

## RADIOCARBONE - I

# LA MESURE DES AGES PAR LE RADIOCARBONE

*La mesure des âges par le radiocarbone est peut-être la première méthode de datation absolue utilisant les caractéristiques radioactives d'un élément chimique. De nombreux articles ont déjà traité de cette méthode de datation, aussi est-elle connue du grand public. Toutefois, nous jugeons intéressant de publier l'article suivant, paru dans la revue de prestige de la société anonyme M.B.L.E., en 1960. Malgré son ancienneté, il reste d'actualité et présente une approche différente et plus complète des autres travaux de vulgarisation parus dans la presse (R. Six).*

-- o --

M. LORTHOIR <sup>(1)</sup>

## 1. PRINCIPE

Les rayons cosmiques engendrent dans l'atmosphère un isotope <sup>(\*)</sup> radioactif du carbone, le carbone 14, émetteur d'un rayonnement bêta <sup>(\*)</sup> de faible énergie.

Les atomes de carbone ainsi formés se combinent, au bout de quelques minutes, à l'oxygène de l'air pour donner lieu à de l'anhydride carbonique. Dans cet état, le C<sub>14</sub> est assimilable par les plantes et, à travers celles-ci, par les animaux, au même titre que les isotopes stables : C<sub>12</sub> et C<sub>13</sub>.

Lorsque la plante ou l'animal quitte le cycle du carbone atmosphérique, la radioactivité du C<sub>14</sub> fait décroître la quantité de cet élément dans l'organisme qui l'avait assimilé. Cette décroissance se manifeste par celle de l'activité qui est divisée par deux, après chaque période de 5.568 ans.

En mesurant l'activité spécifique du carbone extrait d'un échantillon géologique ou archéologique et en la comparant à l'activité spécifique du carbone naturel actuel (provenant, par exemple, de bois récent), on peut déduire l'âge de l'échantillon.

L'hypothèse de la formation de radiocarbone dans l'atmosphère a été faite en 1946 par W.F. LIBBY (prix Nobel de physique) et vérifiée expérimentalement en 1947. A l'heure actuelle, la méthode de datage par le radiocarbone est utilisée dans une quarantaine de laboratoires. Une dizaine de milliers de dates ont été déterminées. [Ces chiffres datant des années 1960]

---

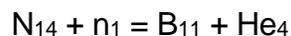
<sup>1</sup> Ingénieur en chef de la Division Physique et Regulation de la S/M.B.L.E., dans les années 1960.

## 2. FORMATION DU RADIOCARBONE DANS L'ATMOSPHERE

En pénétrant dans les couches supérieures de l'atmosphère, les **rayons cosmiques**, qui ont une **énergie** de plusieurs **milliards d'électronvolts** (\*), provoquent l'explosion des noyaux atomiques qu'ils rencontrent. Les fragments des noyaux brisés sont principalement des neutrons et des noyaux légers tels que ceux de l'**hydrogène**, du **tritium** (\*) ou de l'**hélium**.

Les neutrons perdent leur énergie initiale par chocs successifs sur les noyaux présents dans l'atmosphère (principalement oxygène et azote) et sont rapidement absorbés par ceux-ci.

De la comparaison des **sections efficaces** (\*) de capture, on déduit que l'azote  $N_{14}$  absorbe pratiquement la totalité des neutrons produits par les **rayons cosmiques**. Une faible partie des neutrons à haute énergie donne lieu à la réaction :



La grande majorité des neutrons cependant est absorbée à énergie thermique suivant la réaction :



**LIBBY** <sup>(2)</sup> a vérifié cette théorie de la production du radiocarbone en calculant, sur la base de celle-ci, l'activité du carbone naturel ; l'activité ainsi calculée est pratiquement égale à l'activité mesurée expérimentalement. Partant de la distribution des neutrons en altitude et en surface <sup>(3)</sup>, le calcul détermine une production de  $C_{14}$  de  **$1,3 \times 10^{19}$  atomes par seconde**. Considérant que la teneur de l'atmosphère en  $C_{14}$  est en équilibre, c'est-à-dire qu'il s'en détruit autant qu'il en apparaît, et tenant compte de l'activité spécifique mesurée sur le radiocarbone produit dans les réacteurs, on déduit que la quantité totale de  $C_{14}$ , présente à la surface terrestre, est de **81 tonnes**, soit **365 millions de curies** (\*).

<sup>(3)</sup> Les rayons cosmiques produisant les neutrons dans les hautes couches de l'atmosphère et ceux-ci étant rapidement absorbés par l'azote, le flux de neutrons est, à 15.000 m, 100 fois celui du niveau de la mer. On a également constaté un accroissement de flux d'un facteur 5 aux pôles géomagnétiques par rapport au flux à l'équateur. La valeur moyenne, intégrée à partir de mesures expérimentales, de la production de neutrons est de 2,4 neutrons par seconde et par  $cm^2$  de surface terrestre.

**LIBBY** fait ensuite une estimation de la quantité de carbone faisant partie du **cycle du carbone atmosphérique** <sup>(4)</sup>, dans lequel sont mélangées ces **81 tonnes de  $C_{14}$** .

---

<sup>2</sup>W.F. LIBBY, *Radiocarbon Dating*, second edition (1955), Univ. of Chicago Press.

(4) Le carbone du cycle se répartit comme suit :

|              |                     |       |
|--------------|---------------------|-------|
| Océans :     | Carbonates          | 87,5% |
|              | Matières organiques | 7     |
| Biosphère :  |                     | 4     |
| Atmosphère : |                     | 1,5   |
|              |                     | ----- |
|              |                     | 100 % |

La quantité totale de carbone du cycle est de 8,3 gr par cm<sup>2</sup> de surface terrestre.

On en déduit une **activité théorique du C<sub>14</sub>**, dans le carbone naturel du **cycle atmosphérique**, de **17,3 désintégrations/min. gr. ± 10%**. Cette valeur correspond d'une manière très satisfaisante à la valeur de **15,3 ± 0,5 dés./min. gr.** trouvée expérimentalement.

L'accord entre ces deux valeurs confirme de plus que le **rayonnement cosmique** n'a **pas sensiblement varié** au cours des **20.000 dernières années**, ce qui est une hypothèse fondamentale de la mesure des âges par le radiocarbone.

### 3. PROPRIETES DU RADIOCARBONE

#### 3.1 Demi-vie.

L'activité d'un isotope radioactif décroît exponentiellement dans le temps. Le temps après lequel son activité est réduite de moitié est appelé **demi-vie** et constitue une de ses principales caractéristiques physiques.

La **demi-vie du C<sub>14</sub>** étant **supérieure à 5.000 ans**, elle ne peut être déterminée en suivant expérimentalement, dans le temps, la décroissance de son activité. Cette **décroissance** n'est, en effet, que **de 1% par 80 ans**. Aussi déduit-on la **demi-vie**, de la valeur de la **constante radioactive**. La mesure de celle-ci, pour le C<sub>14</sub>, a été faite à plusieurs reprises en déterminant, d'une part, l'activité d'un échantillon et, d'autre part, par spectrométrie de masse, sa teneur en C<sub>14</sub>. Cette mesure ne peut être effectuée sur du carbone naturel. En effet, celui-ci se compose d'environ **98,89% de C<sub>12</sub>, 1,11% de C<sub>13</sub> et de 1,6.10<sup>-9%</sup> de C<sub>14</sub>** ; une si faible quantité de C<sub>14</sub> n'est pas décelable au spectromètre de masse. On utilise donc un échantillon très riche en C<sub>14</sub>, obtenu dans un réacteur.

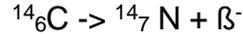
La composition de l'échantillon est déterminée avec précision au spectromètre de masse. L'échantillon est dilué dans un rapport connu avec du carbone fossile (ne contenant pas de C<sub>14</sub>). L'activité de l'échantillon est ensuite mesurée en introduisant celui-ci, sous forme gazeuse, dans un compteur proportionnel ou un compteur Geiger. Cette détermination absolue de l'**activité de l'échantillon** n'est **précise qu'à 0,5% près**, par suite de la difficulté d'estimer le rendement de comptage du détecteur.

La meilleure valeur retenue actuellement pour la **demi-vie du radiocarbone** est de **5.568 ± 30 ans**<sup>(3)</sup>.

<sup>3</sup>W.F. LIBBY, *Radiocarbon Dating*, second edition (1955), Univ. of Chicago Press.

### 3.2 Rayonnement bêta.

Le  $C_{14}$  se désintègre suivant la réaction :



Le rayonnement bêta émis est de faible énergie. Celle-ci est au maximum de 155 KeV et en moyenne de 45 KeV (fig. 1).

L'épaisseur maximum que peut traverser une particule bêta émise par le radiocarbonate est de 28 mgr/cm<sup>2</sup>. La demi-épaisseur moyenne, c'est-à-dire l'épaisseur réduisant de moitié l'intensité du rayonnement, est de 2,3 mgr/cm<sup>2</sup>.

Le rayonnement du  $C_{14}$  est donc difficilement mesurable. Citons à titre d'exemple que, compte tenu des facteurs géométriques, des absorptions et du rendement de comptage, un détecteur Geiger-Müller à paroi mince (1,5 mgr/cm<sup>2</sup>), de 2 cm de diamètre, placé à 1 cm d'une source de  $C_{14}$ , n'enregistre que 3% de l'activité de celle-ci.

Pour cette raison, toutes les méthodes de mesure de l'activité du carbone naturel sont faites en plaçant l'échantillon à l'intérieur du détecteur, que celui-ci soit un Geiger-Müller, un compteur proportionnel ou un scintillateur. Le rendement de la détection peut ainsi être accru jusqu'à plus de 60%.

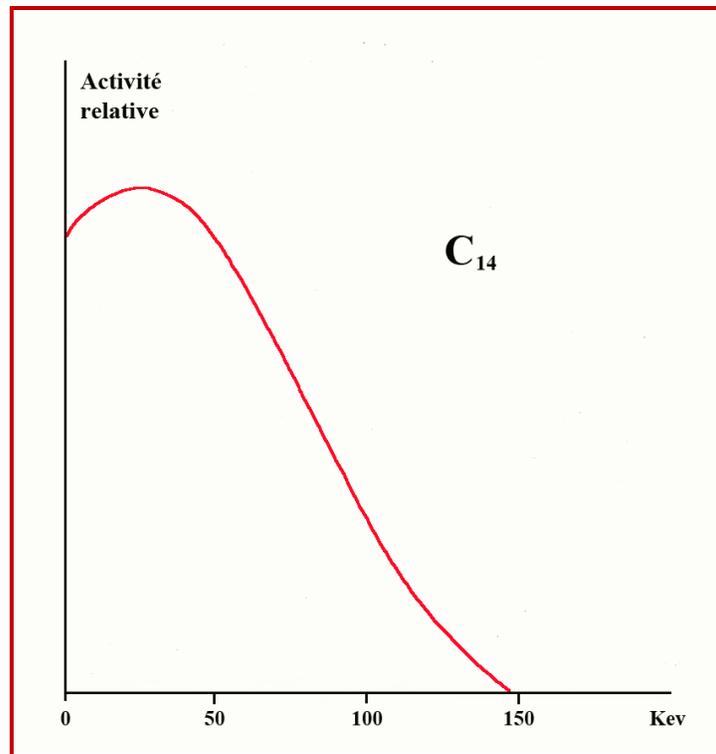


Fig. 1 – Spectre absolu du  $C_{14}$

#### 4. ACTIVITE DU CARBONE NATUREL

Dans les plantes et le bois, la valeur moyenne de l'activité du carbone naturel récent est de  $15,3 \pm 0,5$  dés./min. gr.<sup>(4)</sup>.

On a pu constater que cette valeur est légèrement inférieure à la valeur trouvée pour le carbone atmosphérique par suite du fractionnement isotopique qui se produit lors de l'assimilation. Ce fractionnement peut être contrôlé.

Le fractionnement  $C_{14}/C_{12}$  est, en effet, double du fractionnement  $C_{13}/C_{12}$  qui est mesurable au spectromètre de masse<sup>(5)</sup>. On a donc contrôlé les variations du rapport  $C_{13}/C_{12}$  pour différentes sources de carbone. Les coquillages contiennent 2% de plus de  $C_{13}$  que le bois, celui-ci 2% de moins que le  $CO_2$  atmosphérique<sup>(6)</sup>.

Comme dans le cas de la mesure de la demi-vie du  $C_{14}$ , l'imprécision sur le rendement du détecteur affecte la mesure absolue de l'activité du carbone naturel. Des valeurs variant de 13,7 à 16,1 dés./min. gr. ont été trouvées<sup>(7)</sup>. Cette imprécision est sans influence sur le datage. L'âge est, en effet, calculé en partant du rapport des mesures faites, avec le même détecteur et dans les mêmes conditions, sur un échantillon de carbone récent et sur l'échantillon à étudier.

Rappelons ici que le carbone, d'origine végétale mais âgé de plusieurs millions d'années, ne contient plus de radiocarbone. Il est utilisé pour préparer des échantillons inactifs destinés à la mesure du mouvement propre du détecteur.

#### 5. VARIATIONS DE L'ACTIVITE DU CARBONE NATUREL - VALIDITE DE LA METHODE DE DATAGE

L'âge d'un échantillon est déterminé par le rapport de son activité spécifique actuelle à l'activité qu'il avait au moment où il a quitté le cycle du carbone atmosphérique, par mort ou par sédimentation. Comme celle-ci est évidemment inconnue, on suppose qu'elle était égale à l'activité du carbone naturel actuel.

L'hypothèse fondamentale de la méthode est donc que la teneur atmosphérique en  $C_{14}$ , ou l'intensité du rayonnement cosmique qui le produit, n'a pas varié sensiblement pendant les derniers 50.000 ans.

---

<sup>4</sup> E.C. ANDERSON, W.F. LIBBY, *Phys. Rev.*, Vol. 81, 64 (1951).

<sup>5</sup> H.C. Urey, *J. Chim. Soc.*, 562 (1947).

<sup>6</sup> H. CRAIG, *Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy*, Geneva (1958).

<sup>7</sup> - E.C. ANDERSON, W.F. LIBBY, *Phys. Rev.*, Vol. 81, 64 (1951);

- F.N. HAYES, E.C. ANDERSON, W.H. LAUGHAM, *Proc. Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy*, Geneva (1958), vol. 14, 182;

-H.E. SUESS, *Science*, Vol. 120, 5 (1954).

La méthode suppose de plus que, malgré les variations en latitude et en altitude de la production de  $C_{14}$ , celui-ci est également distribué à la surface terrestre.

Comme on l'a vu plus haut, une première confirmation de l'hypothèse sur la constance du rayonnement cosmique a été obtenue en comparant la valeur de l'activité du carbone naturel, calculée à partir de l'intensité de ce rayonnement, à la valeur expérimentale.

Une autre confirmation de la validité de la méthode a été donnée par LIBBY en mesurant l'activité d'échantillons d'âge historiquement connu avec précision <sup>(8)</sup>.

La fig. 2 fournit l'activité spécifique de ces échantillons ; on y trouve également la courbe théorique d'activité spécifique calculée en supposant la production du  $C_{14}$  constante et en attribuant à celui-ci une demi-vie de 5.568 ans. La corrélation entre les mesures sur échantillons et cette courbe théorique est excellente.

Une vérification expérimentale de cette courbe portant sur un grand nombre d'échantillons, a été effectuée par MÜNNICH, OSTLUND et de VRIES <sup>(9)</sup>. Sur une soixantaine d'échantillons d'âge historiquement connu, ne dépassant pas 5.000 ans, les écarts de leurs activités spécifiques, par rapport aux valeurs théoriques, n'excèdent pas  $\pm 2\%$  pour la plupart d'entre eux, atteignent  $\pm 4\%$  pour 9 et de  $\pm 4$  à  $\pm 8\%$  pour 4.

Ces essais donnent en même temps une bonne idée de la précision de la méthode. Rappelons qu'une variation d'activité spécifique de 1% équivaut à une variation d'âge de 80 ans.

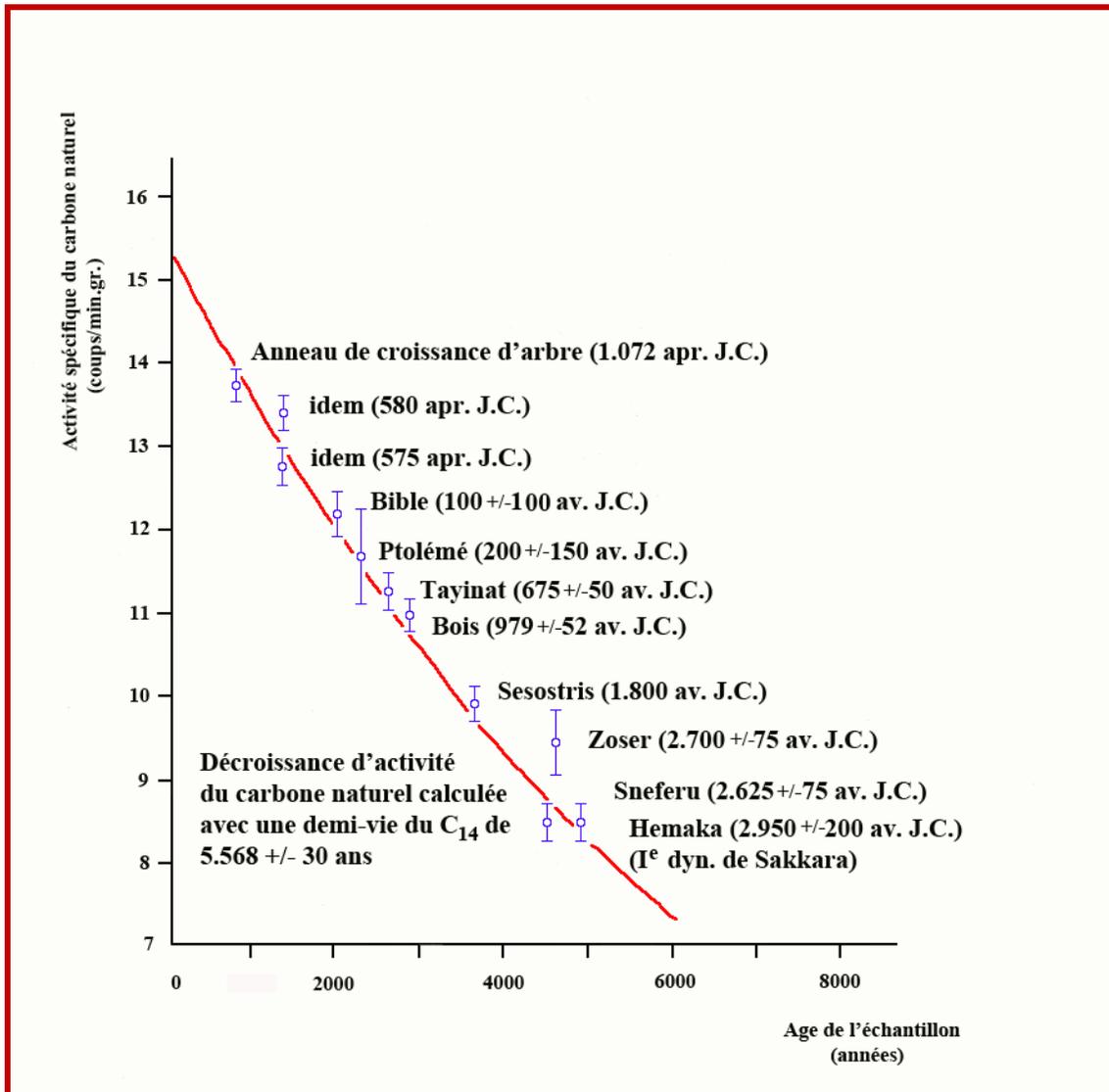
Une corrélation satisfaisante jusqu'à 25.000 ans a été trouvée sur des échantillons de couches sédimentaires datés à la fois par la méthode du radiocarbone et par la méthode de l'ionium <sup>(10)</sup>.

---

<sup>8</sup> W.F. LIBBY, *Radiocarbon Dating*, second edition (1955), Univ. of Chicago Press.

<sup>9</sup> K.O. MÜNNICH, H.G. OSTLUND, H.E. de VRIES, *Nature*, Vol. 182, 1432 (1958).

<sup>10</sup> J.L. KULP, *Nucleonics*, Dec.54.



**Fig. 2 – Vérification de la méthode de datage par le C<sub>14</sub> sur des échantillons historiquement connus (LIBBY)**

L'hypothèse sur la répartition uniforme du C<sub>14</sub> à la surface terrestre a pu être vérifiée expérimentalement. Cette répartition uniforme s'explique par la rapidité, par rapport à la demi-vie du C<sub>14</sub>, des échanges entre les différentes parties du réservoir de carbone.

L'étude des échanges entre atmosphère et océan et l'étude des mélanges de l'air et de la circulation en profondeur des eaux océaniques a progressé rapidement depuis 1947 grâce aux théories et aux mesures sur le C<sub>14</sub> et le tritium.

Cependant des mesures ont été faites récemment avec grande précision sur des troncs d'arbres débités en suivant leurs couches de croissance annuelle. Ces mesures ont fait apparaître de très légères variations cycliques d'activité au cours des 500 dernières années et de légères différences d'une provenance géographique à l'autre <sup>(1)</sup>.

11 de VRIES, *Koninkl. Nederl. Akademie van Wetenschappen*, Amsterdam, Serie B, 61, n° 2 (1958).

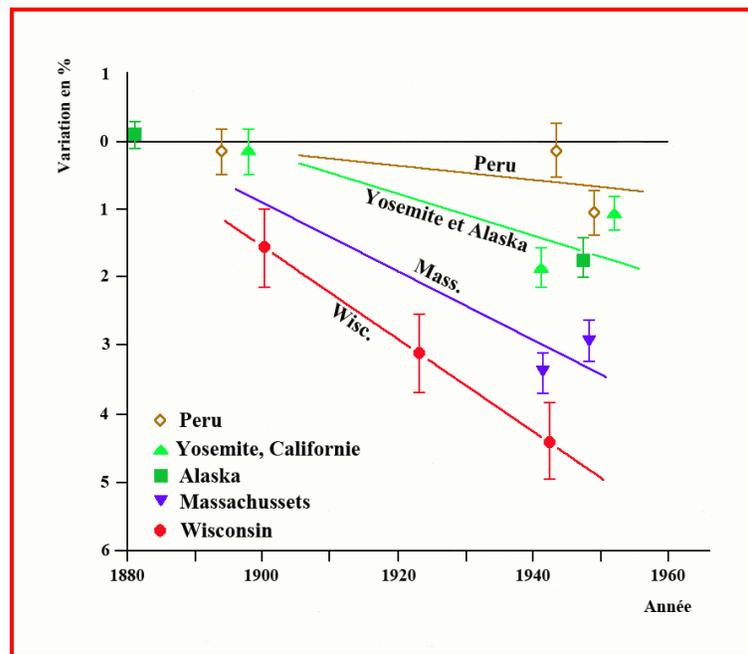
Ces résultats n'invalident pas la méthode, mais limitent sa précision.

**Suess** a, par contre, constaté des variations significatives entre l'activité spécifique d'échantillons de bois récent des régions industrielles et des régions non industrielles <sup>(12)</sup>. La combustion de quantités croissantes de carbone fossile (charbon et pétrole) augmente en effet la teneur atmosphérique en C<sub>12</sub> et en C<sub>13</sub> dans les régions industrielles.

Cet effet, appelé *effet Suess* (fig. 3), atteint un **maximum de 3%** dans les environs de Chicago <sup>(13)</sup>.

Enfin, **MÜNNICH** a signalé récemment que des mesures précises montraient, **depuis 1954**, un accroissement régulier et non négligeable de la teneur de l'atmosphère en C<sub>14</sub> <sup>(14)</sup>.

Cet accroissement est dû à la quantité importante de C<sub>14</sub>, produite par les essais nucléaires. Il a déjà, à l'heure actuelle, plus que compensé l'*effet Suess*. Cet accroissement rapide de la teneur en C<sub>14</sub>, principalement dans l'hémisphère nord, a permis d'étudier les échanges atmosphériques entre hémisphère nord et hémisphère sud <sup>(15)</sup>.



**Fig. 3 – Réduction de l'activité spécifique du carbone naturel (après élimination de la décroissance naturelle (ARNOLD & ANDERSON)**

<sup>12</sup> H.E. SUESS, *Science*, Vol. 122, 415 (1955).

<sup>13</sup> - F.N. HAYES, E.C. ANDERSON, W.H. LAUGHAM, *Conf. on the Peaceful Uses of Nuclear Energy*, Geneva (1958), vol. 14, 182.

- J.R. Arnold, E.C. Anderson, *Tellus*, Vol. 9, 28 (1957).

<sup>14</sup> - K.O. MÜNNICH, J.C. VOGEL, *Naturwissenschaft*, Vol. 45, 327 (1958).

- H.E. de Vries, *Science*, Vol. 128, 250 (1958).

<sup>15</sup> K.O. MÜNNICH, J.C. VOGEL, *Naturwissenschaft*, Vol. 45, 327 (1958).

L'ensemble des travaux effectués depuis 13 ans, dans le domaine du datage, confirme donc la validité de la méthode. Les corrections à faire pour tenir compte des variations récentes de l'activité du carbone sont aujourd'hui connues. [Nous sommes à l'époque dans les années 1960. Ndlr]

On a pu relever cependant des différences dans l'activité du carbone pris comme référence moderne par différents laboratoires. Ces différences entraînaient des variations systématiques de mesure, tous les échantillons d'un laboratoire étant trop jeunes ou trop vieux de 100 à 300 ans par rapport aux mesures d'autres laboratoires<sup>(16)</sup>. Pour éliminer cette difficulté, le "National Bureau of Standard" de Washington distribue depuis deux ans un composé de carbone utilisé comme référence par tous les laboratoires de datage.

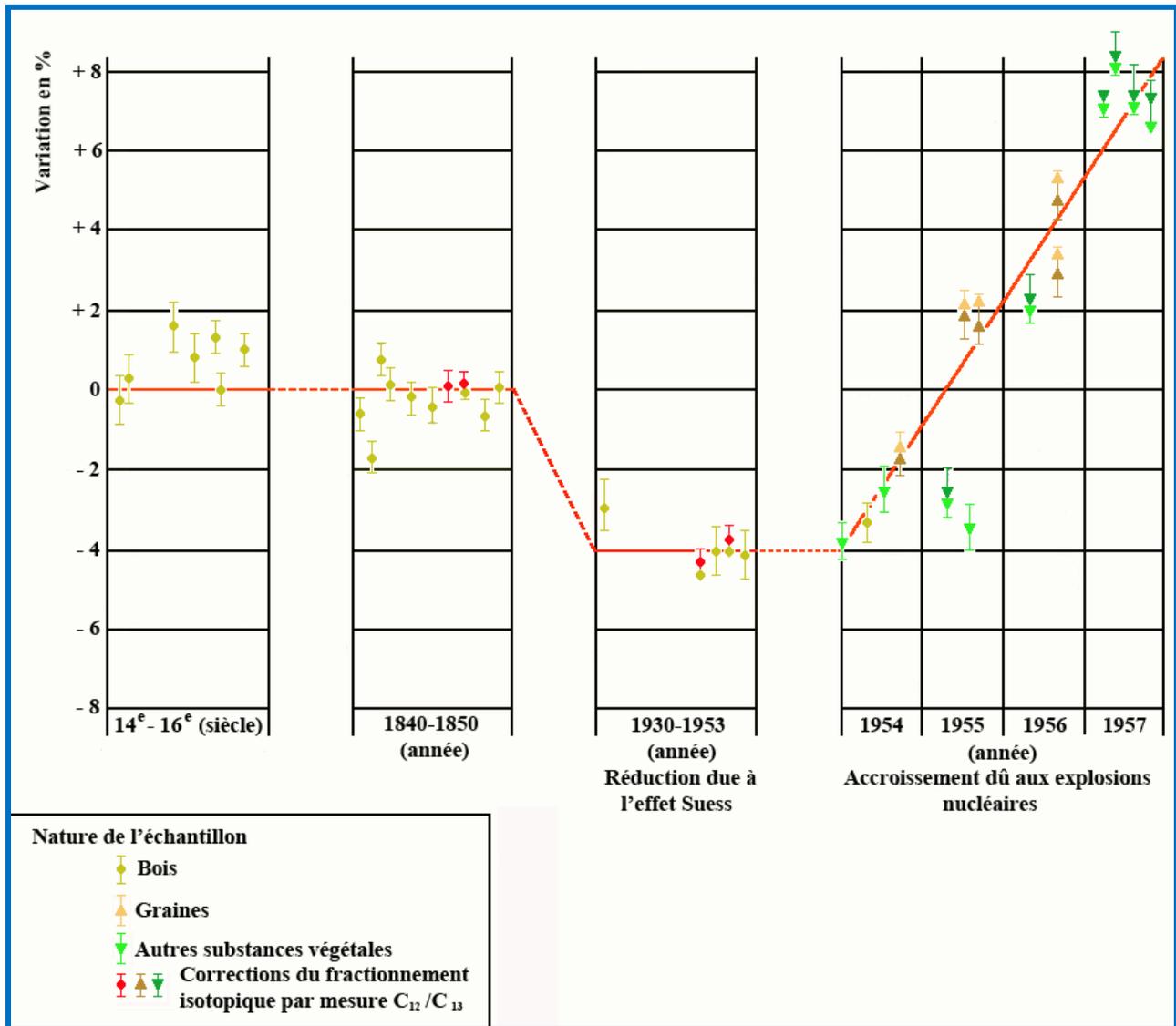


Fig. 4 – Variations de l'activité du carbone naturel dans le temps (après élimination de la croissance exponentielle) (MÜNNICH & VOGEL)

## GLOSSAIRE

16 K.O. MÜNNICH, H.G. OSTLUND, H.E. de VRIES, *Nature*, Vol. 182, 1432 (1958).

**Curie** : unité de radioactivité, exprime la quantité de matière radioactive qui subit  $3,7 \cdot 10^{10}$  dés./sec.

**Electronvolt** : unité énergétique égale à l'énergie acquise par un électron qui abaisse son énergie potentielle de 1 volt.

**Isotope** : atomes d'un élément chimique dont les noyaux sont différents quant à la masse et leur constitution ; en d'autres termes, ce sont des atomes dont les noyaux ont un nombre Z donné de protons et des nombres N différents de neutrons.

**Radioactivité bêta** : processus au cours duquel un noyau émet un électron  $e^-$  et un antineutrino  $\bar{\nu}$ , tandis qu'un de ses neutrons se transforme en un proton.

**Section efficace** : mode d'expression particulier de la probabilité d'une interaction d'un type déterminé entre un rayonnement incident et une particule ou un système de particules constituant la cible. C'est le quotient du nombre d'interactions N se produisant dans l'unité de temps, par la densité de flux  $\Phi$  du rayonnement incident :  $N/\Phi$ .

(A suivre : « Opérations à effectuer pour dater un échantillon »)

