Zeitschrift: Archives des sciences et compte rendu des séances de la Société

Herausgeber: Société de Physique et d'Histoire Naturelle de Genève

**Band:** 46 (1993)

Heft: 2: Archives des Sciences

**Artikel:** La méthode des traces de fission

Autor: Deferne, Jacques

**DOI:** https://doi.org/10.5169/seals-740452

#### Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

#### **Conditions d'utilisation**

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

#### Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

**Download PDF: 20.11.2025** 

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Archs Sci. Genève	Vol. 46	Fasc. 2	pp. 221-230	Septembre 1993	
					- 1

# LA MÉTHODE DES TRACES DE FISSION

PAR

### Jacques DEFERNE\*

### **HISTORIQUE**

L'étude des traces de fission de l'uranium dans les minéraux a débuté en 1962 avec les études importantes de Price & Walker (1962). A partir de cette date, de nombreux travaux ont été publiés sur le sujet, et il est vite apparu que les traces de fission fossiles observées dans certains minéraux pouvaient servir à la mesure de l'âge des roches.

Depuis longtemps déjà, divers auteurs (Patel & Tolanski, 1957, Silk & Barnes, 1959) avaient observé l'apparition de traces de corrosion sur certains minéraux soumis à une attaque chimique, sans toutefois proposer une explication sur leur origine.

De leur côté, Silk & Barnes signalent déjà en 1959, que de minces feuillets de mica bombardés par des fragments de fission, laissent apparaître les traces du passage de ces particules. Visibles uniquement au microscope électronique, ce sont de fines traînées rectilignes d'un diamètre inférieur à 300 Å et d'une longueur supérieure à 4 microns.

Price et Walker, les premiers, montrent que ces traces peuvent être "révélées" par une attaque chimique appropriée qui agrandit leur diamètre et permet de les observer avec un microscope ordinaire. Ils sont les premiers encore à mettre en évidence la présence dans les minéraux de traces dues à la fission spontanée de l'U<sup>238</sup>. Du même coup ils déterminent l'origine des traces de corrosion observées auparavant par Patel, Tolanski, Ramanathan et bien d'autres auteurs encore.

A partir de ce moment de nombreuses études paraissent sur ce sujet sous l'impulsion dynamique de plusieurs auteurs, plus particulièrement Price, Fleischer et Walker.

# LA FISSION SPONTANÉE

Plusieurs éléments lourds, notamment les deux isotopes de l'uranium et le thorium, peuvent se scinder spontanément en deux éléments plus légers. C'est la fission spontanée, un phénomène aléatoire analogue à celui de la décroissance radioactive, mais beaucoup plus rare. Les constantes de fission ont pu être mesurées. Le tableau ci-contre

<sup>\*</sup> Muséum d'Histoire naturelle, 1, route de Malagnou, B.P. 6434, CH-1211 Genève 6.

2 LA MÉTHODE

en montre les valeurs de ces constantes pour l'uranium et le thorium, comparées à celles des constantes de décroissance radioactive.

	Constantes de fission et constantes	radioactives
	constante de fission $\lambda_f$	constante radioactive $\lambda_r$
$U^{238}$	6.85 x 10 <sup>-17</sup> /an	1.54 x 10 <sup>-10</sup> /an
$U^{235}$	3.8 x 10 <sup>-18</sup> /an	$9.72 \times 10^{-10}$ /an
$Th^{232}$	$< 10^{-21}$ /an	$0.50 \times 10^{-10}$ /an

Au vu de ce tableau, on constate que les événements de fission spontanés sont provoqués presqu'exclusivement par l'U<sup>238</sup>. En effet, l'U<sup>235</sup> est non seulement 140 fois moins abondant que l'U<sup>238</sup>, mais sa constante de fission est aussi 18 fois plus petite. Quant au Th<sup>232</sup>, dont l'abondance dans les roches est du même ordre de grandeur que celle de l'uranium naturel, sa constante de fission est environ 10'000 fois plus petite. On peut donc affirmer que 99.9 % des traces de fission fossiles sont dues à l'U<sup>238</sup>.

#### MODE DE FORMATION DES TRACES

L'énergie dégagée au cours d'un événement de fission est considérable. Elle est d'environ 200 MeV, alors que dans les réactions chimiques les plus exothermiques elle est de l'ordre de 1 eV par molécule. Cette énergie est émise sous une forme cinétique communiquée principalement aux deux fragments de fission.

Lorsqu'un événement de fission a lieu, les deux fragments produits s'éloignent l'un de l'autre avec des vitesses de l'ordre de 10<sup>4</sup> km/s. Par leur déplacement ils provoquent l'ionisation des atomes proches de leur trajectoire. Ceux-ci se repoussent mutuellement, perturbant le réseau cristallin et laissant un vide sur le trajet des fragments de fission.

Les perturbations apportées au réseau cristallin, le long et au voisinage du trajet des fragments de fission, rend cette zone plus fragile, et toute attaque chimique se propage beaucoup plus facilement le long de la trace que dans la partie non touchée du minéral. Il est donc possible de rendre ces traces visibles au moyen d'une attaque chimique appropriée.

Si on chauffe le minéral hôte des traces de fission, son réseau cristallin est restauré et les traces disparaissent.

#### APPARENCE DES TRACES DE FISSION

Après avoir été "révélées" au moyen d'un agent chimique approprié, les traces deviennent visibles au microscope. Elles ont l'apparence de petits cônes de faible ouverture. Leur longueur, comprise entre 5 et 25  $\mu$ , varie légèrement d'une espèce minérale à l'autre. Leur diamètre dépend du temps d'attaque et peut atteindre 3 à 4  $\mu$ .

Lorsque le temps d'attaque a été judicieusement choisi, on obtient des traces facilement discernables des imperfections du minéral :

- 1. elles forment des imperfections linéaires,
- 2. elles sont géométriquement orientées au hazard,
- 3. elles ont une longueur limitée (jusqu'à 25 μ),
- 4. elles n'apparaissent pas si on a préalablement chauffé le minéral,
- 5. elles atteignent toutes la surface d'attaque.

#### LA FISSION INDUITE

On peut provoquer articiciellement la fission de certains éléments lourds en les exposants à un flux de neutrons. C'est le mécanisme utilisé dans les centrales nucléaires conventionnelles et les surgénérateurs. Si on n'utilise que des neutrons lents (dits "neutrons thermiques") la fission n'intervient pratiquement que pour les atomes d'U<sup>235</sup>. En effet, la section efficace de cet isotope est de 582 barns<sup>1</sup> alors qu'elle n'est que de 0.5 et 0.2 millibarn pour U<sup>238</sup> et Th<sup>232</sup> exposés aux mêmes neutrons. En absorbant un neutron, l'U<sup>235</sup> se transforme en U<sup>236</sup> immédiatement fissile avec émission de deux ou trois neutrons.

Chaque atome d'U<sup>235</sup> peut se scinder de façon différente en donnant des fragments de fission dont les masses atomiques sont comprises généralement entre 72 et 166. Des expériences délicates ont permis de mesurer le rendement de la fission en fonction du poids atomique des produits.

L'irradiation doit se faire dans un réacteur atomique, à l'intérieur d'un canal à eau lourde pour garantir un rapport de flux thermique/flux rapide élevé. La mesure du flux peut se faire, par exemple, en adjoignant à l'échantillon une bille de silice et une plaquette de cobalt. Le comptage des particules  $\beta$  émises par  $S^{31}$  et du rayonnement  $\gamma$  émis par  $Co^{60}$  permet de mesurer la valeur du flux de neutrons auquel les échantillons ont été exposés.

## DENSITÉ DES TRACES ET ÂGE DES MINÉRAUX

En première approximation et en faisant abstraction de la décroissance radioactive de l' $U^{238}$ , le nombre de traces par unité de volume vaut :

$$\frac{\text{nb. traces}}{\text{cm}^3} = \text{N}^{238} \, \lambda_f \, \text{T}$$
où  $\text{N}^{238}$  = nb. d'atomes d' $\text{U}^{238}$  renfermé dans un cm³ du minéral  $\lambda_f$  = constante de fission de  $\text{U}^{238}$  T = âge du minéral

 $<sup>^{\</sup>rm 1}$  unité d'efficacité de capture d'une particule par un élément équivalent à  $10^{\rm -24}\,\rm cm^2$  par noyau

224 LA MÉTHODE

Quant à la densité de traces spontanées observée sur une section interne polie du minéral elle vaut :

$$\rho_s = 2 N^{238} \lambda_f T R_s \cos^2 \vartheta$$

où  $R_s$  = longueur moyenne des traces  $\cos^2 \vartheta$  = facteur correctif où  $\vartheta$  est la demi-ouverture du cône de la trace.

La mesure de la teneur en uranium s'effectue d'une manière indirecte. Après avoir "effacé" les traces spontanées fossiles en chauffant l'échantillon, on expose celui-ci à un flux de neutrons thermique, puis on mesure les traces induites par la fission de l'U<sup>235</sup>. La densité observée dépend de la relation suivante :

$$\rho_i = 2 N^{238} \phi \sigma R_i \cos^2 \theta$$

où  $N^{235}$  = nombre d'atomes d'U<sup>235</sup> contenu dans un cm<sup>3</sup>  $\phi$  = dose neutronique reçue par l'échantillon  $\sigma$  = section efficace d'U<sup>235</sup>  $R_i$  = longueur moyenne des traces induites

Connaissant le rapport  $U^{238}/U^{235}$  de l'uranium naturel, on calcule le nombre d'atomes d' $U^{235}$  renfermé dans un cm $^3$  d'un minéral par la relation :

$$N^{238} = \frac{\eta \rho_i}{Ri \phi \sigma \cos^2 \vartheta} \quad \text{où } \eta = \frac{U^{238}}{U^{235}} = 137.7$$

$$d' \text{où } T = \frac{\rho_s \phi \sigma R_i \cos^2 \vartheta}{\rho_i \eta \lambda_f R_s \cos^2 \vartheta} = \frac{\rho_s \phi \sigma R_i}{\rho_i \eta \lambda_f R_s}$$
ou encore
$$T^1 = 6.17 \quad \frac{\rho_s \phi}{\rho_i} \quad \text{x } 10^{-8}$$

On voit qu'on a réussi à éliminer de cette équation des termes dont la mesure est difficile (longueur moyenne des traces et angle d'ouverture des cônes) et que les mesures se limitent à la comparaison de densités de traces et à la mesure du flux neutronique.

Il est évident qu'une certaine erreur systématique due aux difficultés d'observation apparaît lors de la mesure des densités de traces. En premier lieu il est difficile de distinguer les imperfections originelles du cristal des traces très courtes. On peut limiter les effets de ces erreurs en s'arrangeant à ce que l'ordre de grandeur des densités des traces spontanées et induites soit la même. Cela n'est possible que si l'on a déjà une idée approximative de l'âge de l'échantillon. La dose neutronique peut alors être estimée par la relation :

 $<sup>^{1}</sup>$  pour des âges inférieurs à  $10^{9}$  ans, l'influence de la décroissance radioactive d' $U^{238}$  est négligeable. Pour des âges plus élevés il faudrait apporter une correction à cette équation.

$$\phi = 1.6 \times 10^7 T_{estim\acute{e}}$$

Si on parvient à obtenir des densités semblables, on peut alors se permettre d'éliminer toutes les traces inférieures à 2µ. Cela évite toute confusion avec des imperfections du minéral. Du point de vue absolu, les densités mesurée ne sont plus tout à fait exactes, mais le rapport des densités spontanées aux densités induites reste correct.

# LIMITES PRATIQUE D'APPLICATION DE LA MÉTHODE

La densité des traces fossiles dans les minéraux est approximativement de 2'000 traces/cm<sup>2</sup> par million d'années d'âge et pour un ppm d'uranium.

Pratiquement, il est souhaitable que la densité des traces soit de l'ordre de 10<sup>4</sup> à 10<sup>5</sup> par cm<sup>2</sup> pour être aisément mesurable. Des densités plus faibles ne sont mesurables qu'au prix de beaucoup de patience et d'une diminution de la précision des mesures. A l'opposé, lorsque les densités sont trop élevées, on n'observe plus qu'un fouillis de traces incomptable.

Minéraux constitutifs	quartz	non mesurable
	feldspath	$< 10^{-4} \text{ ppm}$
	péridots	$10^{-3}$ ppm
	pyroxènes	10 <sup>-3</sup> ppm
	amphiboles	10 <sup>-3</sup> ppm
	muscovite	$10^{-3} \text{ à } 10^{-1} \text{ ppm}$
	biotite	$10^{-2}$ à 1 ppm
Minéraux accessoires	zircon	$1 \text{ à } 10^3 \text{ ppm}$
	sphène	0.1 à 50 ppm
	apatite	10 à 200 ppm
	épidote	5 à 25 ppm
Verre naturel	•	0.1 à 1 ppm

#### EFFACEMENT DES TRACES DE FISSION

De nombreuses expériences de chauffage ont été effectuées sur les minéraux susceptibles de conserver les traces de fission. Lorsqu'on chauffe un minéral, la longueur des traces diminue, puis le nombre de traces par unité de volume diminue aussi. Certains minéraux voient leur traces disparaître rapidement après un chauffage modéré, alors que d'autres au contraire, montrent la particularité de les conserver jusqu'à des températures relativement élevées.

La tableau ci-dessus n'indique malheureusement pas dans quelle mesure les traces peuvent se conserver pendant de très longues périodes. En extrapolant certaines expériences de chauffage menées pendant des laps de temps différents, certains auteurs (Naeser & Faul, 1969) ont essayé de répondre à ce problème. Ils affirment que le sphène peut conserver la totalité de ses traces pendant un milliard d'années si la température ne dépasse pas 200°. La même étude faite sur l'apatite montre que celle-ci est plus sensible au réchauffement, et que pour conserver toutes ses traces pendant ce même laps de temps, la température ne devrait pas dépasser une cinquantaine de degrés.

#### **CONCLUSION**

Si, à première vue, la datation par traces de fission paraît séduisante, il n'en demeure pas moins qu'elle présente quelques inconvénients majeurs qui n'ont pas permis qu'elle se développe largement. La part des datations effectuées par cette méthode reste assez marginale comparée à celles obtenues par les méthodes basées sur la décroissance de l'uranium, du rubidium ou du potassium.

Si la technique de comptage des densités de traces ne nécessite qu'un microscope et quelques agents chimiques, la production des traces induites implique l'accès à un réacteur nucléaire possédant un canal à eau lourde et équipé d'un dispositif permettant de contrôler avec précision le flux neutronique.

Par ailleurs l'effacement des traces par des apports de chaleurs relativement modestes, obère sérieusement la crédibilité de la méthode en ce qui concerne la datation. Par contre ce phénomène peut permettre de reconstituer, dans une certaine mesure, l'histoire thermique d'une roche par la comparaison des âges obtenus par les méthodes basées sur la décroissance radioactive et celle des traces de fission.

Si on consulte la littérature récente, les publications qui font intervenir les traces de fission ont généralement pour sujet l'histoire thermique d'ensembles de roches.

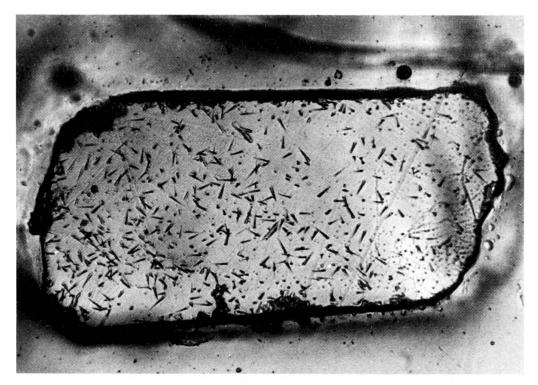


Fig. 1.

Massif de Biella: traces induites sur une surface interne d'une apatite parallèle à l'allongement du minéral. Densité de traces :  $1.61 \times 10^6$  traces/cm<sup>2</sup>.

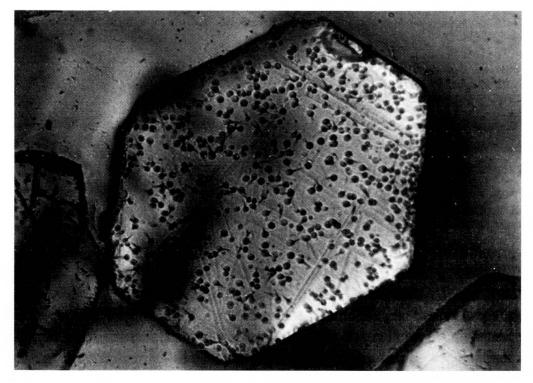


Fig. 2.

Massif de Biella: traces induite sur une surface interne d'une apatite parallèle à (0001). On remarque l'élargissement rapide des traces sur leur partie supérieure.



 $\label{eq:Fig.3} Fig. \ 3.$  Vue agrandie de la photo  $N^\circ$  1 montrant l'allure conique des traces.

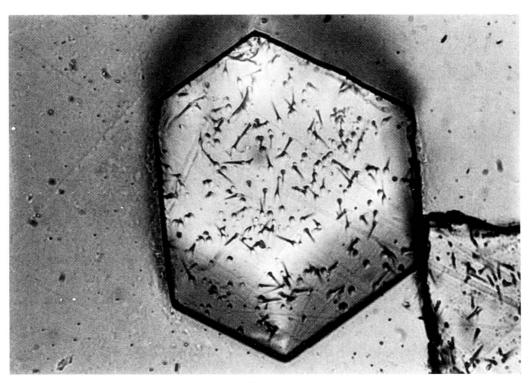


Fig. 4.

Massif d'Adamello: section (0001) d'une apatite montrant les traces induites.

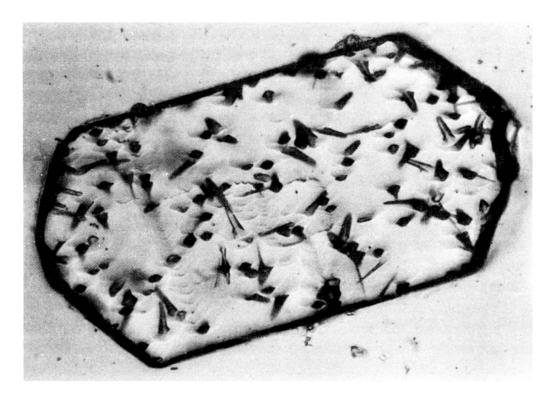


Fig. 5.

Attaque propongée sur une apatite. Les traces perdent leur allure conique et deviennent rhombiques.

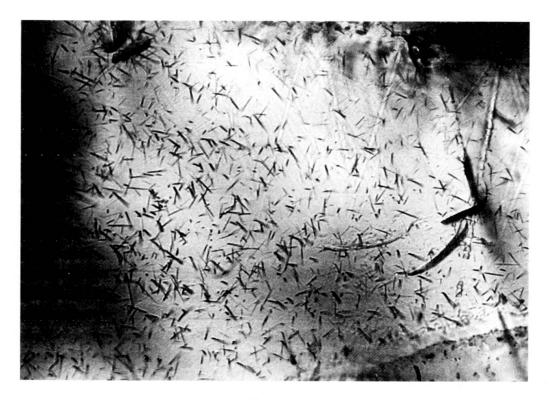


Fig. 6.

Massif du Bergell: traces spontanées dans le sphène. Densité: 3.3 x 10<sup>6</sup> traces/cm<sup>2</sup>.

### BIBLIOGRAPHIE DE QUELQUES ARTICLES CLASSIQUES

- Deferne, Jacques, 1976.- Essai d'application de la méthode des traces de fission à la datation de quelques massifs éruptifs du Sud des Alpes. Thèse N° 1596, Université de Genève.
- FLEISCHER, R. L., et P.B. PRICE, 1964.- Techniques for geological dating of minerals by chemical etching of fission fragment tracks. *Geoch. and Cosm. Acta*, **28**, 1705-1714.
- FLEISCHER, R. L., P.B. PRICE, et R.M. WALKER, 1969.- Nuclear tracks in solids. *Scientific American*, **6**, 30-66.
- NAESER, C.W. and H. FAUL, 1969.- Fission track annealing in apatite and sphene. *Jour. Geophys. Res.*, **74**, 705-709.
- PATEL, A.R. et S. TOLANSKY, 1957.- The etching of crystal cleavages. Proc. Roy. Soc. A243, 33-47.
- PATEL, A.R. et S. RAMANATHAN, 1962.- Etching of mica cleavages. Acta. Cryst, 15, 860-862.
- PRICE, P.B. et R.M. WALKER, 1962.- Electron microscope observation of etched tracks from spallation recoils in mica. *Phys. Rev. Letters*, **8**, 217-219.
- PRICE, P.B. et R.M. WALKER, 1962.- Observation of fossil particle tracks in natural micas. *Nature*, **196**, 732-734.
- SILK, E.C.H. et R.S. BARNES, 1959.- Examination of fission fragment tracks with an electron-microscope. *Phil. Mag.*, **4**, 970-972.