Chapitre XI

Étude des déséquilibres radioactifs et applications

Benoît VILLEMANT

Laboratoire de Géochimie Comparée et Systématique, Université Pierre et Marie Curie et Institut de Physique du Globe, 4 place Jussieu, 75252 PARIS cedex 05.

1. RAPPELS SUR LES CHAÎNES DE DÉCROISSANCE RADIOACTIVE

1.1 Notion d'équilibre séculaire

1.2 Perturbations de l'équilibre séculaire et méthodes de datation

1.2.a Limites de temps

1.2.b Limites géochimiques

2. LES ISOTOPES D'INTÉRÊT GÉOCHIMIQUE

2.1 Les méthodes dites « d'accumulation »

2.1.a Premier type de diagramme isochrone ($^{230}Th/^{232}Th$) vs ($^{238}U/^{232}Th$)

2.1.b Deuxième type de diagramme isochrone ($^{230}Th/^{234}U$) vs ($^{234}U/^{238}U$)

2.2 Les méthodes dites « d'excès »

3. APPLICATION À LA DATATION DES CORAUX PAR LA MÉTHODE ^{234}U-^{230}Th

3.1 Principe de la méthode

3.2 Datation des coraux de La Barbade : variations du niveau de la mer depuis la dernière glaciation

3.2.a Variations du niveau de la mer

3.2.b Calibration du ^{14}C par la méthode ^{234}U-^{230}Th

4. APPLICATION DES DÉSÉQUILIBRES RADIOACTIFS AUX SYSTÈMES VOLCANIQUES

4.1 Datation et constantes de temps

4.2 Rapports isotopiques initiaux

5. CONCLUSION

BIBLIOGRAPHIE

ANNEXE

Étude des déséquilibres radioactifs et applications

Benoît VILLEMANT

Les actinides (U, Pa, Th, Ac) sont les plus lourds des éléments naturels. Leurs isotopes sont néanmoins tous instables. ^{238}U, ^{235}U et ^{232}Th sont les pères de chaînes de décroissances radioactives incluant tous les isotopes radioactifs naturels depuis ceux de $_{81}Tl$ jusqu'à ceux de $_{92}U$, soit 42 isotopes. Dans cette famille, seuls certains isotopes de Bi, Pb et Tl sont stables (^{209}Bi, ^{204}Pb, ^{206}Pb, ^{207}Pb, ^{208}Pb, ^{203}Tl et ^{205}Tl). L'examen des propriétés de ces différents éléments indique une grande variété de comportements géochimiques qui, associés à des périodes de décroissance radioactive allant de la fraction de seconde à $1{,}4.10^{10}a$ (soit une variation dont l'ordre de grandeur est 10^{24}!) laisse prévoir un large champ d'application radiochronologique et de traçage isotopique. Ces propriétés sont effectivement largement exploitées en géologie, océanographie, hydrologie, paléoclimatologie, volcanologie et archéologie depuis les années 50.

Dans cet article, après un rappel sur la physique nucléaire des chaînes de décroissance radioactive, nous indiquerons les bases des raisonnements utilisés dans l'étude des processus géochimiques et nous illustrerons cet exposé théorique par deux exemples parmi les plus significatifs des progrès spectaculaires de ces méthodes depuis une dizaine d'années.

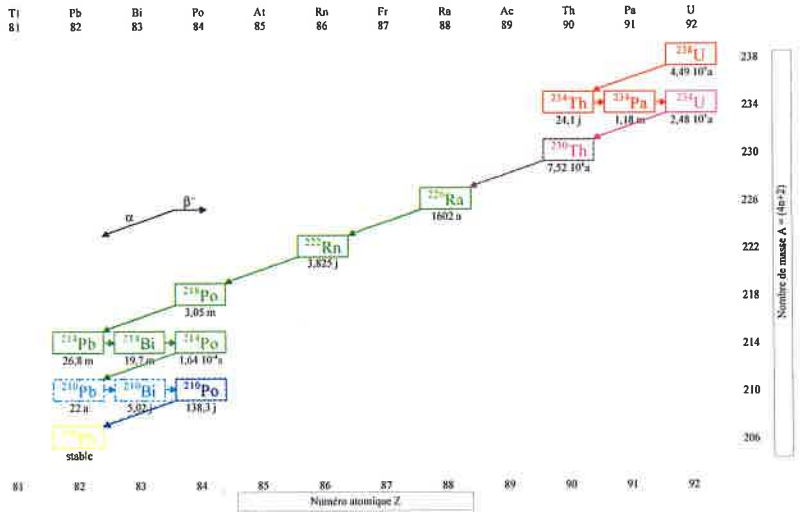
I. RAPPELS SUR LES CHAÎNES DE DÉCROISSANCE RADIOACTIVE

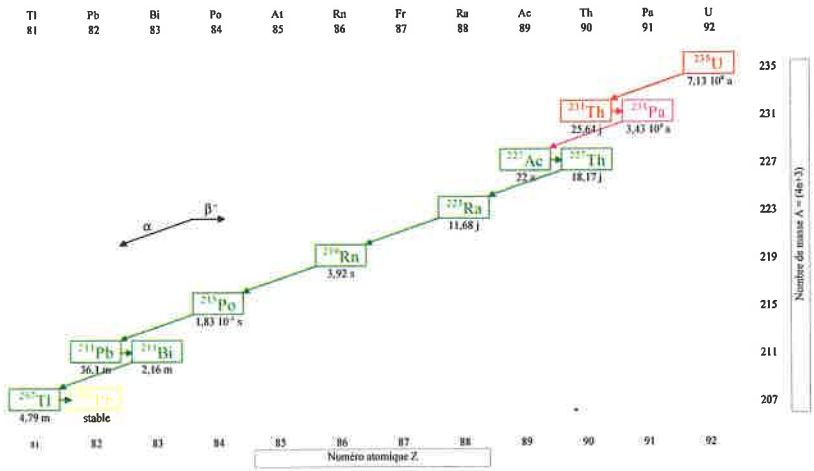
Il existe trois chaînes de décroissance radioactive naturelles dont les **isotopes pères** sont ^{238}U, ^{235}U et ^{232}Th. Chaque chaîne est caractérisée par la succession de 10 à 14 réactions nucléaires α ou β^-. Chaque chaîne aboutit à un isotope stable du plomb (^{206}Pb, ^{207}Pb et ^{208}Pb respectivement). Tous les isotopes intermédiaires sont à la fois **radiogéniques** (issus d'une décroissance radioactive) et **radioactifs** (figure 1).

Les lois de décroissance radioactives pour les isotopes pères sont les plus simples car ils sont seulement radioactifs :

$$^{232}Th \rightarrow {}^{228}Ra + {}^{4}He(\alpha) \qquad T_{232} = 1{,}39.10^{10}\ a$$

$$^{232}Th = {}^{232}Th^{o}\, e^{-\lambda_{232} t} \quad \text{avec} \qquad \lambda_{232} = \frac{Ln2}{T_{232}}$$





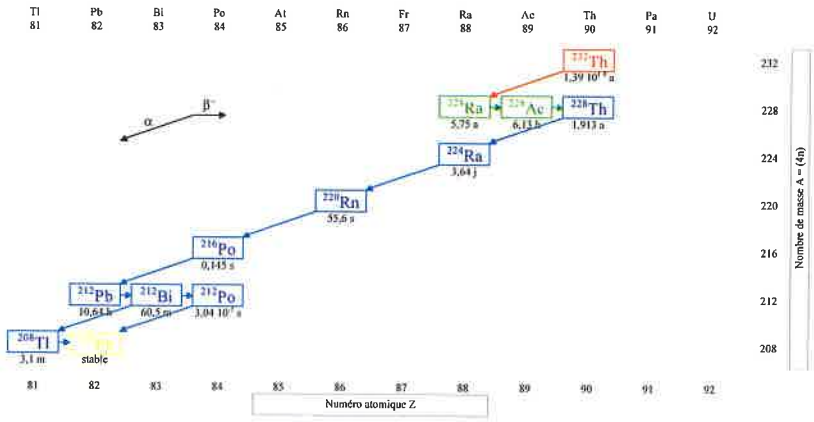


Figure 1 : Les trois chaînes de décroissance radioactives naturelles : Diagramme Numéro atomique (nombre de protons du nucléïde) - Nombre de masse (nombre de protons + neutrons).
Ia : ^{238}U ; **Ib** : ^{235}U ; **Ic** : ^{232}Th.

Sous chaque isotope est indiquée la période radioactive :
a : années, j : jours, h : heures, m : minutes, s : secondes).

L'isotope père (en rouge, toujours radioactif α) donne naissance à une série d'isotopes eux-mêmes radioactifs α (diminution du nombre de masse de 4 unités et du numéro atomique de 2 unités) ou β- (augmentation du numéro atomique d'une unité sans modification du nombre de masse) jusqu'à un isotope du plomb stable (en jaune). Les branchements secondaires n'ont pas été représentés dans ce diagramme. Les isotopes d'une même chaîne peuvent être groupés en plusieurs familles (de même couleur dans le diagramme) caractérisées par un retour très rapide à l'état d'équilibre séculaire partiel (moins d'un an) après un fractionnement isotopique. On voit par exemple que dans la chaîne de ^{232}Th, l'équilibre séculaire est rétabli en moins d'un mois pour tous les isotopes fils de ^{228}Th, et en moins de 40 ans pour l'ensemble de la chaîne .

Par contre la loi de décroissance radioactive de chaque isotope intermédiaire est complexe car elle dépend :

- de la constante radioactive de l'isotope considéré,
- des constantes radioactives de tous les isotopes qui le précèdent dansla chaîne.

Cette loi a été démontrée par H. Bateman en 1910. (Voir **chapitre IV**)

Cependant, cette loi générale peut être simplifiée dans de nombreux cas. En effet, on constate (figure 1) que les valeurs des périodes des différents isotopes sont très variables (de la fraction de seconde à 10^{10}a) et permettent de négliger certaines constantes radioactives devant d'autres. Ces considérations physiques et certaines caractéristiques chimiques permettent souvent de réduire la portion de chaîne considérée au cas simple :

$A \longrightarrow B \longrightarrow C$ avec $\lambda_A << \lambda_B$ (voir les exemples traités plus bas).

La loi de décroissance radioactive de l'isotope B s'écrit alors :

$$\frac{dN_B}{dt} = \left[\frac{dN_B}{dt}\right]_{T_A} + \left[\frac{dN_B}{dt}\right]_{T_B} \qquad (1)$$

où le premier terme de la somme représente la petite quantité de B créée par la décroissance radioactive du père A et le deuxième terme, la petite quantité de B

détruite par sa propre radioactivité.

Par définition :

$$\left[\frac{dN_B}{dt}\right]_{T_A} = -\frac{dN_A}{dt} = \lambda_A N \quad \text{avec} : N_A = N_A^o e^{-\lambda_A t}$$

et :

$$\left[\frac{dN_B}{dt}\right]_{T_B} = -\lambda_B N_B$$

en remplaçant et réarrangeant, (1) devient :

$$\frac{dN_B}{dt} + \lambda_B N_B = \lambda_A N_A^o e^{-\lambda_A t} \qquad (2)$$

C'est une équation différentielle du 1er degré avec second membre. En intégrant et en utilisant les conditions aux limites $N_B = N_E^o$ à t = 0, on obtient :

$$N_B = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} N_A \left[1 - e^{-(\lambda_B - \lambda_A)t}\right] + N_B^o e^{-\lambda_B t}$$

si $\lambda_A << \lambda_B$

$$N_B \approx \frac{\lambda_A}{\lambda_B} N_A \left[1 - e^{-\lambda_B t}\right] + N_B^o e^{-\lambda_B t} \qquad (3)$$

soit encore :

$$\lambda_B N_B \approx \lambda_A N_A \left[1 - e^{-\lambda_B t}\right] + \lambda_B N_B^o e^{-\lambda_B t}$$

Par convention, **l'activité** $\lambda_A N_A$ d'un isotope A est notée **(A)**.

L'équation s'écrit alors :

$$(B) = (A)\left[1 - e^{-\lambda_B t}\right] + (B)^o e^{-\lambda_B t} \qquad (4)$$

Le deuxième terme de la somme décrit l'évolution du stock initial d'atomes de B (N_B^o) au cours du temps et le premier terme, l'évolution plus complexe des atomes de B à la fois produits par A et se désintégrant continûment suivant la période de B.

1.1 Notion d'équilibre séculaire

Dans les réactions de décroissance radioactives simples (A → B stable), on définit la notion de **radioactivité éteinte**, c'est-à-dire le temps t_E au bout duquel il ne subsiste plus que 1% (ou 1‰) de l'activité initiale (ou du nombre d'atomes initial). La

radioactivité est donc éteinte à 1% près au bout du temps t_E tel que :

$$N = \frac{N^o}{100} = N^o e^{-Ln2\frac{t_E}{T}} \quad \text{soit,} \quad t_E = \frac{2Ln10}{Ln2} T \cong 6T$$

Dans les chaînes de décroissance radioactive, cette notion n'est valable que pour le père de la chaîne. Par contre, on peut montrer qu'une chaîne de décroissance radioactive, quel que soit son état initial tend vers un état d'équilibre, appelé **équilibre séculaire**, caractérisé par l'égalité des activités de tous les isotopes de la chaîne :

$$\lambda_i N_i = \lambda_p N_p, \ \forall i$$

(où l'indice p représente le père, utilisé comme référence).

Dans le cas de l'équation simplifiée (3),

si t est grand, $N_B^o e^{-\lambda_B t}$ tend vers 0 et $1 - e^{-\lambda_B t}$ tend vers 1,

d'où $\lambda_B N_B \cong \lambda_A N_A$.

t grand signifie par exemple $e^{-\lambda_B t} \leq 10^{-2}$ soit $t \geq 6T_B$.

Physiquement, la notion d'équilibre séculaire* correspond à l'établissement d'un état stationnaire, c'est-à-dire un état où pour chaque isotope intermédiaire de la chaîne (c'est-à-dire sauf le père et le fils stable), la quantité d'isotope produit est égale à la quantité d'isotope détruit par radioactivité. On notera que cela ne signifie pas que l'activité (λN) n'évolue pas au cours du temps (au contraire, elle décroît continûment pour chaque isotope), mais qu'elle est identique pour tous les isotopes de la chaîne. On démontre que cet état d'équilibre est atteint au bout d'un temps $t \cong 6T_I$ où T_I **représente la plus longue période des isotopes intermédiaires.**

Enfin, si l'on considère seulement des portions de chaîne de décroissance radioactive, on peut définir la notion d'équilibre partiel, correspondant au retour à l'état d'équilibre séculaire de la portion de chaîne considérée.

1.2 Perturbations de l'équilibre séculaire et méthodes de datation

Ainsi, toutes les chaînes de décroissance radioactive **en système clos** tendent vers un état d'équilibre séculaire. Si l'on introduit une perturbation chimique dans ce système en extrayant ou en ajoutant un ou plusieurs de ces éléments (échappement de radon gazeux par exemple), on crée un déséquilibre dans la chaîne. Si le système évolue à nouveau en système fermé, la chaîne radioactive retrouvera son état d'équilibre au bout d'un temps t fonction de la période de l'isotope modifié ($t \approx 6$ T de l'isotope modifié). Tant que le système n'a pas retrouvé son état d'équilibre, la mesure des rap-

* *en anglais :* secular equilibrium. *L'usage a consacré le terme d'équilibre séculaire bien qu'il contienne une notion de caractère cyclique («qui a lieu tous les cent ans», Le Robert, 1997). Ce terme n'est donc pas ici exactement adapté à la notion d'état stationnaire, c'est à dire d'un état équilibre qui une fois atteint, n'est plus modifié au cours du temps.*

ports isotopiques de la chaîne permet de calculer l'âge de la perturbation : c'est le principe de la chronologie de chaîne de décroissance radioactive. Dans le cas d'un départ de Rn, par exemple, on pourra dater une perturbation jusqu'à 23 j pour ^{222}Rn (chaîne de ^{238}U), 6 mn environ pour ^{220}Rn (chaîne de ^{232}Th) et 24 s seulement dans le cas de ^{219}Rn (chaîne de ^{235}U) ; (*cf.* figure 1). Suivant le type d'isotope considéré, c'est-à-dire suivant sa période et son comportement chimique, on pourra dater une grande variété de processus géochimiques.

Les limites de l'ensemble de ces méthodes sont donc de deux types :

1.2.a LIMITES DE TEMPS

La limite supérieure théorique (retour à l'état d'équilibre à 1% près) est, nous l'avons vu, égale à environ 6 fois T. Pour ^{230}Th, par exemple, le domaine de temps mesurable est donc théoriquement de 0 - 450 000 ans. Ces limites peuvent être effectivement atteintes lors de la datation de systèmes simples tels que les coraux qui nécessitent la mesure de deux rapports isotopiques

$$\left(\begin{pmatrix} {}^{234}U \\ {}^{238}U \end{pmatrix} \text{ et } \begin{pmatrix} {}^{230}Th \\ {}^{234}U \end{pmatrix}\right)$$

sur un seul échantillon (voir ci-dessous). Par contre dans les systèmes magmatiques, cette même méthode de datation requiert l'établissement d'une droite isochrone à partir de mesures isotopiques sur plusieurs échantillons. L'erreur propagée sur l'âge est une fonction complexe des erreurs analytiques et de la variabilité géochimique du système étudié se traduisant par une dispersion des couples de mesures autour de la droite de régression. Ainsi dans ces sytèmes magmatiques, il n'est pas possible de distinguer un état hors équilibre d'un état d'équilibre au delà de 300 000 ans. Les limites réelles des méthodes de datation par les déséquilibres radioactifs seront très variables suivant le type de matériel géologique étudié et la méthode analytique utilisée.

1.2.b LIMITES GÉOCHIMIQUES

Pour créer un déséquilibre dans une chaîne de décroissance radioactive, il faut induire un fractionnement chimique entre deux isotopes de deux éléments chimiques différents. De tels fractionnement sont évidents pour quelques éléments tels que le radon qui est un gaz rare et s'échappe aisément des systèmes géologiques (minéraux, eau, ...). L'intérêt géochronologique d'un tel élément reste toutefois limité à cause de très courtes périodes de ses isotopes (figure 1). Inversement les fractionnements ^{238}U-^{230}Th sont d'un intérêt géochimique majeur car ils permettent de combler une lacune chronologique importante dans les méthodes classiques : la période de ^{230}Th (75 200 a) est en effet comprise entre celle du ^{14}C ($\approx$ 5.700 a) et les périodes très longues de ^{40}K ou ^{87}Rb (^{a} 10^{10}-10^{11} a). U et Th ont couramment des comportements chimiques très différents en milieu supergène, par contre ils ont des comportements similaires en milieu endogène. En effet, le thorium est toujours sous la forme Th^{4+}, tandis que l'uranium est soit sous la forme U^{4+}, soit sous la forme U^{6+} suivant les conditions oxydo-réductrices. En milieu réducteur, U et Th ont donc même com-

portement et c'est le cas des milieux endogènes. En milieu plus oxydant, caractéristique des milieux supergènes, une partie de l'uranium est sous forme U^{6+} et peut former, par exemple, des composants très solubles en milieu aqueux, contrairement à U^{4+} et Th^{4+}.

En conclusion, comme toutes les méthodes géochronologiques, les chronologies utilisant les chaînes de décroissance radioactive ont des limites d'application liées à la fois aux périodes et aux comportements géochimiques des isotopes. Puisqu'elles comportent une grande variété d'éléments chimiques et de périodes radioactives, les chaînes de décroissance radioactive présentent des potentialités chronologiques très importantes.

Les développements récents des méthodes nucléaires et de la spectrométrie de masse ont permis des progrès spectaculaires dans l'analyse isotopique et ainsi dans la précision des datations et l'élargissement des domaines d'application de ces méthodes géochronologiques en Sciences de la Terre, Sciences de l'Environnement ou en Archéométrie. Après un aperçu général de ces méthodes et de leurs applications, deux exemples significatifs de ces progrès seront présentés :

- mesure des variations du niveau de la mer depuis la dernière glaciation par la méthode 234U-230Th ;
- application des déséquilibres radioactifs aux systèmes volcaniques.

2. LES ISOTOPES D'INTÉRÊT GÉOCHIMIQUE

Les pères des trois chaînes de décroissance radioactive ont de très longues périodes, et à condition de dater des événements anciens, c'est-à-dire tels que l'équilibre séculaire est à nouveau réalisé, ils peuvent être utilisés comme des couples chronologiques classiques (père → fils stable) :

$^{238}U \rightarrow {}^{206}Pb$ $\quad T_{238} = 4.5.10^9 a$ $\quad (t > 10^6 a)$

$^{235}U \rightarrow {}^{207}Pb$ $\quad T_{235} = 0.71.10^9 a$ $\quad (t > 2.10^5 a)$

$^{232}Th \rightarrow {}^{208}Pb$ $\quad T_{232} = 13.9.10^9 a$ $\quad (t > 30 a)$

L'utilisation de ces méthodes est détaillée dans le chapitre IV.

Les autres méthodes consistent à dater un événement géochimique ayant perturbé l'équilibre séculaire au sein d'une chaîne radioactive. Leurs domaines d'application sont limités par le laps de temps nécessaire à la restauration de cet équilibre (voir limites de temps et limites géochimiques).

Dans le tableau suivant sont résumées les principales méthodes utilisées ; pour une présentation exhaustive de ces méthodes, le lecteur se reportera à l'ouvrage de référence de Ivanovich et Harmon (1992).

Méthode de datation	Isotope	Période	Domaine de datation	Applications
I Méthodes dites "d'accumulation"				
^{234}U - ^{230}Th ^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th	^{230}Th	$7.52.10^4$ a	$<350.10^3$ a	Datations des carbonates marins et terrestres, roches volcaniques
^{235}U - ^{231}Pa	^{231}Pa	$3.43.10^4$ a	$<150.10^3$ a	
^{238}U - ^{234}U - ^{226}Ra	^{226}Ra	1602 a	$<10^4$ a	
II Méthodes dites "d'excès"				
excès de ^{230}Th	^{230}Th	$7.52.10^4$ a	$<350.10^3$ a	Vitesses de sédimentation ; traceurs hydrogéochimiques
excès de ^{231}Pa	^{231}Pa	$3.43.10^4$ a	$<150.10^3$ a	
excès de ^{210}Pb	^{210}Pb	22.3 a	100 a	
excès de ^{228}Th	^{228}Th	1.91 a	10 a	
excès de ^{234}Th	^{234}Th	24.1 j	100 j	

2.1 Les méthodes dites « d'accumulation »

Elles consistent à dater un système en comparant directement l'activité d'un isotope intermédiaire avec l'un ou plusieurs de ses pères. Ces méthodes utilisent deux types principaux de diagrammes isochrones qui peuvent être illustrés par l'étude de la chaîne $^{238}U \rightarrow ... \rightarrow {}^{234}U \rightarrow {}^{230}Th \rightarrow {}^{226}Ra...$

On considérera ici que la portion de chaîne entre ^{238}U et ^{234}U peut être omise car elle met en jeu 2 isotopes de très courtes périodes (^{234}Th et ^{234}Pa) (voir figure 1) et l'équilibre partiel avec ^{238}U est atteint en moins de six mois.

2.1.a PREMIER TYPE DE DIAGRAMME ISOCHRONE ($^{230}TH/^{232}TH$)VS ($^{238}U/^{232}TH$)

S'il n'y avait pas de fractionnement chimique entre ^{238}U et ^{234}U, ce qui est une hypothèse raisonnable et vérifiée dans de très nombreux systèmes géochimiques, alors ^{238}U et ^{234}U sont toujours en équilibre $(^{238}U)/(^{234}U) = 1$ et la chaîne précédente peut se résumer à :

$$^{238}U \xrightarrow[\lambda_{238}]{} {}^{230}Th \xrightarrow[\lambda_{230}]{} {}^{226}Ra...$$

La loi de « décroissance » radioactive de ^{230}Th suit alors l'équation (4) soit :

$$\left(^{230}Th\right) = \left(^{238}U\right)\left(1 - e^{-\lambda_{230}t}\right) + \left(^{230}Th\right)^{0} e^{-\lambda_{230}t} \quad (6)$$

Traditionnellement ces équations sont représentées sous forme de rapports isotopiques puisque les méthodes d'analyse isotopiques ne permettent de mesurer directement que des rapports de deux isotopes d'un même élément chimique.

Il n'existe pas d'isotope de Th stable, mais on peut considérer qu'aux échelles de temps considérées (âge < 350 000 a), ^{232}Th est quasi stable puisque sa période radioactive est considérablement plus grande (~$1{,}4.10^{10}$ a). On l'utilise comme isotope de référence et l'équation (6) s'écrit alors :

$$\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right) = \left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right)\left[1 - e^{-\lambda_{230}t}\right] + \left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)^{0} e^{-\lambda_{230}t} \qquad (7)$$

Soit un système répondant aux hypothèses fondamentales suivantes :

- le système initial est **isotopiquement homogène** lors de sa fermeture, soit encore toutes les parties du système ont même rapport d'activité initial $\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)^{0}$, mais pas nécessairement le même rapport $\left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right)$

(il peut être chimiquement hétérogène).

- le système a évolué en **système clos** vis à vis de la portion de chaîne radioactive [^{238}U,...,^{230}Th], depuis un instant initial t_0, alors les différents points du système évoluent au cours du temps suivant une isochrone qui est une droite dans le diagramme

$$\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)^{0} \; vs \; \left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right)$$

dont la pente est une fonction simple du temps ($p = 1 - e^{-\lambda_{230}t}$).

Il s'agit là d'une représentation similaire à celle des couples classiques tel que ^{87}Rb-^{87}Sr, quoique un peu plus complexe. Ces deux systèmes isochrones sont comparés dans la figure 2.

On notera les points suivants :

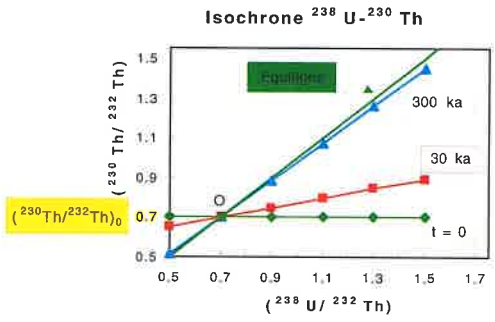
- le système initial est dans les deux cas défini par une droite horizontale, car, par hypothèse le système initial est isotopiquement homogène.
- dans le diagramme $\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)$ vs $\left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right)$

la droite isochrone évolue au cours du temps en tournant autour d'un point O particulier qui n'est pas sur l'ordonnée à l'origine, contrairement au diagramme

$$\frac{^{87}Sr}{^{86}Sr} \text{ vs } \frac{^{87}Rb}{^{86}Sr}.$$

- la position limite de l'isochrone dans le diagramme $\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)$ vs $\left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right)$

est la droite de pente 1, (appelée **équiligne**) correspondant au rétablissement de l'équilibre séculaire, c'est-à-dire à (^{230}Th) = (^{238}U).



Equation chronométrique :
$(^{230}Th/^{232}Th)=(^{230}Th/^{232}Th)_0\, e^{-\lambda t} + (^{238}U/^{232}Th)(1 - e^{-\lambda t})$

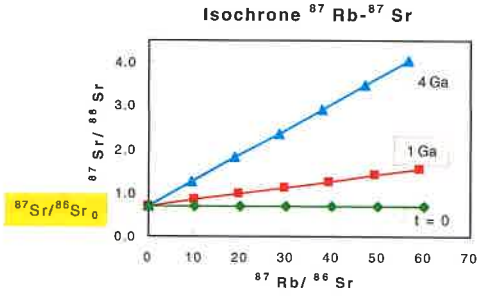
pente : $p = 1-e^{-\lambda t}$

activité de ^{230}Th : $(^{230}Th) = \lambda\ ^{230}Th$

période : $T(^{230}Th) = 75{,}2\ .10^3$ a

$(^{238}U/^{232}Th) = 3{,}034$ [U]/[Th]

position limite :
$(^{230}Th) = (^{238}U)$; équiligne = droite de pente 1



Equation chronométrique :
$^{87}Sr/^{86}Sr = [^{87}Sr/^{86}Sr]_0 + {}^{87}Rb/^{86}Sr\ (e^{\lambda t} - 1)$

pente : $p = e^{\lambda t}-1$

période : $T(^{87}Rb) = 48{,}8\ 10^9$ a

$^{87}Rb/^{86}Sr = 2{,}85$ [Rb]/[Sr]

position limite :
$^{87}Sr/^{86}Sr \dashrightarrow +\infty$; axe des y

Figure 2 : Diagrammes isochrones des méthodes ^{238}U-^{230}Th et ^{87}Rb-^{87}Sr. Dans chacun de ces diagrammes, l'axe horizontal peut être considéré comme un **axe chimique**, c'est-à-dire mesurant les variations du rapport chimique U/Th ou Rb/Sr ; l'axe vertical représente au contraire un rapport isotopique qui ne peut être modifié que par décroissance radioactive au cours du temps. Le système initial (en vert) est représenté par une droite horizontale caractéristique d'un système isotopiquement homogène. Cette droite (**isochrone**) évolue au cours du temps en tournant autour d'un point fixe différent dans chacune des représentations. On notera que les rapports isotopiques sont mesurés par des rapports de **nombres d'atomes** dans le diagramme ^{87}Rb-^{87}Sr et par des **rapports d'activités** dans le diagramme ^{238}U-^{230}Th.

Dans le diagramme $\frac{^{87}Sr}{^{86}Sr}$ vs $\frac{^{87}Rb}{^{86}Sr}$ cette position limite est l'axe des ordonnées et correspond à la radioactivité éteinte ($^{87}Rb \sim 0$).

- le point O est toujours à l'équilibre séculaire $(^{230}Th) = (^{238}U)$; sa composition chimique est telle que la production de ^{230}Th par ^{238}U est intégralement compensée par la décroissance radioactive de ^{230}Th. Pour les parties du système ayant un rapport plus élevé que celui du point O la production de ^{230}Th domine la destruction et inversement pour les parties ayant des rapports plus faibles. Le point situé sur l'axe des ordonnées ne contient pas de ^{238}U initial et par conséquent il n'y a pas de production de ^{230}Th.

- enfin dans les deux systèmes, les abscisses sont mesurées par des rapports isotopiques ou des rapports d'activité d'isotopes de deux éléments différents ; **ils sont équivalents à un rapport chimique.**

En effet :

$$\left(\frac{^{238}U}{^{232}Th}\right) = \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{232}} \bullet \frac{^{238}U}{^{232}Th} \approx \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{232}} \frac{a_{238}}{a_{232}} \frac{232}{238} \frac{[U]}{[Th]} = k \frac{[U]}{[Th]}$$

avec k = 3,034.

De même on montre que :

$$\frac{^{87}Rb}{^{86}Sr} \approx k \frac{Rb}{Sr}$$

2.1.b Deuxième type de diagramme isochrone ($^{230}Th/^{234}U$) v ($^{234}U/^{238}U$)

S'il y a un fractionnement initial ^{238}U - ^{234}U, ce qui est courant dans les systèmes hydrogéologiques (**voir datation des coraux**), il faut également tenir compte de l'évolution du couple ^{238}U - ^{234}U au cours du temps. On montre que la loi chronométrique est décrite par le **couple** d'équations :

$$\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right) - 1 = \left[\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)^0 - 1\right] e^{-\lambda_{234} t} \quad (8)$$

et :

$$\left(\frac{^{230}Th}{^{234}U}\right) = \frac{1 - e^{-\lambda_{230} t}}{(^{234}U/^{238}U)} + \left(1 - \frac{1}{(^{234}U/^{238}U)}\right) \frac{\lambda_{230}}{\lambda_{230} - \lambda_{234}} \left(1 - e^{(\lambda_{234} - \lambda_{230})t}\right) \quad (9)$$

Ces équations sont établies en Annexe.

Les isochrones sont alors des courbes dans le diagramme $\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right) - \left(\frac{^{230}Th}{^{234}U}\right)$, (figure 3).

Ce diagramme permet de connaître à la fois l'âge et la composition isotopique initiale $\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)^0$ d'un seul échantillon. On notera que le rapport d'activité $\left(\frac{^{230}Th}{^{234}U}\right)$ n'est pas directement mesurable à partir des concentrations en U et Th.

Il est calculé à partir des mesures de rapports d'activité $\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)$, $\left(\frac{^{230}Th}{^{232}Th}\right)$ et des mesures de concentrations en U et Th, ou à partir des mesures d'activité absolues en utilisant la méthode du traceur (*spike*).

On notera que l'utilisation des diagrammes isochrones de ce type est forcément limitée pour ^{231}Pa et ^{226}Ra par l'absence d'isotope stable (ou de période suffisamment longue) pouvant servir de référence pour ces deux éléments. On a, par exemple, proposé d'utiliser Ba comme élément de référence pour la chronométrie ^{226}Ra, mais il est très difficile de démontrer l'équivalence des comportements chimiques de Ra et Ba, d'autant que les phénomènes radioactifs de production de ^{226}Ra et surtout de désintégration peuvent entraîner des modifications sensibles du comportement chimique par rapport à un atome radioactivement inerte.

2.2 Les méthodes dites «d'excès»

Elles sont essentiellement utilisées pour mesurer des taux de sédimentation. Elles sont fondées sur le principe de la décroissance radioactive du «stock initial» (voir **Rappels**) de l'isotope considéré qui suit une loi de décroissance radioactive simple au cours du temps du type :

$$(B) = (B)^0 e^{-\lambda_B t}$$

La difficulté de telles méthodes est l'estimation de la quantité d'isotope produit par le ou les isotopes pères présents lors de la fermeture du système. Cette quantité est calculée à partir de la quantité d'isotope père présente dans le système. Par exemple pour la méthode d'excès de ^{230}Th, on a :

$$(^{230}Th)_{excès} = (^{230}Th) - (^{234}U)$$

L'estimation des taux de sédimentation suppose une quantité constante (stationnaire) d'isotope dans le milieu de sédimentation et un taux constant d'entraînement par les particules sédimentaires. Ainsi les mesures de l'activité «en excès» de l'isotope considéré en fonction de l'épaisseur du sédiment fournissent une mesure du taux de sédimentation :

$$\left(^{230}Th\right)_{excès} = \left(^{230}Th\right)^0 e^{-\lambda_{230} t}$$

or t=x/s
x : épaisseur de sédiment
s : taux de sédimentation
d'où :

$$Ln(^{230}Th)_{excès} = Ln(^{230}Th)^0 - (\lambda_{230}/s)x$$

Dans un diagramme Ln (^{230}Th)excès - x, une loi linéaire permet d'estimer le taux de sédimentation en mesurant la pente $p = \lambda_{230}/s$.

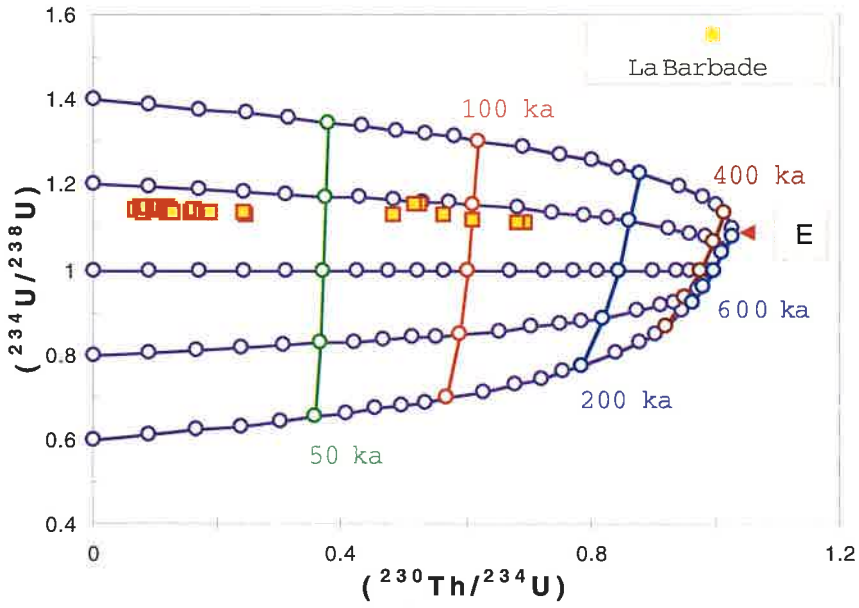


Figure 3 : Diagramme isochrone ^{234}U-^{230}Th : le couple d'équations (8) et (9) permet de construire une abaque liant les rapports d'activités ($^{234}U/^{238}U$) et ($^{230}Th/^{234}U$). Cette abaque est construite en supposant (^{230}Th)0 = 0. Les isochrones sont des courbes d'autant plus proches de droites verticales que les âges sont récents. Pour des âges plus anciens ces courbes convergent vers le point d'équilibre (E) caractérisé par ($^{234}U/^{238}U$) =($^{230}Th/^{234}U$)= 1. On voit que la limite supérieure de cette méthode se situe autour de 400 ka. La mesure des rapports d'activités sur un échantillon unique permet de dater cet échantillon et d'estimer son rapport initial $(^{234}U/^{238}U)_0$. Les compositions isotopiques de **coraux fossiles de La Barbade** (Petites Antilles) sont reportées dans ce diagramme qui permet d'estimer leur âge (Bard *et al.*, 1990 -a). De plus ces échantillons se situent sur une même courbe «horizontale» correspondant à un même rapport initial ($^{234}U/^{238}U$)0 = 1,14 qui indique un milieu de croissance homogène au cours du temps (l'eau de mer). Voir également la figure 4.

3. APPLICATION À LA DATATION DES CORAUX PAR LA MÉTHODE ^{234}U-^{230}Th

3.1 Principe de la méthode

Lors de leur croissance les coraux construisent un squelette à partir des carbonates dissous dans l'eau de mer. Ils incorporent de cette façon de l'uranium soluble dans l'eau de mer sous forme de complexes uranyl carbonates ($UO_2(CO_3)_3^{4-}$).

Le thorium est au contraire très peu soluble et est continûment extrait de l'eau de mer par adsorption à la surface des particules qui sédimentent. L'eau de mer contient ainsi des activités moyennes de l'ordre de 2,4 dpm/l en ^{238}U et ^{234}U et de l'ordre de 10^{-3} dpm/l en ^{230}Th.

On peut donc considérer que lors de leur formation, ces coraux ne contiennent pas de ^{230}Th, et la variation d'activité de ^{230}Th fournit donc un bon chronomètre qui correspond à la chaîne de décroissance radioactive simplifiée suivante :

$$^{238}U \xrightarrow[\lambda_{238}]{} {}^{234}U \xrightarrow[\lambda_{234}]{} {}^{230}Th \xrightarrow[\lambda_{230}]{} {}^{226}Ra... \qquad (10)$$

dont l'évolution est décrite par les équations (8) et (9).

Ce système est représenté dans le diagramme $\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)$ vs $\left(\frac{^{230}Th}{^{234}U}\right)$ (figure 3), qui permet d'estimer l'âge du système et son rapport $\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)$ initial.

Les mesures exactes sont obtenues par un calcul itératif (système non linéaire) à partir des rapports d'activités. La limite supérieure de cette méthode de datation est fournie par l'équilibre entre ^{234}U et ^{230}Th, soit environ 6 . $T_{230} \approx 450.000$ ans. On peut constater que tant que l'âge du système est inférieur à 30 000 ans, la contribution de ^{238}U reste négligeable (isochrones quasi-indépendantes du rapport $\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)$, figure 3) et la réaction nucléaire décrivant l'évolution de ^{230}Th (10) se résume à :

$$^{234}U \longrightarrow {}^{230}Th \longrightarrow {}^{226}Ra...$$

soit une équation chronométrique simplifiée :

$$\left(^{230}Th\right) = \left(^{234}U\right)\left[1 - e^{-\lambda_{230}\, t}\right]$$

3.2 Datation des coraux de La Barbade : variations du niveau de la mer depuis la dernière glaciation

Certains coraux ont la propriété de ne vivre que dans une zone d'immersion restreinte, ce qui les rend très sensibles aux variations du niveau de la mer. C'est notamment le cas d'un corail abondant dans les Caraïbes : *Acropora palmata* dont le biotope se situe à environ 2,50 m sous le niveau de la mer. Il se développe ainsi une colonie de coraux qui forme une **terrasse**. Une variation du niveau de la mer entraîne la mort de la colonie et le développement d'une nouvelle terrasse, à un niveau différent. La datation des squelettes carbonatés de ces coraux dans différentes terrasses permet donc de retracer les variations du niveau de la mer au cours du temps. Depuis Ku (1968), cette méthode a été très largement appliquée en utilisant généralement la spectrométrie alpha et récemment la spectrométrie de masse (Edwards *et al.*, 1987) Cette dernière méthode appliquée aux coraux de La Barbade a permis à une équipe du Lamont-Doherty Laboratory (New York) de dater avec précision les variations du niveau de la mer depuis la dernière glaciation et de mettre en évidence une erreur systématique sur les âges ^{14}C (Fairbanks, 1989 ; Bard *et al.*, 1990a et 1990b).

3-2.a VARIATIONS DU NIVEAU DE LA MER

Les niveaux à *Acropora palmata* de plusieurs échantillonnages et carottages des terrasses coralliennes de La Barbade représentent une hauteur totale d'environ 130 m (55 m au dessus du niveau de la mer et 78 m en dessous). Ils ont été datés par la

méthode ^{234}U-^{230}Th par spectrométrie de masse (figure 3). Le niveau de la mer a été calculé à partir des altitudes d'échantillonnage corrigées des variations d'altitude liées à la surrection tectonique due à la zone de subduction des Caraïbes (estimée à + 34 cm/10^3 a). Ces résultats sont reportés dans la figure 4 et comparés aux variations de $\delta^{18}O$ de l'eau de mer mesuré dans les foraminifères marins.

On observe un excellent accord entre les deux types de courbes. Les $\delta^{18}O$ sont une mesure directe du volume d'eau, stockée dans les continents sous forme de glace (Shackleton, 1967 ; Shackleton et Opdyke, 1973). Ainsi, lorsque l'on est dans une période glaciaire le $\delta^{18}O$ des eaux océaniques est bas (jusqu'à -2) et il est élevé dans un période de réchauffement maximum (interglaciaire, $\delta^{18}O \geq 0$). À ces périodes de glaciation et déglaciation correspondent des variations considérables du niveau de la mer, jusqu' à 120 m pour la dernière période de réchauffement (depuis 20 000 ans environ). Ces datations indiquent également que le maximum de la dernière période interglaciaire dont l'âge était sujet à controverses, est datée à environ 125 000 ans et a duré une dizaine de milliers d'années seulement. Enfin, l'analyse des variations du niveau de la mer en fonction du temps au cours de la dernière période de déglaciation permet d'estimer un taux moyen d'un mètre par siècle, correspondant à un taux de fusion de la glace continentale d'environ 200 000 km^3 par siècle (figure 4). L'analyse détaillée de ces variations montre qu'il existe en fait deux maxima de fusion à 11 et 14 000 ans correspondant à des apports supérieurs à 10^6 km^3 d'eau/siècle.

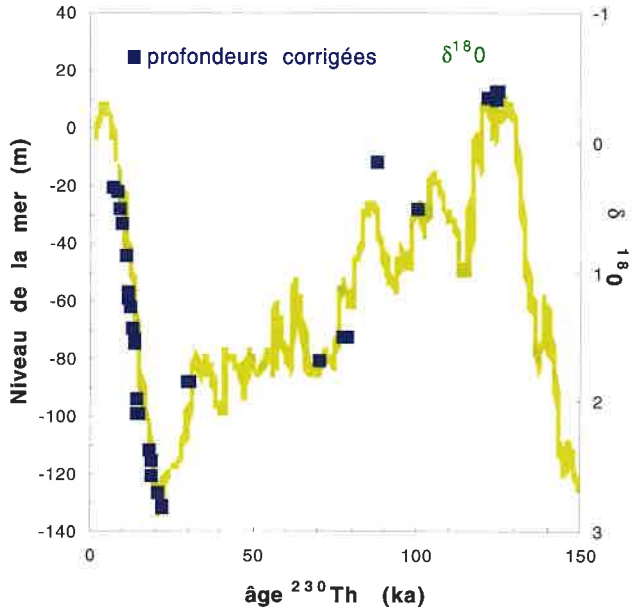


Figure 4 : Étude des variations du niveau de la mer depuis 120 000 ans par la datation des coraux fossiles et du $\delta^{18}O$ des foraminifères marins. Coraux de La Barbade : les âges sont mesurés par la méthode ^{230}Th (voir figure 3) ou ^{14}C ; les altitudes d'échantillonage (niveau de la mer) ont été corrigées de la surrection tectonique très active dans la zone de subduction des Petites Antilles (+0,34 mm/an). Courbe en vert : évolution des $\delta^{18}O$ marins en fonction du temps (d'après Labeyrie *et al.*, 1987). Noter l'échelle inversée pour les $\delta^{18}O$.

3.2.b CALIBRATION DU ^{14}C PAR LA MÉTHODE ^{234}U-^{230}Th

Les mêmes mesures d'âge des coraux de La Barbade par la méthode ^{234}U-^{230}Th ont permis de calibrer la méthode ^{14}C (Bard *et al.*, 1990b).

En effet, la méthode ^{14}C nécessite une connaissance précise de la concentration en ^{14}C initial, c'est-à-dire du matériau organique lors de sa mort. Tant qu'il est vivant, un organisme échange du carbone avec son environnement (atmosphère, eau océanique, etc.) et est donc en équilibre isotopique avec celui-ci : c'est le milieu extérieur qui fixe l'abondance de ^{14}C dans le matériel biologique. A sa mort, les échanges cessent et le ^{14}C décroît continûment suivant sa période radioactive (de l'ordre de 5 700 ans). Pour dater un échantillon par la méthode ^{14}C, il faut donc connaître cette abondance initiale. Celle-ci a été obtenue par des méthodes de calibration directes en mesurant la concentration en ^{14}C de matériaux d'âge connu par l'archéologie ou la dendrochronologie. Cette calibration permet ainsi de remonter jusqu'à environ 9 000 ans B.P. (figure 5). Au delà, les méthodes de mesure sont très imprécises. La méthode ^{234}U-^{230}Th permet de combler cette lacune.

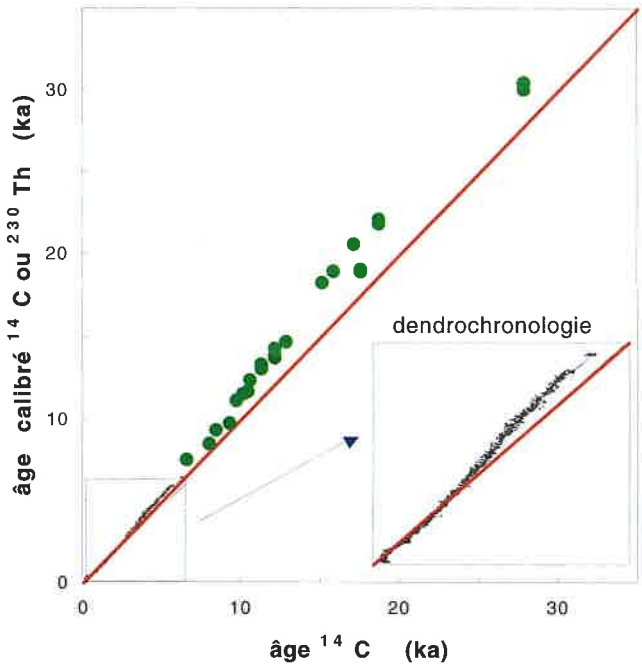


Figure 5 : Comparaison des âges ^{14}C aux âges ^{230}Th ou calibrés par dendrochronologie. Jusqu'à environ 8 000 ans les âges ^{14}C ont pu être calibrés de façon absolue par la dendrochronologie (courbe bleue). L'écart systématique entre les âges ^{14}C et les autres méthodes est confirmé par les mesures d'âges ^{14}C-^{230}Th des coraux de La Barbade (en vert). Cet écart est croissant avec le temps et est probablement lié aux variations de production du ^{14}C dans la haute atmosphère. Cette courbe constitue la courbe de calibration standard de la méthode ^{14}C.

La comparaison des âges ^{14}C et ^{230}Th montre que cette dernière méthode donne des âges plus vieux que la méthode ^{14}C (figure 5). Bien que l'on ne puisse pas démontrer de façon absolue que la méthode ^{234}U-^{230}Th est la plus juste, de nombreux arguments suggèrent cette hypothèse. Au delà de 10 000 ans, de nombreux désaccords apparaissent en effet entre des méthodes relatives ou absolues (varves, thermoluminescence, K/Ar) et la méthode ^{14}C, avec une sous-estimation quasi-systématique pour cette dernière. Ces différences peuvent être clairement attribuées aux variations de production de ^{14}C dans la haute atmosphère, dues aux variations du champ magnétique terrestre qui joue un rôle d'écran au rayonnement cosmique. Les âges ^{14}C plus anciens que 8-10 000 ans sont désormais corrigés de cet écart, calibré par la méthode ^{230}Th-^{234}U.

4. APPLICATION DES DÉSÉQUILIBRES RADIOACTIFS AUX SYSTÈMES VOLCANIQUES

4.1 Datation et constantes de temps

Le premier intérêt des déséquilibres radioactifs appliqués aux systèmes volcaniques est d'avoir étendu les possibilités de datation à la période 40 000 - 300 000 ans en utilisant le couple ^{230}Th-^{238}U. Les autres méthodes de datation ont en effet des périodes trop courtes (^{14}C) ou trop longues (^{40}K) ; cette dernière méthode reste toutefois relativement sensible pour les âges récents dans les roches volcaniques riches en K (alcalines et potassiques, t > 40 000 a).

De nombreux exemples de datation sur isochrones internes (minéraux-roches totales) ou sur roches totales ont été publiés démontrant la fiabilité de ces techniques de datation (**voir Les isotopes d'intérêt géochimique**, et références ci-dessous). A titre d'exemple le tableau suivant donne les résultats des méthodes ^{40}K, ^{230}Th et T.L. (Thermoluminescence) pour des laves de la Chaîne des Puys (Massif Central Français, série alcaline).

Datation de l'inversion paléomagnétique d'Olby-Laschamp			
Méthode	Technique utilisée	Age (coulée d'Olby)	Références
^{40}K-^{40}Ar	Feldspaths	43.000	(1)
T.L.	Feldspaths	39.200	(2)
^{230}Th	Isochrone interne	39.000	(3)

(1) Gillot P.Y *et al.*, 1979 ; (2) Guérin G., 1982 ; (3) Condomines *et al.*, 1982a.

De nombreuses autres méthodes de datation utilisant des isotopes des chaînes de décroissance radioactives et qui reposent sur le même principe que la méthode ^{238}U-^{230}Th peuvent être envisagées pour les systèmes volcaniques :

Isotope	Période	Père	Isotope ou Élément de référence	Domaine d'utilisation
^{231}Pa	$3,4.10^4$ a	^{235}U	(?)	0-200 ka
^{226}Ra	1602 a	^{230}Th	(Ba ?)	0-8 ka
^{210}Pb	21,4 a	^{226}Ra	^{204}Pb	0-100 a
^{228}Ra	6,7 a	^{232}Th	^{226}Ra, (Ba ?)	0-30 a
^{210}Bi	5 j	^{210}Pb	(?)	0-30 j

(?) : pas de référence stable confirmée.

Toutefois, ces techniques ne sont pas encore couramment utilisées à cause de l'absence d'isotope stable de référence pour Pa, Ra, Bi et à cause de nombreuses difficultés analytiques.

Ces méthodes isochrones permettent donc de dater un échantillon de roche (isochrone interne) ou un événement volcanique particulier supposé instantané par rapport à l'âge du système. Mais l'intérêt majeur de l'ensemble de ces isotopes est de permettre l'estimation des **constantes de temps** des processus magmatiques tels que la durée de différenciation ou les temps de transfert des magmas. Les ordres de grandeur de ces constantes de temps dans les systèmes volcaniques représentent un domaine allant de l'heure (pour les remontées magmatiques très rapides, par exemple) à 10 000 a (différenciation magmatique profonde par exemple), c'est-à-dire un domaine de temps parfaitement couvert par les isotopes cités plus haut.

Ainsi, les durées de différenciation peuvent être estimées à partir de la mesure des différences d'âges entre les différentes phase minérales d'un magma. Les ordres de grandeur des durées de différenciation sont typiquement de 10^2 à 10^4 a (Taddeuci *et al.*, 1967 ; Allègre, 1968 ; Villemant et Fléhoc, 1989).

Moyennant l'hypothèse de l'existence d'un état stationnaire des systèmes d'alimentation profonde, de différenciation et de vidange des chambres magmatiques, il est également possible d'estimer les temps de transfert des magmas de la chambre magmatique vers la surface. Ces estimations vont de quelques heures à quelques années et sont donc accessibles en utilisant les isotopes de plus courte période (^{226}Ra à ^{210}Bi) (Williams *et al.*, 1986 ; Pyle *et al.*, 1991 ; Condomines *et al.*, 1995).

4.2 Rapports isotopiques initiaux

Comme toutes les méthodes radiochronologiques, l'étude des rapports isotopiques initiaux permet d'identifier les **caractéristiques des sources magmatiques** et des **mécanismes de fractionnement chimique** responsables des déséquilibres radioactifs observés.

Seule la mesure du rapport isotopique initial $(^{230}Th/^{232}Th)_0$ permet de connaître le rapport chimique initial Th/U d'un magma : c'est-à-dire le rapport non modifié par

les processus pétrogénétiques, soit encore celui de sa source. Par exemple, l'estimation des ces rapports initiaux de séries de laves du Vico et de l'Etna (Italie) a permis de retracer l'évolution au cours du temps de la source magmatique de ces volcans (figure 6). Ce type de résultats et certaines études expérimentales (Keppler et Wyllie, 1990 ; Beattie, 1993 ; La Tourette *et al.*, 1993) suggèrent que des fractionnements U-Th significatifs sont possibles dans les sources lors de la production des magmas primaires. L'origine de ces fractionnements est toutefois un débat largement ouvert, en particulier parce que l'analyse des séries de différenciation et les mesures de coefficients de répartition dans les systèmes naturels indiquent au contraire des comportements très voisins, le plus souvent indiscernables, pour U et Th (cf. par ex. Villemant *et al.*, 1981). Ainsi la fusion partielle ne pourrait produire des magmas significativement déséquilibrés en ^{238}U-^{230}Th qu'avec des degrés de fusion partielle extrêmement faibles (< 1%) ce qui pose des problèmes pétrologiques quasi insurmontables.

Dans les magmas d'arc, on observe fréquemment des enrichissements en ^{238}U par rapport à ^{230}Th : ceux-ci sont généralement interprétés comme le résultat d'un enrichissement sélectif en U par les fluides de la croûte océanique subductée lors de la fusion du manteau et d'une remontée suffisamment rapide des magmas vers la surface pour préserver le déséquilibre radioactif. Si cette interprétation peut être envisagée pour les basaltes peu différenciés, elle semble improbable pour la majorité des magmas d'arc très différenciés et produits dans des systèmes d'alimentation-différenciation-émission proches de l'état stationnaire.

Connaissant l'extrême mobilité de l'uranium en phase aqueuse et en milieu oxydant (conditions superficielles peu probables en milieu magmatique profond), il est tentant d'attribuer l'origine de ces déséquilibres accidentels à des processus supergènes tels que les interactions du magma avec les systèmes hydrothermaux (Sturchio *et al.*, 1987). Ainsi, nous avons montré récemment que certains produits volcaniques (Montagne Pelée en Martinique, Villemant *et al.*, 1996) ont été isotopiquement et chimiquement modifiés par des interactions avec le système hydrothermal au cours même de leur ascension dans les conduits éruptifs, tandis que les produits pliniens ayant un temps de transfert très court ne présentent jamais de déséquilibre radioactif ^{238}U-^{230}Th (figure 7).

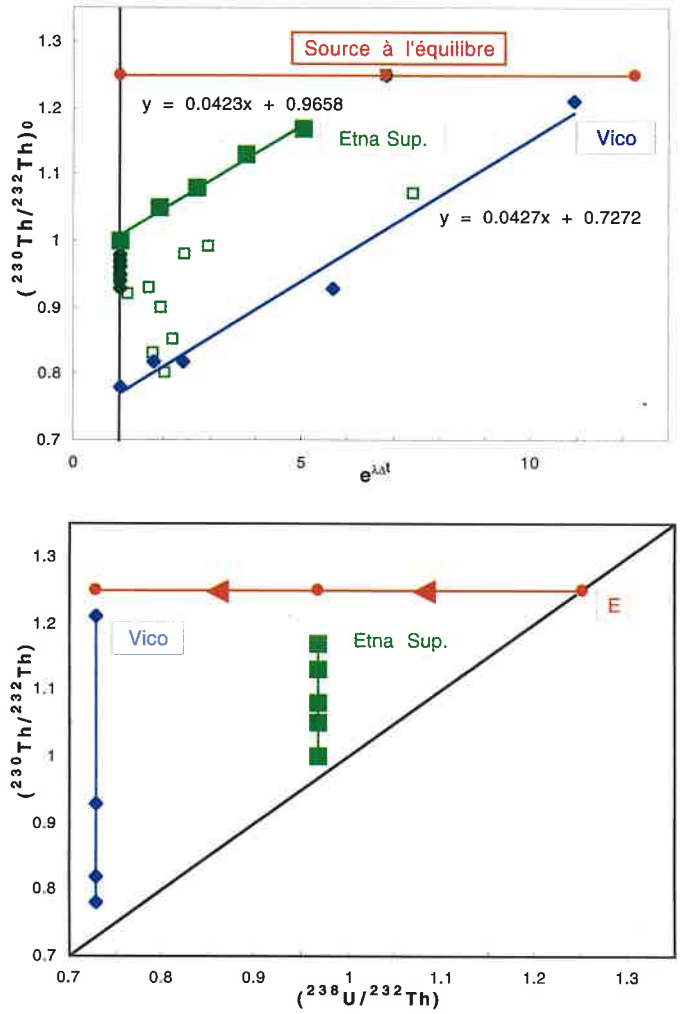


Figure 6 : Variation des rapports isotopiques initiaux des laves de l'Etna et du Vico (Italie). Les rapports isotopiques initiaux $(^{230}Th/^{232}Th)_0$ d'une série de laves caractérisent l'évolution du rapport $(^{230}Th/^{232}Th)$ de leur source magmatique. Si cette source magmatique évolue en système clos, alors ses rapports isotopiques varient linéairement en fonction de $e^{\lambda\Delta T}$. En effet, si l'on appelle $\Delta T = T_s - t$ et $\Delta T_0 = T_{0s} - t$, où T_{0s} représente l'âge de formation de la source et T_s l'âge d'extraction d'un magma, l'équation 7 devient :
$(^{230}Th/^{232}Th)s = e^{\lambda\Delta T}[(^{230}Th/^{232}Th)_{0s}-(^{238}U/^{232}Th)_s]\ e^{\lambda\Delta T_0} + (^{238}U/^{232}Th)_s$. L'ordonnée à l'origine de la droite fournit le rapport $(U/Th)_s$ de la source et la pente est une mesure du fractionnement U-Th dans la source $[(^{230}Th/^{232}Th)_{0s}-(^{238}U/^{232}Th)_s]\ e^{\lambda\Delta T_0} = [(U/Th)_E - (U/Th)_s]\ e^{\lambda\Delta T_0}$.
L'évolution de la source au cours du temps peut également être suivie dans le diagramme $(^{230}Th/^{232}Th)$-$(^{238}U/^{232}Th)$.
La droite horizontale (en rouge) caractérise l'évolution d'une source initialemment à l'équilibre (E). L'évolution de la série du Vico (en bleu, Villemant et Fléhoc, 1987) est caractéristique d'une source hors équilibre avec $(U/Th)_s < (U/Th)_E$. A l'Etna la situation est plus complexe (d'après Condomines *et al.*, 1982) : les points hauts (carrés verts pleins) définissent une évolution similaire à celle du Vico avec un rapport (U/Th)s plus élevé. Les autres mesures de l'Etna (carrés verts vides) sont interprétées comme le résultat d'un mélange avec des magmas issus d'une source de plus faible rapport $(U/Th)_s$ (Condomines *et al.*, 1982 -a et b) ou de processus de contamination-réhomogénéïsation isotopique (Villemant *et al.*, 1994).

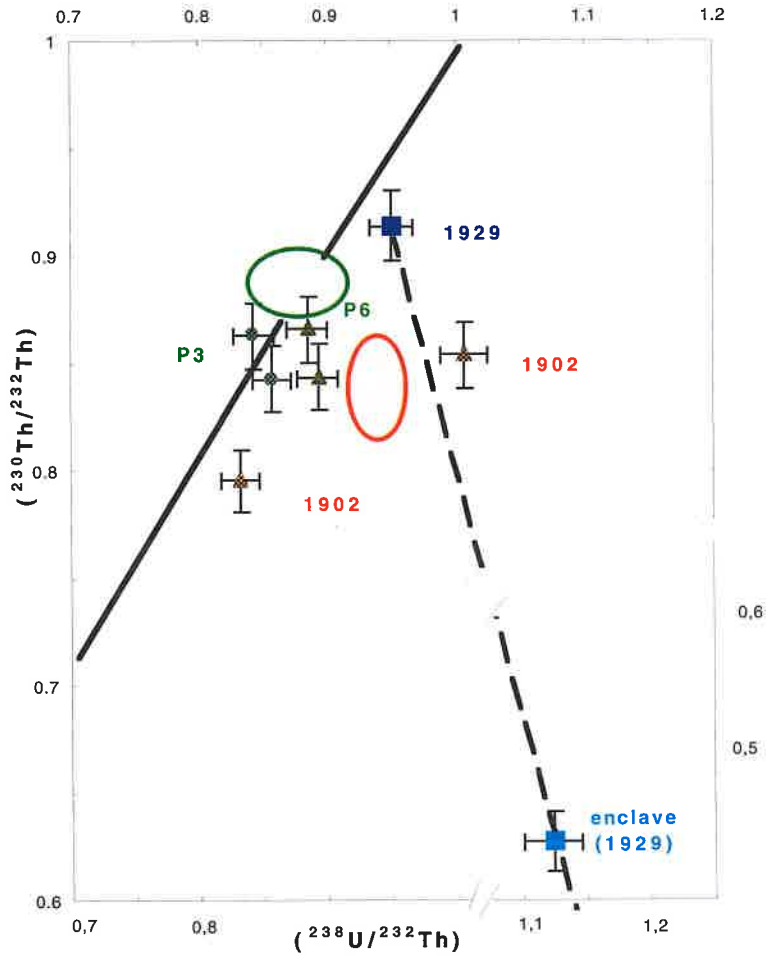


Figure 7 : Composition isotopique des magmas des éruptions violentes à la Montagne Pelée (d'après Villemant et *al.*, 1996). Les produits volcaniques émis au cours des derniers 14000 ans à la Montagne Pelée sont chimiquement homogènes. Ils se distinguent cependant par leurs rapports isotopiques ($^{230}Th/^{232}Th$) (et plus faiblement ($^{238}U/^{232}Th$)) : les produits émis lors d'une éruption plinienne (ponces pliniennes, éruptions P1 -en vert-, P3, P6) sont à l'équilibre isotopique et les produits émis lors des éruptions péléennes (P1 -en rouge-, 1902) sont le plus souvent hors équilibre. Ces différences ne peuvent être liées qu'aux mécanismes éruptifs. Elles sont interprétées comme le résultat de processus de réhomogénéisation isotopique et contamination sélective par l'encaissant au cours de la remontée lente des éruptions péléennes (formation de dômes). L'enclave hydrothermalisée de l'éruption de 1929 (en bleu) représente une composition possible de l'encaissant hors équilibre et source de la contamination.

5. CONCLUSION

Bien que les schémas de décroissance des chaînes radioactives soient bien connus depuis les années 30, leur utilisation en radiochronologie et pour le traçage des systèmes géochimiques ne s'est développé que depuis une vingtaine d'années, principalement en raison des limites des techniques d'analyse. Si l'on excepte les pères des chaînes radioactives, le domaine d'application de ces méthodes est l'étude du Quaternaire récent. Ainsi, l'étude du déséquilibre ^{230}Th-^{234}U dans les terrasses coralliennes a permis des progrès spectaculaires en paléoclimatologie. La mesure des constantes de temps et le traçage des mécanismes de transfert lors de la sédimentation et des processus d'altération sont également un domaine majeur d'application de ces méthodes. Les applications à l'hydrogéologie qui met en jeu des constantes de temps très courtes commencent à se développer avec des prolongements naturels vers le suivi de la pollution.

Les déséquilibres radioactifs dans les systèmes volcaniques constituent une source unique d'informations parce qu'ils associent des comportements géochimiques variées et des méthodes chronologiques couvrant les domaines de temps caractéristiques du volcanisme. Les formulations théoriques sont actuellement bien développées mais les comportements géochimiques des éléments mis en jeu sont beaucoup moins bien connus. En effet, si les comportements spécifiques lors des processus mettant en jeu des liquides et des solides magmatiques sont bien étudiés, il n'en va pas de même pour les processus de dégazage, les interactions fluides-magmas, encaissant solide-magma et c. En plus d'un effort considérable d'investigation expérimentale, il est nécessaire de développer les études de systèmes volcaniques naturels types afin d'identifier les mécanismes majeurs de fractionnement des isotopes des chaînes de décroissance radioactives.

Enfin, je citerai en radiochronologie préhistorique l'utilisation systématique et simultanée, depuis quelques années, des datations ^{14}C et ^{230}Th. Par exemple, des résultats très récents remettent en cause les modèles de peuplement de l'Europe par *l'Homo sapiens* (homme archaïque) et sa coexistence avec l'homme moderne ou *Homo sapiens sapiens* (Bischoff *et al.*, 1994). Devant l'importance accrue accordée à l'histoire terrestre récente qui constitue un enjeu scientifique majeur pour la compréhension des grands équilibres régissant notre environnement, les chaînes de décroissance radioactive constituent un outil de choix qui devrait considérablement se développer dans les années à venir.

BIBLIOGRAPHIE

ALLÈGRE C.-J. (1968). ^{230}Th dating of volcanic rocks : a comment. ***Earth Planet. Sci. Lett.***, 5, 209-210.

BARD E., B. HAMELIN, R.G. FAIRBANKS et A. ZINDLER (1990a). Calibration of the ^{14}C timescale over the past 30,000 years using mass spectrometric U-Th ages from Barbados corals. ***Nature***, **345**, 405-410.

BARD E., B. HAMELIN et R.G. FAIRBANKS (1990b). U-Th ages obtained by mass spectrometry in corals from Barbados : sea level during the past 130,000 years. ***Nature***, **346**, 456-458.

BEATTIE P. (1993). The generation of uranium series disequilibria by partial melting of spinel peridotite : constraints from partitioning studies. ***Earth Planet. Sci. Lett.***, **117**, 379-391.

BISCHOFF et al. (1994). ***J. Arch. Sci.***, **21**, 546- .

CONDOMINES M., P. MORAND, G. CAMUS et L. DUTHOU (1982 -a). Chronological and geochemical study of lavas from the Chaîne des Puys : evidence for crustal contamination. ***Contrib. Mineral Petrol.***, **81**, 296-303.

CONDOMINES M., J.C. TANGUY, G. KIEFFER et C.-J. ALLÈGRE (1982-b). Magmatic evolution of a volcano studied by ^{230}Th-^{238}U disequilibrium and trace element systematics : the Etna case. ***Geochim. Cosmochim. Acta***, **46**, 1397-1416.

CONDOMINES M., J.C. TANGUY et V. MICHAUD (1995). Magma dynamics at Mt. Etna : constraints from U-Th-Ra-Pb radioactive disequilibria and Sr isotopes in historical lavas. ***Earth Planet. Sci. Lett.***, **132**, 25-41.

EDWARDS R.L., J.H. CHEN et G.J.WASSERBURG (1987). ^{238}U-^{234}U-^{230}Th-^{232}Th systematics and the precise measurement of time over the past 500,000 years. ***Earth. Planet. Sci. Lett.***, **81**, 175-192.

FAIRBANKS R.G. (1989). A 17,000-year glacio-eustatic sea level record : influence of glacial melting rates on the Younger Dryas event and deep-ocean circulation. ***Nature***, **342**, 637-642.

GILLOT P.Y., J. LABEYRIE, C. LAJ, G. VALLADAS, G.GUÉRIN, G. POUPEAU et G. DELIBRIAS (1979). Age of the Laschamp paleomagnetic excursion revisited. ***Earth Planet. Sci. Lett.***, **42**, 444-450.

GUÉRIN G. (1982). L'événement Laschamp dans les laves de la Chaîne des Puys. Résultats d'une chronologie systématique. ***Modern Geol.***, **8**, 121-126.

IVANOVICH M. et R. HARMON Ed. (1992). Uranium series disequilibrium : Applications to Earth, marine, and environmental sciences, 2nde édition, Clarendon Press, Oxford, 910p.

KEPPLER H. et P.J. WYLLIE (1990). Role of fluids in transport and fractionation of uranium and thorium in magmatic processes. ***Nature***, **348**, 531-533.

KU T-L. (1968). Protactinium method of dating coral from Barbados Island. ***J. Geophys. Res.***, **73**, 2271-2276.

LABEYRIE L.D., J.C. DUPLESSY et P.L. BLANC (1987). Variations in mode of formation and temperature of oceanic deep waters over the past 125,000 years. ***Nature***, **327**, 477-482

LATOURRETTE T.Z., A.K. KENNEDY et G.J. WASSERBURG (1993). Thorium-uranium fractionation by garnet : evidence for a deep source and rapid rise of oceanic basalts. ***Science***, **261**, 739-742.

PYLE D.M., J.B. DAWSON, M. IVANOVICH (1991). Short-lived decay series disequilibria in the natrocarbonatite lavas of Oldoinyo Lengai, Tanzania : constraints on the timing of magma genesis. ***Earth. Planet. Sci Lett.***, **105**, 378-396

SHACKLETON N.J. (1967). Oxygen isotope analyses and Pleistocene temperatures re-assessed. ***Nature***, **215**,15-17.

SHACKLETON N.J. et N.D. OPDYKE (1973). Oxygen isotope and paleomagnetic stratigraphy of equatorial Pacific core V28-238 ; oxygen isotope temperatures and ice volumes on a 10^5 year and 10^6 year scale. ***Quat. Res.***, **3**, 39-55.

STURCHIO, N.C., C.M. BINZ et H. LEWIS III (1987). Thorium-uranium disequilibrium in a geothermal discharge zone at Yellowstone. ***Geochim. Cosmochim. Acta***, **51**, 2025-2034.

TADDEUCI A., W.S. BROECKER et D.L. THURBER (1967). ^{230}Th dating of volcanic rocks. ***Earth Planet Sci. Lett.***, **3**, 338-342.

VILLEMANT B. (1987). Trace element partition coefficients in magnetites. EUG meeting, Strasbourg, 13-16 April, Résumé G17.60.

VILLEMANT B. et C. FLÉHOC (1989). U-Th fractionation by fluids in K-rich magma genesis : the Vico volcano, Central Italy. ***Earth Planet Sci. Lett.***, **91**, 312-326.

VILLEMANT B., H. JAFFREZIC, J.L. JORON et M. TREUIL (1981). Distribution coefficients of major and trace elements ; fractional crystallisation in the alkali basalt series of Chaine des Puys (Massif Central, France). ***Geochim. Cosmochim. Acta***, **45**, 1997-2016.

VILLEMANT B., V. MICHAUD et N. METRICH (1994). Wall rock-magma interactions in Etna, Italy, studied by U-Th disequilibrium and rare earth element systematics. ***Geochim. Cosmochim. Acta***, **57**, 1169-1180.

VILLEMANT B., G. BOUDON et J.C. KOMOROWSKI (1996). U-series disequilibrium in arc magmas induced by water-magma interaction. ***Earth Planet. Sci. Lett.***, **140**, 259-267.

WILLIAMS R.W., J.B. GILL et K.W. BRULAND (1986). Ra-Th disequilibria systematics : time scale of carbonatite magma formation at Oldoinyo Lengai volcano, Tanzania. ***Geochim. Cosmochim. Acta***, **50**, 1249-1259.

ANNEXE

L'équation (8) dérive directement de l'équation (4) pour la portion de chaîne $^{238}U \rightarrow ... \rightarrow ^{234}U \rightarrow ^{230}Th \rightarrow ...$, où l'on néglige les isotopes intermédiaires dont la période est très courte (< 1mois) :

$$\left(^{234}U\right) = \left(^{238}U\right)\left[1 - e^{-\lambda_{234}t}\right] + \left(^{234}U\right)^{\circ} e^{-\lambda_{234}t} \qquad \textbf{(A1)}$$

soit encore :

$$\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right) = \left[1 - e^{-\lambda_{234}t}\right] + \frac{\left(^{234}U\right)}{\left(^{238}U\right)} e^{-\lambda_{234}t} \qquad \textbf{(A2)}$$

En remarquant que dans le domaine d'utilisation de ce chronomètre $(^{238}U) \approx (^{238}U)^{\circ}$ on aboutit à l'équation (8). La loi de décroissance de ^{230}Th est donnée par l'équation :

$$\frac{d\,^{230}Th}{dt} = \lambda_{234}\,^{234}U - \lambda_{230}\,^{230}Th = \left(^{234}U\right) - \left(^{230}Th\right) \qquad \textbf{(A3)}$$

où le premier terme du second membre représente la production de ^{230}Th par ^{234}U et le second terme, la destruction de ^{230}Th par sa propre radioactivité (voir équation (1)).

En remplaçant et en réarrangeant (^{234}U) par son expression dans l'équation (A1), on obtient :

$$\frac{d\,^{230}Th}{dt} + \lambda_{230}\,^{230}Th = \left(^{238}U\right)\left(1 - e^{-\lambda_{234}t}\right) + \left(^{234}U\right)^{\circ} e^{-\lambda_{234}t} \qquad \textbf{(A4)}$$

Cette équation est similaire à l'équation (2) et par intégration donne (A5) :

Comme $\lambda_{238} << \lambda_{230}$, et $(^{238}U)^{\circ} \approx (^{238}U)$, et $\lambda_{238} << \lambda_{234}$, l'équation précédente se simplifie sous la forme

$$\frac{\left(^{230}Th\right)}{\left(^{238}U\right)} = \left(1 - e^{\left(\lambda_{238} - \lambda_{230}\right)t}\right) + \frac{\lambda_{230}}{\lambda_{230} - \lambda_{234}}\left(e^{\left(\lambda_{238} - \lambda_{234}\right)t} - e^{\left(\lambda_{238} - \lambda_{230}\right)t}\right)\left[\frac{\left(^{234}U\right)^{\circ}}{\left(^{238}U\right)} - 1\right] \qquad \textbf{(A5)}$$

$$\frac{\left(^{230}Th\right)}{\left(^{238}U\right)} \approx 1 - e^{-\lambda_{230}t} + \left(e^{-\lambda_{234}t} - e^{-\lambda_{230}t}\right)\left[\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)^{\circ} - 1\right] \qquad \textbf{(A6)}$$

En divisant chaque membre de l'équation (A6) par le rapport $\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)$, on aboutit à l'équation (9).