimé au-delà de deux atmosphères.

L'acétylène est de préparation facile. Il donne d'excellents plateaux à tension relativement peu élevée (3.000 à 4.000 V). Le fonctionnement du compteur rempli à l'acétylène est peu sensible aux impuretés.

L'anhydride carbonique est employé notamment par FERGUSON⁵ et au laboratoire de Groningen. Il a l'avantage de pouvoir être comprimé, ce qui permet d'introduire plus de carbone dans le compteur et d'améliorer ainsi le signal de l'appareil, tout en modifiant peu son bruit de fond. Par contre, l'anhydride carbonique a le grave inconvénient de devoir être purifié à mieux que 10^{-6} pour assurer au compteur un fonctionnement électrique stable.

Enfin, le méthane a également été utilisé, notamment par BURKE⁶, DIETHORN⁷ et CREVECCŒUR⁸

10.3. Le compteur proportionnel M.B.L.E

Les activités dans le domaine nucléaire de la M.B.L.E. ont malheureusement été arrêtés dans les années 1970, car non rentables du point de vue industriel. Toutefois, un certain nombre d'installations de compteurs proportionnels de cette société subsistent dans le monde, c'est pourquoi, nous avons jugé bon de maintenir ce paragraphe (n.d.l.r.)

Le compteur M.B.L.E. (fig. 7 et 8) est fabriqué suivant les principes du compteur de HOUTERMANS et OESCHGER, de l'Université de Berne. Il se compose de deux compteurs proportionnels concentriques où circule le même gaz et séparés par une paroi très mince (7 mgr/cm). Le compteur annulaire sert d'ombrelle au compteur central.

Cette disposition de l'ombrelle donne à celle-ci une meilleure efficacité que les ombrelles constituées de tubes Geiger-Müller.

La grande supériorité du compteur M.B.L.E est due à la faible épaisseur de la paroi séparant le compteur central et le compteur annulaire.

L'émission d'électrons secondaires par les rayons gamma est en effet considérablement réduite. De plus, les rayons bêta encore créés ont, pour la plupart, une énergie suffisante pour traverser la paroi séparant les deux compteurs et actionner l'ombrelle d'anti-coïncidence.

Signalons, à titre d'illustration, que ce dispositif d'anti-coïncidence réduit à 12% l'effet d'une source de Co_{60} placée près du compteur, alors qu'une ombrelle de tubes Geiger-Müller ne le réduit pratiquement pas.

Sans aucune protection, le mouvement propre du compteur est de 5 cpm. Il est de 2,5 cpm avec 5 cm de plomb et peut être abaissé jusqu'aux environs de 1 cpm avec une protection plus importante.

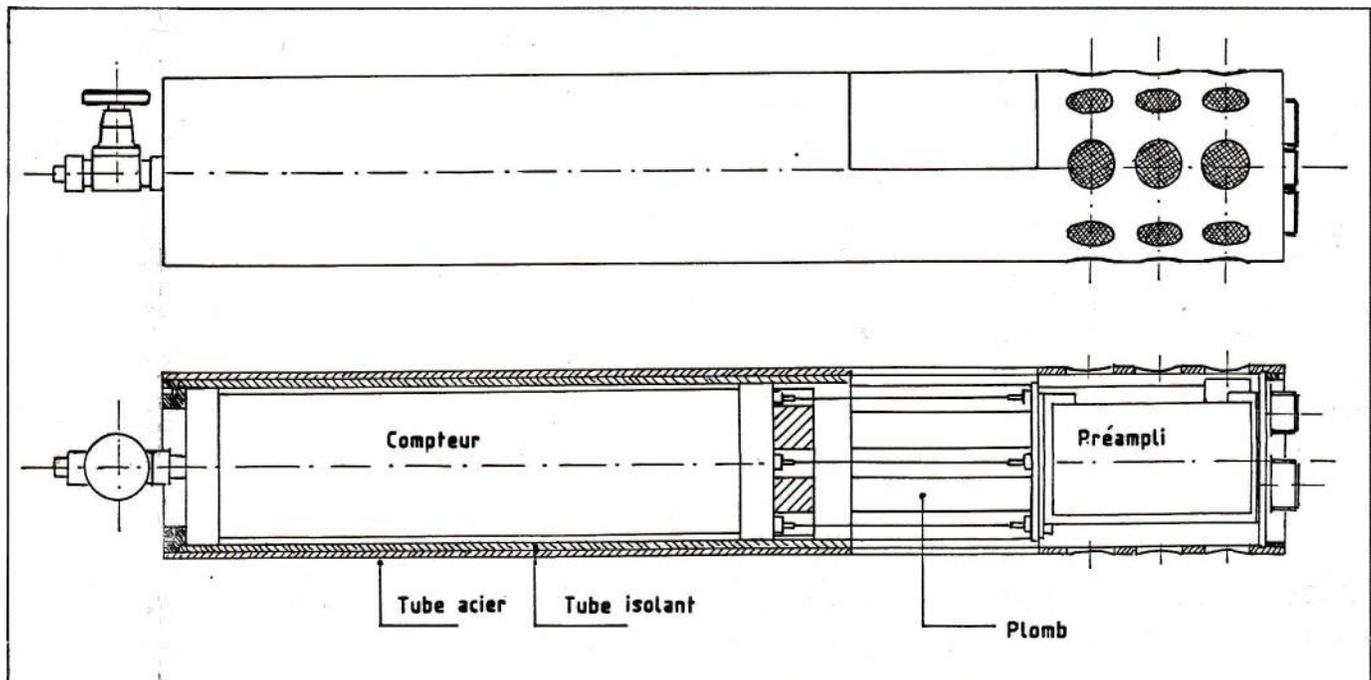


Fig. 7 - Support isolant du compteur proportionnel M.B.L.E et de son préamplificateur double.

10.4. Les scintillateurs liquides

Les **scintillateurs liquides** sont des substances qui transforment en lumière visible une partie de l'énergie des particules ionisantes qui les traversent. Les impulsions lumineuses sont, dans certaines limites, proportionnelles à l'énergie de ces particules. Elles sont observées au moyen d'un ou de deux **photomultiplicateurs** (fig. 9).

Pour la **mesure du radiocarbone**, les **scintillateurs liquides** présentent, comme les **compteurs gazeux**, l'avantage d'éviter la contamination de l'échantillon.

De plus, les impulsions dues aux mésons et aux rayons gamma peuvent être éliminées par simple discrimination d'amplitude. L'emploi d'une ombrelle d'anti-coïncidence n'est pas indispensable et la protection contre les rayons gamma peut être réduite à 10 cm de plomb⁹.

Le bruit de fond thermo-ionique des **photomultiplicateurs** donne des impulsions de même amplitude que le radiocarbone. Un dixième des impulsions dues au

radiocarbone se trouvent confondues avec celles du bruit de fond thermo-ionique. Celui-ci doit donc être éliminé, d'une part, par le refroidissement des photomultiplicateurs à -10°C et, d'autre part, par l'emploi d'un circuit de coïncidence.

L'intérêt de la **méthode par scintillation** est de permettre la détermination d'âges plus grands qu'en recourant à des **compteurs gazeux**, à condition de disposer d'un échantillon d'une **centaine de grammes de carbone**. Les installations actuellement en fonctionnement et utilisant des échantillons d'une **dizaine de grammes de carbone**, ce qui est déjà élevé, n'ont pas de performances plus intéressantes que les **compteurs gazeux**¹⁰.

Le grand inconvénient de la **scintillation liquide** est la difficulté de la préparation chimique du scintillateur¹¹.

Les impulsions lumineuses sont émises par différents composés constitués par un arrangement linéaire de cycles aromatiques, tels que le **p. terphényl**. Ce corps est dilué dans un solvant tel que le **benzène** ou le **toluène**. Le **carbone** de l'échantillon à mesurer doit être introduit dans le solvant par synthèse partielle ou totale.

PRINGLE¹² emploie le **méthanol** dans le **toluène**. **AUDRIC**¹³ l'**acétylène**, **ARNOLD**¹⁴ l'**hexane** et l'**octane**, également dans le **toluène**.

Le **carbone** de l'échantillon représente **10 à 13%** du poids du mélange scintillant. Le rendement du comptage varie de **25 à 50%** et est donc inférieur au rendement du compteur gazeux (**60 à 80%**).

10.5. L'enrichissement isotopique.

Afin de pouvoir reculer la limite de l'âge mesurable avec un **compteur gazeux**, le laboratoire de Groningen a entrepris d'enrichir quelques échantillons en C_{14} dans les colonnes de diffusion¹⁵. Un enrichissement d'un **facteur 16** a été obtenu, ce qui a permis de reculer la limite de l'âge mesurable sur ces échantillons **de 4 demi-vies**, permettant ainsi d'atteindre **70.000 ans**.

L'enrichissement d'un échantillon demande **deux mois** et nécessite environ **200 gr. de carbone**. Cette méthode ne pourrait donc être employée qu'exceptionnellement. De plus, l'incertitude des résultats s'accroît considérablement. Une contamination de **0,2 mgr. de carbone** moderne par gramme d'échantillon introduit une **erreur de 5.000 ans sur 70.000**. En pratique, une telle contamination d'échantillons géologiques, par exemple, par infiltration d'acides humiques plus récents, est toujours à craindre.

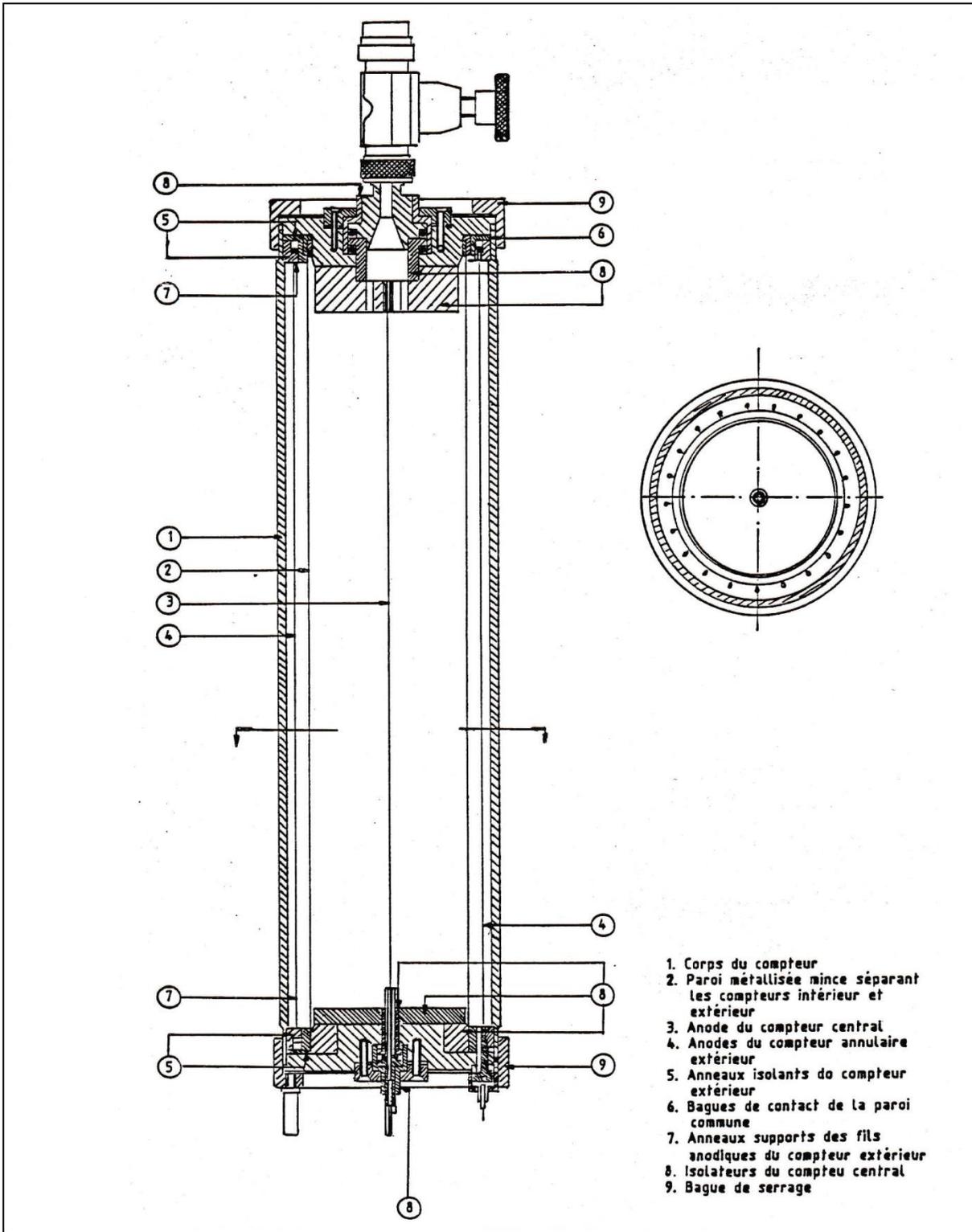


Fig. 8 - Schéma de principe du compteur proportionnel M.B.L.E avec anti-coïncidence incorporée

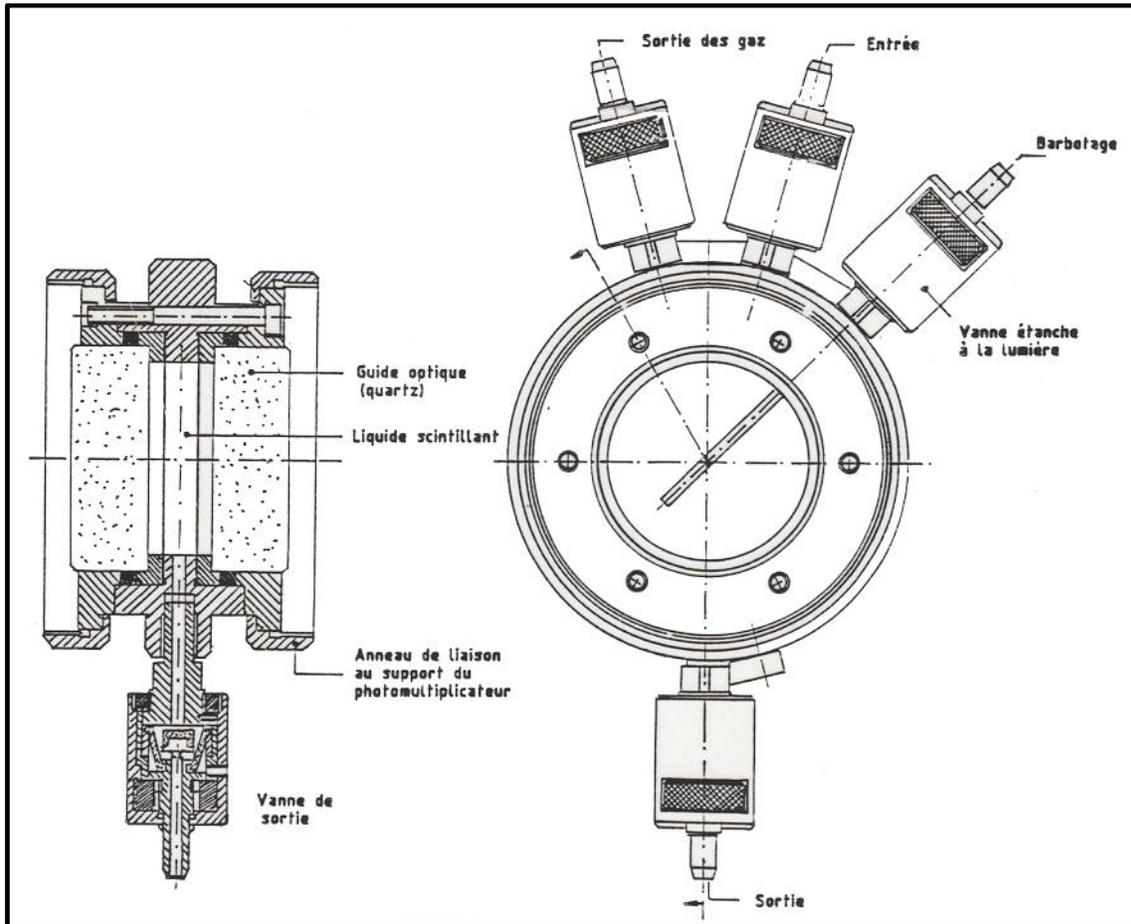


Fig. 9 - Cellule M.B.L.E pour les mesures par scintillateur liquide.

-
- ¹ A.R. CRATHORN, *Nature*, Vol. 172, 632 (1953).
- ² H.E. SUESS, *Science*, Vol. 120, 5 (1954).
- ³ - J. GEISS, C. GFELLER, F.G. HOUTERMANS, H. OESCHGER, *Conf. On the Peaceful Uses of Atomic Energy*, Geneva (1958), A/Conf 15/P/236.- F.G. HOUTERMANS, H. OESCHGER, *Helv. Phys. Acta*, Vol. 28, 464 (1955).
- ⁴ H. BARKER, C.J. MACKEY, *Am. Journal of Science*, Vol. 1, 81 (1959).
- ⁵ G.J. FERGUSSON, *Nucleonics*, Vol. 13, 1 (1955).
- ⁶ W.H. BURKES, W.G. MEINSHEIM, *Rev. Sci. Instr.*, Vol. 26, 269 (1955).
- ⁷ A. DIETHORN, *A Methane proportional counter system for natural radiocarbon measurements*, Carnegie Institute of Technology, Pittsburg, Penn. (1954).
- ⁸ W. VAN PEE, E. CREVECŒUR, P. Capron, *Ac. Royale de Belgique - Bull. Classe des Sciences*, Tome XLIV, 1958-11.
- ⁹ F.N. HAYES, etc., *Physical Review*, Vol. 92, 512 (1953).
- ¹⁰ - J.R. ARNOLD, *Science*, Vol. 119, 155(1954).
- B.N. AUDRIC, J.V.P. LONG, *Oxford Radioisotopes Conf.*, II, (1954).
- R.W. PRINGLE, W. TURCHINETZ, B.L. FUNT and S.S. DANYLUK, *Science*, 125, 69-70 (jan. 1957).
- ¹¹ F.N. HAYES, E.C. ANDERSON and W.H. LAUGHAM, *Proc. Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy*, Geneva (1955), vol. 14, 182.
- ¹² R.W. Pringle, W. Turchinets, B.L. Funt & S.S. Danyluk, *Science*, 125, 69-70 (Jan. 1957).
- ¹³ B.N. AUDRIC, J.V.P. LONG, *Oxford Radioisotopes Conf.*, II, (1954).
- ¹⁴ J.R. Arnold, *Science*, Vol. 119, 155 (1954).
- ¹⁵ - A. HANING, A.E. de VRIES, H. de VRIES, *Science*, Vol. 128, (1959).
- A. HANING, A.E. de VRIES, *Conf. on the Peaceful Uses of Nuclear Energy*, Geneva (1958), A/Conf. 15/P/1979.

(A suivre : « *Comparaison des détecteurs...* »)