



**HAL**  
open science

## La datation par traces de fission des verres naturels et artificiels. Applications en archéologie

Gérard Poupeau, Olivier Dorighel, Ludovic Bellot-Gurlet

### ► To cite this version:

Gérard Poupeau, Olivier Dorighel, Ludovic Bellot-Gurlet. La datation par traces de fission des verres naturels et artificiels. Applications en archéologie. Scorzelli R. B.; Souza Azevedo I.; Baggio Saitovitch E. Essays on Interdisciplinary Topics in Natural Sciences. Memorabilia: Jacques A. Danon, Editions Frontières, pp.85-110, 1997, 978-2-86332-222-2. hal-01864664

**HAL Id: hal-01864664**

**<https://hal.science/hal-01864664>**

Submitted on 30 Aug 2018

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## **LA DATATION PAR TRACES DE FISSION DES VERRES NATURELS ET ARTIFICIELS. APPLICATIONS EN ARCHEOLOGIE**

*G. Poupeau* <sup>(1, 2)</sup>, *O. Dorighel* <sup>(1)</sup> et *L. Bellot-Gurlet* <sup>(1, 2)</sup>

(1) Groupe de Géophysique Nucléaire

Institut Dolomieu, Université Joseph Fourier

15 rue Maurice Gignoux, 38031 Grenoble, France.

(2) UPRES-A 5025 du CNRS.

### *Résumé*

Les verres sont des détecteurs solides de traces nucléaires. A ce titre, ils sont capables d'enregistrer les dommages d'irradiation produits par la fission, spontanée ou induite, des atomes d'uranium qu'ils renferment. Ces dommages d'irradiation étant suffisamment stables aux températures régnant à la surface de la terre, il est possible de les utiliser en datation par la méthode des traces de fission.

Dans cet article, on rappelle tout d'abord les principes généraux de la datation des verres par traces de fission. On discute ensuite des principaux domaines d'intervention de cette méthode de datation en archéologie : datation des artefacts en obsidienne et études de provenance de cette matière première de l'industrie lithique ou datation de pierres brûlées ; tephrochronologie et ses applications à la datation des sites archéologiques ; enfin datation des verres artificiels dopés à l'uranium.

### *Abstract*

Glasses are solid state track detectors, able to record the radiation damage produced by the spontaneous and induced fission of uranium. These radiation damages are stable enough at the ground surface temperatures to allow their use in fission track dating.

We recall the general principles of fission track dating of glasses and present an overview of its applications in archaeology : dating of obsidian and its uses in provenance studies or the dating of burnt artefacts, tephrochronology as a stratigraphic tool for the dating of archaeological sites, and the dating of artificial glasses doped with uranium.

## INTRODUCTION

Proposée en 1963 par Price et Walker, la méthode de datation par les traces de fission (TF) spontanée de l'uranium 238 devait commencer à être appliquée aux verres naturels ou fabriqués dès l'année suivante (Brill, 1964 ; Brill *et al.*, 1964). Les verres naturels dont l'origine est volcanique, tectonique (pseudo-tachylites) ou résulte de l'impact de météorites à la surface de la terre, se caractérisent par la présence d'une teneur en uranium de l'ordre de quelques ppm, généralement distribué de façon homogène dans le volume, caractéristique qui fait de ces matériaux un support de choix pour les datations par TF. En ce qui concerne les verres artificiels, seuls les plus riches en uranium, comme les verres de Bohême, sont susceptibles d'être datés par cette méthode.

Il apparut très rapidement, au cours des années soixante, que la conservation de la "mémoire" TF dans les verres n'était pas toujours parfaite, en raison d'une possible altération des traces dans les conditions d'environnement régnant à la surface de la terre. Ce n'est qu'après les techniques de correction des âges apparents de Storzer et Wagner (1969) et Storzer et Poupeau (1973) que la datation des verres par TF est devenue une méthode fiable. Actuellement, elle est considérée comme l'une des mieux adaptées à la datation isotopique des verres naturels.

Une bibliographie exhaustive sur la datation des verres par TF jusqu'en 1973 a été donnée par Fleischer *et al.* (1975). En 1978, un premier bilan des applications de la datation par TF à l'archéologie a été proposé par Wagner. Dans cet article, nous exposons les principes généraux de la méthode et ses aspects expérimentaux, avant de présenter le panorama actuel des applications à l'archéologie.

## DATATION PAR TRACES DE FISSION

### Principes

La datation par traces de fission repose sur l'enregistrement par les minéraux et les verres du dommage produit localement par la fission spontanée de l'uranium 238. Ce dommage peut être visualisé sous la forme d'une "trace" par attaque chimique d'une surface préalablement polie. Dans les verres, les traces ainsi "révélées" se présentent

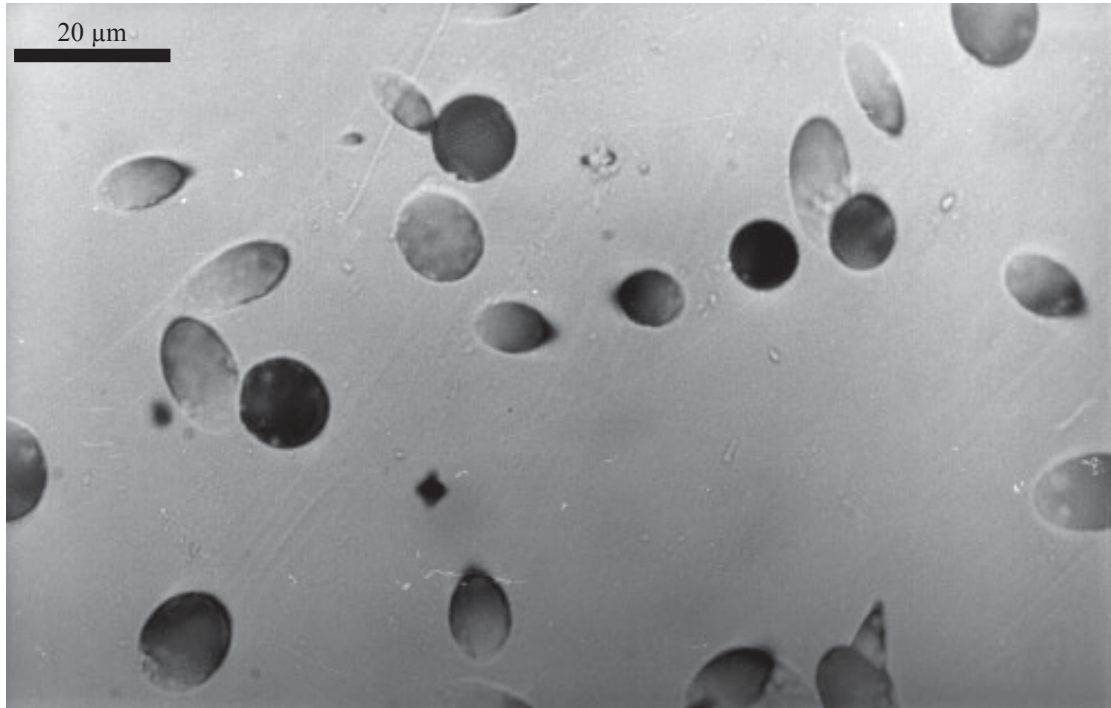


Figure 1 : Traces de fission induite de  $^{235}\text{U}$  dans une obsidienne d'Equateur.

sous l'aspect de figures de corrosion elliptiques à circulaires, d'un diamètre compris entre environ 5 et 20 microns, dans nos conditions expérimentales (figure 1). Le nombre de traces "fossiles" observables dépend à la fois du temps depuis lequel elles sont enregistrées et de la teneur en uranium. On peut tenir compte de cette dernière au moyen d'une irradiation par des neutrons thermiques dans un réacteur nucléaire, qui fait fissionner l'uranium 235. Un âge TF  $< 10^8$  ans se calcule selon la relation (voir par ex. Wagner et Van den Haute, 1992) :

$$t = \frac{\rho_f}{\rho_i} \cdot \frac{\sigma I}{\lambda} \cdot \Phi \quad (1)$$

où  $t$  est l'âge TF (Ma),  $\rho_f$  et  $\rho_i$  sont les densités de traces de fission fossiles et induites (nombre de traces/cm<sup>2</sup>),  $\sigma$  la section efficace de capture d'un neutron thermique pour la fission de  $^{235}\text{U}$ ,  $I$  le rapport d'abondances isotopique  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $\lambda$  la constante de fission spontanée de  $^{238}\text{U}$  et  $\Phi$  la fluence neutronique (neutrons/cm<sup>2</sup>).

On contrôle la fluence neutronique au moyen de "moniteurs", pastilles de verre

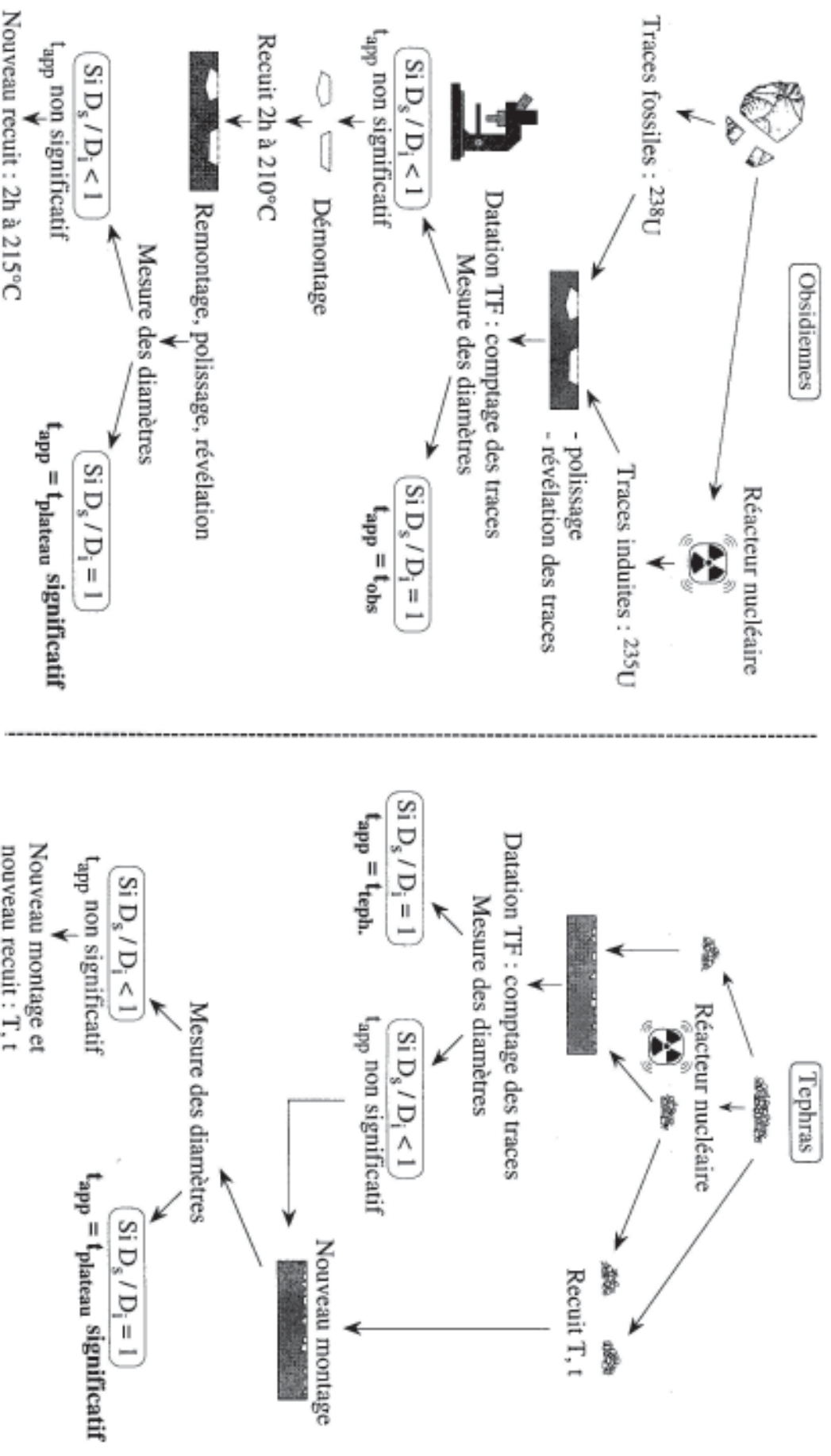


Figure 2 : Principe de la datation par âges-plateaux, lorsque le rapport du diamètre moyen des traces fossiles à celui des traces induites,  $D_f/D_i$ , est inférieur à l'unité. A gauche, obsidiennes et âges-plateaux isochrones : les échantillons sont datés, après un traitement thermique de courte durée (entre une et trois heures) répété éventuellement à des températures croissantes, qui ramène le diamètre moyen des traces fossiles et induites à la même valeur. A droite, tephras et âges-plateaux isothermes : on utilise, pour les tephras hydratés, un ou plusieurs recuits à température constante, inférieure à 200°C.

renfermant de l'uranium, irradiées conjointement aux échantillons à dater. La fluence  $\Phi$  induit dans ces moniteurs une densité de traces de fission  $\rho_m$  telle que :  $\Phi = B\rho_m$ , où B est une constante et  $\rho_m$  la densité de traces relative au moniteur.

Si l'on pose  $\zeta = \sigma IB/\lambda$ , l'équation d'âge devient :

$$t = \frac{\rho_f}{\rho_i} \cdot \rho_m \cdot \zeta \quad (2)$$

L'équation (1) est celle qui a été utilisée jusqu'au début des années 80. Elle tend à être progressivement remplacée par l'équation (2). En effet, les paramètres  $\lambda$  et B de l'équation (1) ne sont pas connus avec une exactitude suffisante, et de nombreuses combinaisons de ces deux paramètres peuvent être choisies. L'usage avait donc été pris, pour chaque laboratoire, d'adopter un couple de valeurs pour ces paramètres permettant d'obtenir un âge correct pour des échantillons volcaniques étalons d'âges bien connus par ailleurs. Bien que de nombreuses combinaisons de couples de valeurs soient possibles, les plus fréquemment rencontrées utilisaient pour  $\lambda$  soit  $7,03 \times 10^{-17} \text{ ans}^{-1}$ , soit  $8,46 \times 10^{-17} \text{ ans}^{-1}$  (voir discussion dans Wagner et Van den Haute, 1992). La forme (2) de l'équation d'âge évite d'attribuer une valeur arbitraire à la constante  $\lambda$ . Le paramètre  $\zeta$  est déterminable avec une précision de l'ordre de  $\pm 1\%$  à partir d'échantillons-étalons comme la phase vitreuse de la rhyolite de Roccastrada (Bigazzi *et al.*, 1993a) ou l'obsidienne JAS-G1 (Wadatsumi *et al.*, 1994), seuls standards internationaux pour la datation des verres disponible actuellement en grandes quantités (Balestrieri *et al.*, 1997).

Dans la pratique, on mesure les densités de traces fossiles et induites sur deux aliquotes du matériel à dater : soit deux fragments, pour les verres massifs (obsidiennes, verres artificiels), soit deux populations d'esquilles de verre pour les tephras. L'une de ces aliquotes est envoyée en réacteur nucléaire et sera donc ensuite porteuse d'une densité de traces  $\rho^* = \rho_f + \rho_i$ . Après irradiation, les deux aliquotes sont incluses dans une même pastille d'araldite, polies, révélées et leurs traces comptées. Les équations d'âge (1) et (2) deviennent, car on ne mesure plus directement  $\rho_i$  :

$$(1') \quad t = \frac{\rho_f}{(\rho_f + \rho_i) - \rho_i} \cdot \frac{\sigma I}{\lambda} \cdot \Phi$$

$$(2') \quad t = \frac{\rho_f}{(\rho_f + \rho_i) - \rho_i} \cdot \rho_m \cdot \zeta$$

*Datations par âges-plateaux.*- La datation par TF telle que nous l'avons envisagée jusqu'à présent suppose que la mémoire TF soit inaltérable, c'est à dire que traces fossiles et induites présentent la même distribution de tailles, puisque la fission spontanée de  $^{238}\text{U}$  et induite de  $^{235}\text{U}$  libèrent pratiquement la même énergie. Or, on observe souvent que les traces induites d'un même échantillon sont, en moyenne, plus longues que les traces fossiles. Ce raccourcissement est dû, dans les verres massifs comme les obsidiennes ou les verres artificiels, à l'effet de la température sur la structure des traces fossiles, à laquelle s'ajouterait, sur les esquilles de verre des tephres (voir plus loin) l'effet de l'hydratation (Lakatos et Miller, 1972). Un raccourcissement des traces fossiles entraînant une diminution de leur densité révélable, il s'ensuit une diminution de l'âge apparent TF calculé selon les équations (1') ou (2'). On doit donc corriger les âges apparents affectés par ce phénomène de vieillissement des traces, et actuellement c'est la technique des âges-plateaux de Storzer et Poupeau (1973) qui est généralement utilisée.

Dans cette approche, on caractérise tout échantillon à la fois par son âge apparent et ses distributions de diamètres de traces fossiles et induites. Si le rapport des valeurs moyenne de ces diamètres,  $D_f/D_i = 1$ , l'âge apparent est significatif. Sinon on doit procéder à un traitement thermique, soit sur les mêmes fragments de verre, soit sur une nouvelle aliquote d'esquilles de verre, avant de déterminer un second âge apparent (figure 2). Un recuit affectera en premier les traces induites, encore non altérées, et le rapport  $D_f/D_i$  doit se rapprocher de 1. Si un premier recuit, ne suffit pas, on continue la même procédure jusqu'à atteindre la valeur limite  $D_f/D_i = 1$ , où l'âge apparent TF devient stable, à une valeur "plateau".

Les figures 3 et 4 montrent comment, au long d'une série de quatre recuits, évoluent les distributions de longueurs, les densités de traces et l'âge TF d'une "macusanite", obsidienne du SE péruvien, dont les traces fossiles étaient affectées d'une réduction moyenne de diamètre de 20% (Poupeau *et al.*, 1993).

*Correction des âges TF par la méthode des diamètres.*- En raison de sa précision limitée (Storzer et Poupeau, 1973), on limite actuellement l'utilisation de cette méthode de correction aux échantillons présentant une très faible densité de traces fossiles. Dans cette procédure, on doit tout d'abord établir une courbe de calibration entre la réduction des diamètres moyens de traces et celle des densités de traces révélables, consécutive à une série de traitements thermiques. Cette courbe est établie sur une aliquote de l'échantillon

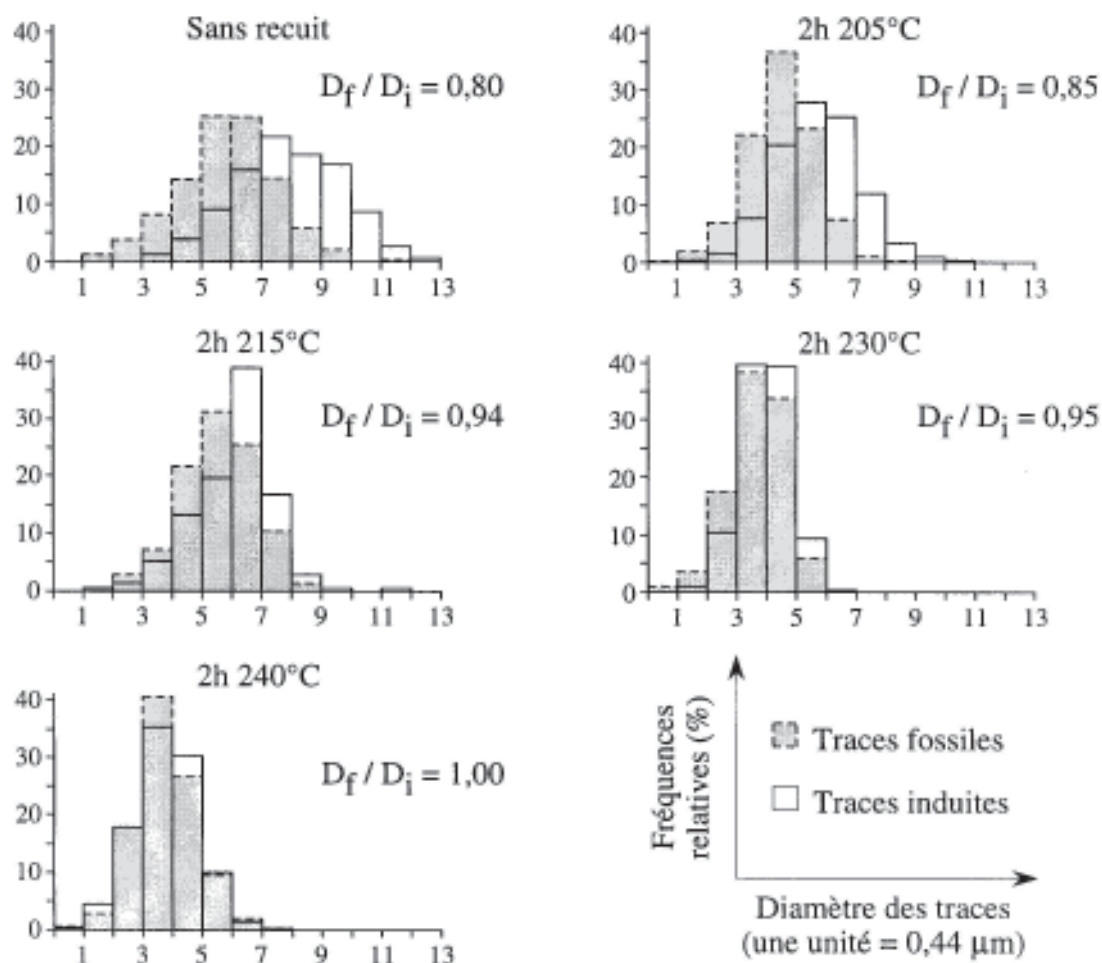


Figure 3 : Evolution des histogrammes de diamètres de traces fossiles et induites dans une Macusanite (obsidienne du SE péruvien) datée par âges-plateaux isochrones. On constate que le rapport  $D_f/D_i$  (figure 2), initialement inférieur à 1, est progressivement ramené à l'unité par des recuits successifs de deux heures chacun entre 205°C et 240°C (d'après Poupeau *et al.*, 1993).

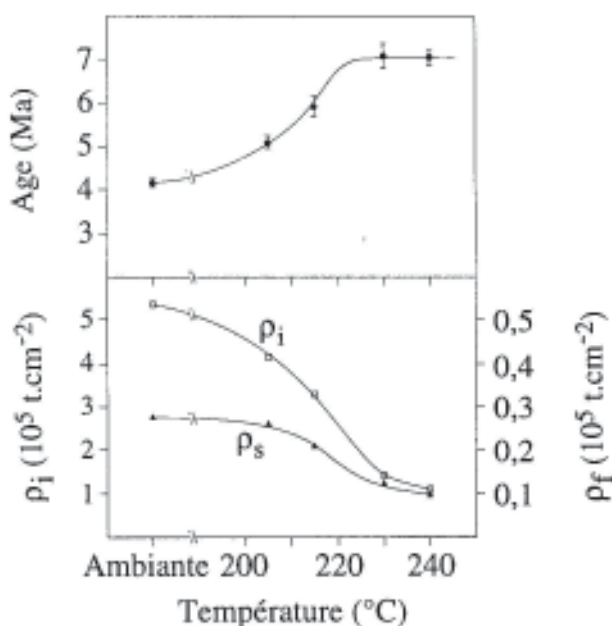


Fig. 4 : Evolution de l'âge apparent et des densités de traces fossiles et induites de la macusanite de la figure précédente, en fonction de la température de recuit (d'après Poupeau *et al.*, 1993).



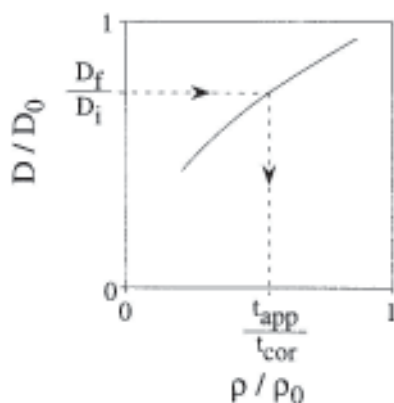


Figure 5 : Principe de la correction des âges TF par la méthode des diamètres.  $D_0$  et  $\rho_0$ , respectivement, diamètre moyen et densité révélable de traces induites après une irradiation en réacteur nucléaire ;  $D$  et  $\rho$ , idem après un traitement thermique.  $D_f/D_i$ , rapport des diamètres moyens de traces fossiles et induites. On déduit de cette valeur et de la courbe de calibration  $D/D_0$  versus  $\rho/\rho_0$  (voir texte) la valeur du rapport  $t_{app}/t_{cor}$ , ou âge apparent TF/âge corrigé.

à dater, à partir d'une population de traces de fission induite (les traces fossiles ayant été éliminées par un recuit à  $T > 500^\circ\text{C}$  avant irradiation en réacteur nucléaire). La cinétique d'effacement thermique des traces variant quelque peu selon la composition chimique des obsidiennes, on doit impérativement établir une telle courbe pour chaque échantillon.

On détermine ensuite la valeur du rapport  $D_f/D_i$ , puis à l'aide de la courbe précédente, on peut évaluer graphiquement le rapport  $t_{app}/t_{cor}$  (figure 5), et donc la valeur d'un âge corrigé équivalent en principe à un âge-plateau.

### Aspects expérimentaux

Les procédures expérimentales décrites ci-dessous sont celles en usage au laboratoire de Grenoble.

*Préparation des échantillons.* - Dans les verres massifs, on taille avec une scie à fil une lamelle de verre à faces parallèles, d'environ 0,5-1 mm d'épaisseur, procédure qui permet une économie importante de matériel (largeur du trait de scie  $\sim 0,1$  mm), en particulier pour des pièces archéologiques de petites dimensions qui doivent aussi être analysées par des méthodes géochimiques. Dans les tephtras, les esquilles de verre sont isolées suivant les techniques habituelles de broyage, pour les matériels consolidés, puis par tamisage on sélectionne certaines granulométries entre 80 et 200 microns. On procède par la suite à une séparation par liqueurs denses afin de ne retenir que les particules de verre. On irradie en réacteur nucléaire une à deux plaquettes de verre par échantillon (obsidiennes) ou une population de quelques milliers d'esquilles de verre (tephtras), avec plusieurs moniteurs de fluence intercalés entre les échantillons dans le furet d'irradiation. Les moniteurs sont les verres de référence 612/962 et 613/963 du National Institute of Standards and Technology des Etats-Unis (Gaithersburg, Maryland), de teneurs respectivement 37,1

ppm et 0,8 ppm d'uranium appauvri. Avant l'irradiation, on fixe sur chaque face des moniteurs utilisés une feuille d'un détecteur plastique (kapton) dépourvu d'uranium. Au cours de l'irradiation, une fraction des atomes de  $^{235}\text{U}$  des moniteurs fissionne. Les fragments de fission produits par les atomes de  $^{235}\text{U}$  situés à proximité de la surface des moniteurs possèdent une certaine probabilité d'être éjectés en direction des détecteurs externes et d'y laisser une trace. C'est ensuite dans ces plastiques que seront comptées les densités de traces  $\rho_m$  des équations (1') et (2').

*Révélation et comptage des traces.*- Au retour de l'irradiation, les échantillons sont inclus dans une résine à froid, de telle sorte que chaque pastille comporte à la fois du matériel irradié et non irradié (figure 2). Une mise à l'affleurement des verres est assurée par un papier abrasif de "grain 1000" (soit de granulométrie des particules abrasives d'environ  $7\ \mu\text{m}$ ) avant le polissage proprement dit, effectué à l'aide de pâtes diamantées de granulométrie  $6\ \mu\text{m}$ ,  $3\ \mu\text{m}$ ,  $1\ \mu\text{m}$  et  $0,1\ \mu\text{m}$ . Chacune de ces quatre phases est réalisée par polissage automatique et dure entre 1 et 2 heures. Les traces sont révélées dans les verres par une solution de HF à 20% pendant 90 à 200 secondes, selon les échantillons, à une température de  $40^\circ\text{C}$  ; dans les feuilles de kapton, par une solution de NaOCl (12%) + NaCl (8%) à l'ébullition pendant 8 minutes. Les traces sont observées en microscopie optique par transmission avec un objectif x100 à sec (verres) ou par immersion (kapton) et des oculaires x10. Les comptages sont réalisés à l'aide d'une grille placée dans l'un des oculaires.

La distribution des comptages de traces dans les verres (nombre de traces/champ de vue) étant poissonnienne, l'incertitude relative sur un âge apparent est donnée par (Bigazzi *et al.*, 1986) :

$$\frac{\sigma t}{t} = \sqrt{\left(\frac{\sigma(\rho_f/\rho_i)}{\rho_f/\rho_i}\right)^2 + \left(\frac{\sigma\rho_m}{\rho_m}\right)^2} \quad (3)$$

avec : 
$$\frac{\sigma(\rho_f/\rho_i)}{\rho_f/\rho_i} = \sqrt{\frac{1}{N_f} + \frac{1}{N_{(f+i)}}} \cdot \frac{\rho^*}{\rho_i} \quad \text{et} \quad \frac{\sigma\rho_m}{\rho_m} = \frac{1}{\sqrt{N_m}}$$

Dans ces relations,  $\rho_f$ ,  $\rho_i$ ,  $\rho^*$ ,  $\rho_m$  sont définis comme précédemment,  $N_f$  est le nombre de traces fossiles comptées,  $N_{(f+i)}$  le nombre de traces fossiles + induites

comptées dans l'échantillon irradié et  $N_m$  le nombre de traces comptées pour la dosimétrie neutronique. Il est aisé de réduire l'incertitude sur  $\rho^*$  à  $\pm 2\%$ . L'incertitude sur  $\rho_m$  est en général limitée à  $\pm 1\%$ . L'incertitude sur l'âge TF d'un verre dépend essentiellement du nombre de traces  $N_{(f+i)}$  en raison de la densité souvent faible de traces de fission fossiles.

*Mesure des diamètres de traces.*- Le diamètre d'une trace, dans un verre, est défini comme la longueur de la plus grande corde reliant deux points du contour (elliptique à circulaire) des traces. On le mesure à l'aide d'une table à digitaliser reliée à un micro-ordinateur et illuminée par la chambre claire d'un microscope. Les conditions d'observation sont les mêmes que pour les comptages. De 100 à 300 diamètres, si possible, sont mesurés pour obtenir une distribution significative.

*Mesure des teneurs en uranium.*- Il n'est pas nécessaire, pour obtenir un âge TF, de déterminer la teneur en uranium des échantillons étudiés. Toutefois, la connaissance de ce paramètre devient importante, conjointement à la datation, dans les recherches sur la provenance d'artefacts en obsidienne (voir *infra*). Pour mesurer cette teneur, on inclut des fragments d'obsidiennes dans une pastille de résine, et après polissage, on fixe contre les échantillons un détecteur de kapton. On irradie cet ensemble avec un montage semblable utilisant un verre étalon de teneur connue en uranium, comme les standards du NIST mentionnés plus haut. Après irradiation en réacteur nucléaire, on révèle les traces dans les détecteurs associés aux échantillons et au standard. La teneur en uranium d'une obsidienne se déduit alors de la relation :

$$C_{\text{obs}}(\text{U}) = C_s(\text{U}) \frac{I_s}{I_{\text{obs}}} \cdot \frac{\rho_{\text{obs}}}{\rho_s} \cdot \frac{R_s}{R_{\text{obs}}} \quad (4)$$

où C, I,  $\rho$  et R sont respectivement les teneurs en uranium, les abondances isotopiques  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ , les densités de traces et le parcours moyen des fragments de fission dans un échantillon (obs) et le standard associé (s) respectivement. Dans la pratique, pour les verres standard du NIST, on prend  $R_s/R_{\text{obs}} = 1$ . Cette méthode permet de déterminer les teneurs en uranium avec une précision de  $\pm 1-2\%$  ( $1\sigma$ ).

## DATATION PAR TF DES ARTEFACTS EN OBSIDIENNE

Certaines obsidiennes présentent des qualités mécaniques qui en ont fait une matière première très recherchée pour la confection d'outillages lithiques. Elles produisent, lorsqu'on les débite, des fractures conchoïdales dont l'association constitue des tranchants souvent très effilés. Les résultats les plus remarquables s'obtiennent en débitant l'obsidienne par pression, car on accède alors à une gamme de produits d'une grande finesse. Cette caractéristique a promu dès le Paléolithique l'obsidienne au rang des matériaux naturels largement utilisés par l'Homme.

On trouve l'obsidienne dans deux types de gisements naturels : d'une part, dans des *gisements primaires*, au sein des appareils volcaniques où elles se sont formées. Elles y apparaissent sous forme de dômes, plus rarement de coulées, d'extension le plus souvent très limitée ou de blocs épars. Elle peuvent aussi être présentes en tant que ségrégations vitreuses, en lits, en nodules, etc, dans des tufs ou des coulées de laves acides. D'autre part, dans des *gisements secondaires*, après érosion et transport par des agents naturels, sur des distances plus ou moins grandes de leurs points d'émission.

### Circulation de l'obsidienne

La rareté de l'obsidienne, et particulièrement des variétés aptes à la taille, a entraîné sa diffusion culturelle depuis les sources naturelles sur des distances souvent considérables : centaines de kilomètres par voie continentale, jusqu'à des milliers de kilomètres par voie marine, comme dans l'Océan Pacifique (Bird, 1991). Chaque obsidienne présentant, en principe une composition chimique particulière, il suffirait d'analyser la composition chimique d'artefacts en obsidienne provenant de sites archéologiques et d'obsidiennes de gisements naturels pour retracer les voies d'échanges et identifier les sources. Cette approche a été souvent utilisée avec succès, mais présente des limitations dues soit à l'existence d'obsidiennes de compositions trop proches les unes des autres pour être aisément distinguées, soit à l'existence de variations intrinsèques de composition le long d'une coulée (Cann, 1983). Une approche récente consiste à associer, à la datation par traces de fission, l'analyse géochimique des artefacts et des obsidiennes trouvées dans les gisements naturels (Bigazzi *et al.*, 1992, 1993b ; Bellot-Gurlet *et al.*, 1996 ; Doriguel *et al.*, 1996 ; Poupeau *et al.*, 1996). L'application de la datation par TF à la caractérisation des obsidiennes a été utilisée essentiellement dans le bassin méditerranéen, les Carpathes,

les Andes et au Japon.

- En Méditerranée, les sources d'obsidienne sont principalement, à l'Ouest, celles de la Mer Tyrrhénienne, et à l'Est, celles des îles de la Mer Egée et du Moyen-Orient. En Méditerranée occidentale, Arias *et al.* (1986) ont montré que les seules sources identifiées de matière première sont celles de la Mer Tyrrhénienne, retrouvant ainsi par les traces de fission ce que les analyses pétrographiques avaient précédemment suggéré (Camps, 1979, figure 60, p.141).
- En Turquie, les datations par TF menées dans différents laboratoires (Bigazzi *et al.*, 1997) montrent que la méthode des traces est déjà discriminante pour la distinction des sources les plus importantes d'obsidiennes, si l'on considère les seuls âges-plateaux. Ces datations viennent d'ailleurs de suggérer une solution pour un problème laissé ouvert jusqu'à présent par les données géochimiques disponibles, qui ne distinguaient pas certaines obsidiennes anatoliennes de la région de Bingöl, en Anatolie, -celles du groupe géochimique dit "Bingöl-A" d'obsidiennes rencontrées à environ 100 km à l'Est, dans l'ensemble volcanique de Nemrud Dag (Renfrew *et al.*, 1966, 1968 ; Gratuze *et al.*, 1993), sur le lac Van. En effet, des obsidiennes géologiques récemment datées, prélevées dans la région de Bingöl et celles de Nemrud Dag présentent des âges-plateaux très différents : supérieurs à 4,5 Ma à Bingöl (Bigazzi *et al.*, 1995a, b; Bellot-Gurlet *et al.*, 1995), inférieurs à 1 Ma au lac Van (Bigazzi *et al.*, 1995a, b).

Le Proche-Orient, où avaient été menées les toutes premières études sur la provenance de l'obsidienne des sites archéologiques dès les années 60 (Cann et Renfrew, 1964) demeure donc une région où ce type de recherche reste très actuel, avec une contribution importante de la datation par traces de fission (Cauvin *et al.*, 1997).

- Les obsidiennes des Carpathes, relativement proches géographiquement des précédentes, s'en distingueraient cependant, d'après Bigazzi *et al.* (1990), par leurs caractéristiques TF (âges, teneurs en uranium), qui permettent par ailleurs de les répartir en deux groupes discrets.
- En Colombie et en Equateur, l'existence de sites archéologiques côtiers renfermant des artefacts d'obsidienne, alors qu'il n'existe aucun volcanisme à proximité, a posé le problème de l'origine de la matière première : apport par voie maritime, à partir de sources connues en Mésoamérique, ou par les vallées andines, à partir des sources de la sierra (voir Dorighel *et al.*, 1994). Les datations par TF de Miller et Wagner (1981), Arias *et al.* (1986), Bigazzi *et al.* (1992), Dorighel *et al.* (1994) ont suggéré qu'une

origine andine était envisageable.

Plus récemment, nous avons commencé un travail d'analyse des artefacts en obsidienne de sites archéologiques préhispaniques d'Equateur et de Colombie en combinant datation par traces de fission (Dorighe *et al.*, 1997a) et caractérisation géochimique par PIXE (Bellot-Gurlet *et al.*, 1997). Cette approche a permis d'une part de montrer qu'au moins dix sources d'obsidienne avaient été exploitées dans le passé et d'autre part d'établir que des échanges d'obsidienne avaient bien eu lieu entre la sierra équatorienne (en particulier à partir de la Sierra de Guamani, dans la Cordillère orientale, à proximité de Quito) et la côte pacifique (Bellot-Gurlet *et al.*, 1997 ; Dorighe *et al.*, 1997b).

- Au Japon, dans le district de Kanto, où des artefacts d'obsidienne sont présents par milliers dans de nombreux sites archéologiques depuis le Paléolithique supérieur, Suzuki (1973a) a montré que les obsidiennes des sept régions-sources volcaniques potentielles étaient, sauf deux (géographiquement proches) différenciables par la méthode des traces. Il a en outre montré comment la méthode des traces pouvait être utilisée pour calibrer la datation par hydratation des artefacts d'obsidienne (voir ci-dessous).

#### Datation des artefacts "brûlés" d'obsidienne

Le passage au feu d'artefacts d'obsidienne a pour effet de diminuer la longueur révélable des traces de fission. De tels artefacts, souvent associés à des restes de foyer, sont éventuellement repérables par une rubéfaction, un lustré caractéristique et la présence de craquelures. Dans un artefact brûlé, les traces de fission présentent fréquemment une distribution de diamètres bimodale (Miller et Wagner, 1981 ; Bigazzi *et al.*, 1990) : une population de traces courtes correspond à toutes celles qui se sont formées avant le passage au feu, où l'augmentation courte mais brutale de température a fortement altéré leur structure, alors qu'une seconde population, de tailles supérieures, correspond à celles qui se sont formées après ce recuit (figure 6). Dans des artefacts de ce type, il est possible de dater à la fois l'âge du passage dans un foyer (traces longues), et celui de l'éruption de l'obsidienne (traces courtes+traces longues). Lorsque la température lors du chauffage dépasse environ 500°C, il ne subsiste aucune trace antérieure. L'âge TF est alors celui du chauffage. On doit remarquer qu'un tel chauffage modifiant les propriétés mécaniques de l'obsidienne, on estime qu'il doit post-dater le façonnage de l'artefact considéré.

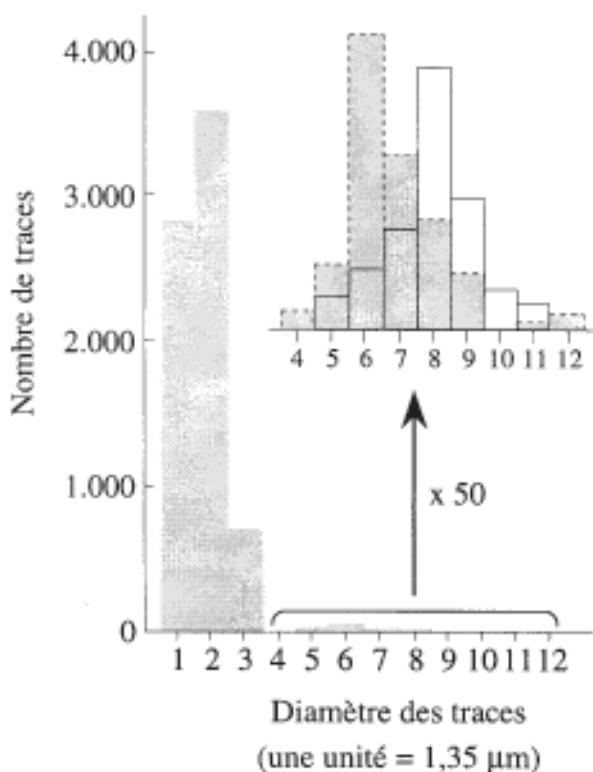


Figure 6 : Distribution des diamètres de traces dans une obsidienne brûlée. On observe, pour les traces fossiles (en grisé), une population bimodale. Les diamètres des traces fossiles les plus grandes sont légèrement inférieurs, en moyenne, à ceux des traces induites (en blanc dans l'agrandissement). L'âge TF de la population de traces longues, corrigé selon la méthode des diamètres (figure 5) de Storzer et Wagner (1969) n'est que de 3.400 ans, ce qui daterait le façonnage de cet artefact ; de la même façon, l'âge corrigé de la population de traces courtes s'élèverait à environ 2 Ma, âge de l'obsidienne (d'après Miller et Wagner, 1981).

#### Datation des obsidiennes par TF et calibration de la datation par hydratation

On sait depuis plus d'un siècle (Bonney, 1877) que l'obsidienne exposée aux eaux météoriques s'hydrate. La première manifestation de ce processus est l'apparition d'une frange superficielle d'hydratation. Aux stades les plus avancés, l'hydratation affecte l'obsidienne dans son ensemble, modifie son aspect (avec l'apparition de microcristaux) et ses propriétés physiques. C'est ce qui explique que les obsidiennes de la meilleure qualité pour la confection d'artefacts soit limitées aux plus récentes.

La couche superficielle hydratée (~ 3-5% d'eau) est repérable en microscopie optique par transmission par sa différence d'indice de réfraction d'avec l'obsidienne saine (<1% d'eau) et par sa biréfringence. Selon l'âge, la composition et l'histoire thermique d'un échantillon, l'épaisseur de la couche hydratée peut varier de zéro à plusieurs dizaines de microns, et peut être mesurée avec une grande précision. On admet, si le processus d'hydratation est contrôlé par la diffusion de l'eau au travers de la couche hydratée, que l'épaisseur  $x$  (microns) de cette bande d'hydratation croît avec le temps  $t$  selon une relation de la forme :

$$x = k t^{1/2} \quad \text{où} \quad (5)$$

k dépend de la température selon une fonction d'Arrhenius, où A est le facteur pré-exponentiel, E l'énergie d'activation de la réaction d'hydratation, R la constante des gaz parfaits et T la température en Kelvin. De plus, pour une température donnée, la valeur de k dépend de la composition chimique de l'obsidienne.

L'utilisation de cette équation nécessite donc la connaissance de l'histoire thermique de chaque échantillon, c'est à dire d'une température effective T à utiliser, adaptée à sa composition chimique, ce qui représente une des difficultés majeures de l'utilisation de l'équation (5), dont la forme reste encore discutée (voir par ex. Ericson, 1988).

Une autre approche consiste à calibrer le taux de croissance de la couche hydratée, pour plusieurs niveaux culturels d'un site, ou pour les sites archéologiques d'une région climatiquement homogène, au moyen de datations indépendantes. De cette façon, des datations par hydratation de l'obsidienne seraient réalisables empiriquement, sans recours à une équation théorique. Les datations indépendantes sont le plus souvent, pour les sites d'âges <40.000 ans, celles obtenues par le carbone 14. La disponibilité d'obsidiennes brûlées, dans les régions de grande utilisation de cette matière première, offre une alternative, opérationnelle sur un plus large spectre d'âges, par la datation TF de l'âge de passage au feu.

Ce second type de calibration a été suivi, au Japon, par Suzuki (1973a) pour les sites archéologiques du district de Kanto. Après avoir montré qu'il pouvait différencier les sources géologiques des artefacts en obsidienne de cette région par la méthode des traces (voir ci-dessus), Suzuki a observé que ces artefacts pouvaient être regroupés en cinq familles présentant des taux d'hydratation différents, mais présentant toujours, pour un niveau culturel donné, un rapport constant entre eux. Ces cinq familles d'obsidiennes correspondaient à différentes sources géologiques identifiées par TF. A partir de quatre obsidiennes brûlées datées par TF, Suzuki a pu établir une série de correspondances entre l'âge d'un artefact, son appartenance à un groupe géochimique et l'épaisseur de sa couche d'hydratation, entre environ 4.700 ans et 15.000 ans. Les résultats suggèrent, pour un groupe géochimique donné, une relation linéaire entre l'âge d'un artefact et l'épaisseur de sa couche superficielle d'hydratation. En utilisant les relations ainsi obtenues, pour les artefacts d'obsidienne des cinq familles de taux d'hydratation reconnues, Suzuki a pu dater par hydratation plus de 2.000 artefacts provenant de 152 couches culturelles réparties dans 131 sites archéologiques de la région de Kanto (Suzuki 1973b).



L'applicabilité des datations par traces de fission à la calibration des datations par hydratation de l'obsidienne dépend toutefois de façon critique des fluctuations temporelles de la température au voisinage de la surface des sols (voir par ex. Stevenson *et al.*, 1989) et des variations sur le long terme de leur humidité (Friedman *et al.*, 1994). Un auteur a même récemment estimé que la datation par hydratation de l'obsidienne pourrait n'être valable que pour des régions proches de l'Equateur, là où les variations annuelles de température n'excéderaient pas 2-3°C (Ridings, 1996).

## DATATION DES TEPHRAS ET CHRONOSTRATIGRAPHIE

On appelle tephra (du grec τέφρα, cendre) l'ensemble des fragments projetés dans l'atmosphère par une éruption volcanique. Les tephras sont composés en grande partie de fines particules, qui peuvent atteindre des altitudes de quelques dizaines de km avant d'être, pour certaines d'entre elles, dispersées par les vents jusqu'à éventuellement des milliers de kilomètres de leur point d'émission. Les produits des éruptions les plus puissantes peuvent ainsi, après leur chute, constituer des couches plus ou moins épaisses d'extension régionale importante, pouvant servir à l'établissement de corrélations stratigraphiques à grandes distances, particulièrement précieuses en régime continental.

Un tephra se compose souvent, pour plus de 90%, de matériel vitreux, paillettes de verre et ponces, additionnées parfois d'autres matériaux arrachés aux parois de la cheminée volcanique par la violence de l'éruption. En règle générale, comme pour les obsidiennes, il n'existerait pas deux tephras dont les esquilles de verre présentent une composition chimique semblable ; par contre, au sein d'un même tephra, l'expérience a montré que la composition des esquilles de verre est relativement constante. Cette particularité géochimique est largement utilisée dans les corrélations à distance de séries stratigraphiques volcano-sédimentaires ; elle constitue l'une des bases essentielles de la chronologie relative des sites à Hominidés du rift Est-africain (voir par ex. Pickford *et al.*, 1991).

Au début des années 80, on pouvait considérer que trois méthodes permettaient la datation des tephras plio-quaternaires continentaux : le carbone 14, les traces de fission (sur esquilles de verres ou minéraux, essentiellement zircons, voir Poupeau *et al.*, 1997), le Potassium-Argon (Naeser *et al.*, 1981) et sa variante, le  $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ , auxquelles devait

rapidement s'ajouter la thermoluminescence (Berger and Huntley, 1983). En 1987, Lo Bello *et al.* ont réalisé une percée en montrant que la datation  $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$  de monocristaux de feldspaths par fusion laser permettait un progrès considérable dans la précision de la datation des tephras. Depuis, cette technique de micro-datation a été appliquée avec succès à divers dépôts volcaniques problématiques de différents sites du rift Est-africain (Deino et Potts, 1990 ; Walter et Aronson, 1993 ; Walter *et al.*, 1991; Walter, 1994).

La technique de datation grain-par-grain de cristaux de feldspaths par  $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$  apparaît actuellement comme la plus performante : d'une part, s'appliquant à des cristaux individuels, comme la datation par TF des zircons, elle permet de détecter soit d'éventuelles contaminations par des éléments de socle ou provenant d'autres volcanites (tephras remaniés en surfaces), soit la présence de cristaux au comportement anormal (voir Walter, 1994) et d'éliminer leurs effets sur l'âge K-Ar ; d'autre part, elle offre la précision la plus grande, jusque vers  $\pm 0,2-0,3\%$  lorsque quelques dizaines de grains sont individuellement datés (voir par ex. Walter *et al.*, 1991 ; Walter 1994). Mais elle est limitée par la granulométrie des cristaux, qui ne doit pas être inférieure à 0,3-0,5 mm. En-deçà, il faut travailler par fusion totale sur un plus ou moins grand nombre de grains, ce qui fait disparaître l'un des avantages de la méthode.

Naeser *et al.* (1981) estiment que la contamination ne serait, en général, pas un problème avec les esquilles de verre, parce qu'il semble difficile de contaminer un dépôt de cinérite avec une quantité significative de verres plus anciens. La datation par TF des esquilles apparaît donc comme un complément et/ou une alternative viables à la datation par  $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$  sur feldspaths ou par TF sur les zircons, lorsque les phases minérales requises sont absentes ou de granulométrie trop faible pour être convenablement séparées et/ou utilisées.

#### La datation des esquilles de verre des tephras par TF

La datation des esquilles de verre par TF requiert *a priori* deux conditions : d'une part, une granulométrie d'au moins environ 80 microns, d'autre part une forme relativement massive. Le premier critère est fonction, pour partie, de la distance au point d'émission, les particules les plus lourdes étant transportées sur une moindre portée ; le second est lié à l'abondance des volatiles dans le magma. Un magma très riche en volatiles se traduira par des esquilles de verres tubulaires, en forme de parois de bulles, voire de ponces, verres très riches en bulles, alors qu'un magma plus pauvre donnera des

formes plus compactes.

Dans les tephras où les esquilles de verre présentent une morphologie convenable pour la datation par TF (compromis granulométrie/compacité), la technique de datation adoptée est celle dite des “populations”, dans laquelle traces fossiles et traces induites sont mesurées dans deux groupes différents de grains (figure 2). Dans les esquilles des tephras, la méthode conventionnelle de comptage des traces, avec une grille oculaire, est souvent impraticable, en raison du faible nombre de traces fossiles. On utilise alors une technique dite par comptage de points (Seward, 1974 ; Naeser *et al.*, 1982).

La plupart du temps, les esquilles de verre des tephras sont hydratées sous l'action des eaux météoriques. Il en résulterait une stabilité amoindrie des traces de fission fossiles, systématiquement raccourcies (Lakatos et Miller, 1972 ; Naeser *et al.*, 1980). La datation par TF de ces tephras nécessite donc toujours une correction de leur âge apparent TF. Les premières tentatives de datation par âges-plateaux de tephras dont les esquilles de verre étaient hydratées (Naeser *et al.*, 1980), se sont toutefois révélées infructueuses. En effet, selon la procédure préconisée par Storzer et Poupeau (1973) où traces fossiles et induites sont ramenées à des distributions de tailles identiques par des recuits thermiques brefs (de une à trois heures, voir Bigazzi *et al.*, 1988 ; Doriguel *et al.*, 1994 ; etc) à des températures progressivement croissantes (figure 2), on n'obtient une valeur-plateau de l'âge que pour des températures supérieures à 200°C. Lorsqu'un traitement semblable est appliqué à des esquilles hydratées, il en résulte, lors de la révélation des traces, l'apparition de craquelures et de figures de corrosion en forme de “canaux” très larges, plus ou moins anastomosés, affectant une partie importante des surfaces d'observation, rendant ainsi ces verres impropres à la datation. Naeser *et al.* (1980) en avaient donc conclu à l'inapplicabilité de la datation des verres hydratés par TF.

L'un d'entre nous (Poupeau, 1982) a cependant montré, sur des aliquotes des verres hydratés étudiés par Naeser *et al.*, qu'un traitement thermique prolongé, à température plus basse, pouvait circonvenir ce problème. Ainsi, un traitement thermique suffisamment long à des températures comprises entre 100°C et 170°C permet de réduire traces fossiles et traces induites aux mêmes dimensions, sans que la révélation chimique soit accompagnée de l'apparition d'artefacts indésirables. Cette technique a été reprise par Westgate (1989), qui a confirmé qu'un traitement thermique suffisamment long à une température modérée, inférieure à 200°C, permettait toujours d'obtenir des âges-plateaux. Il

recommande des traitements allant de 100°C pendant 90 jours à 150°C pour 15 à 30 jours (voir aussi Sandhu *et al.*, 1993).

La datation par TF des esquilles de verre est possible pour tous les tephras dont l'âge est environ >50.000 ans. Ainsi, le "Youngest Tuff" de la caldeira de Toba, en Indonésie, a-t-il ainsi été daté à  $68.000 \pm 7.000$  ans, résultat concordant avec ceux obtenus par quatre autres méthodes (K-Ar,  $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ , biostratigraphie et isotopes stables) et de précision comparable (tableau 1). La datation par TF de tephras plus récents perd rapidement de son intérêt en raison du faible nombre de traces fossiles et par conséquent de la croissance rapide de l'incertitude sur l'âge.

Du côté des âges anciens, la seule limitation provient de la dévitrification des esquilles de verre. On a ainsi pu dater par TF un tephra à  $65,67 \pm 1,68$  Ma (Westgate, 1989).

#### Datation des tephras et archéologie

La datation par TF des tephras à partir de leurs esquilles de verre a été, jusqu'à présent, occasionnellement utilisée pour le calage chrono-stratigraphique de séries stratigraphiques plio-quaternaires, comme par le groupe de Westgate au Canada (voir aussi références *in* Wagner et Van den Haute, 1992). Elle n'a été appliquée qu'exceptionnellement dans un contexte directement relié à des sites archéologiques (Hurford, 1974).

L'utilisation jusqu'à présent limitée de la datation par TF des esquilles de verres volcaniques provenait, pour une bonne part, de la lenteur et de la difficulté d'obtention des données (Walter, 1989). Cependant, avec la technique des âges-plateaux isothermes

Site	Matériel daté	Age (Ma)	Technique
Ile de Samosir	Sanidine	$0,073 \pm 0,004$	$^{40}\text{Ar} / ^{39}\text{Ar}$
Sihurahura	Biotite	$0,075 \pm 0,012$	K-Ar
Prapat	Sanidine	$0,074 \pm 0,003$	K-Ar
Malaisie	Esquilles de verre	$0,068 \pm 0,007$	TF
Océan Indien	Verre volcanique	0,075	$^{18}\text{O} / ^{16}\text{O} - \text{B}^*$

\* Age biostratigraphique et par les isotopes de l'oxygène dans les sédiments de l'Océan Indien

Tableau 1 : Comparaison entre âges isotopiques et biostratigraphiques du "Youngest Toba Tuff", Toba, Indonésie, d'après Chesner *et al.* (1991)

(Poupeau, 1982 ; Westgate, 1989) et l'informatisation de l'acquisition des données pour les mesures de diamètres de traces (Dorighel *et al.*, 1994), on peut estimer que cette approche devrait connaître rapidement un certain essor.

## LA DATATION DES VERRES ARCHEOLOGIQUES

Il existe peu d'exemples de datation de verres fabriqués par l'homme, en raison de leur faible teneur en uranium, généralement de l'ordre de quelques ppm. Ainsi, pour un verre romain renfermant 3 ppm d'uranium, le comptage de 29 traces fossiles sur une surface totale de 25 cm<sup>2</sup> aura exigé 100 heures, pour une précision de seulement  $\pm 29\%$  (Wagner et Van den Haute, 1992). Cette précision statistique ne tient par ailleurs pas compte des erreurs éventuelles d'identification des traces, qui deviennent très critiques dans ce cas limite d'un rapport signal/bruit particulièrement défavorable. Par contre, les verres fluorescents jaunes-verts dopés à l'oxyde d'uranium (avec des teneurs en U de l'ordre de quelques %), fabriqués depuis le XVIII<sup>ème</sup> siècle, conviennent très bien à la datation par TF (Brillet *et al.*, 1964 ; Fleischer *et al.*, 1965). Cette méthode a d'ailleurs déjà été utilisée à des fins d'authentification de verres anciens colorés à l'uranium (voir Wagner, 1978). Alternativement, de tels verres ont quelquefois été utilisés, lorsque leur date de fabrication était connue, pour tenter de déterminer par la méthode des traces de fission la valeur de la constante de fission spontanée de l'uranium 238 (Wagner *et al.*, 1975).

Une autre application potentielle serait la datation des scories métallurgiques anciennes, à partir de leur phase vitreuse, comme proposé par Scott (1976). On a en effet observé, dans la phase vitreuse de scories anciennes de plomb et de cuivre, des teneurs en uranium assez élevées, jusqu'à 20 ppm, distribués de façon homogène (Elitzsch *et al.*, 1983).

## CONCLUSIONS

La méthode des traces de fission de l'uranium fournit deux types d'informations sur les verres naturels et artificiels : un âge (celui du verre lui-même ou, s'il a été réchauffé,

celui de son dernier refroidissement) et sa teneur en uranium. La datation par TF ne nécessite qu'une instrumentation légère, aisée à mettre en oeuvre.

Ses domaines d'application concernent, pour les verres naturels, d'une part les études d'artefacts en obsidienne : soit pour les études de provenance de la matière première, elle est alors utilisée, comme l'approche géochimique, en tant que méthode analytique discriminante ; soit pour les artefacts brûlés, comme méthode de datation de ces objets. Dans ce cas, elle peut contribuer à l'établissement d'une échelle régionale de calibration de la datation par hydratation de l'obsidienne. D'autre part, la tephrochronologie qui, combinée à d'autres méthodes d'analyse chrono-stratigraphiques, permet à la fois le calage temporel de sites archéologiques et des corrélations stratigraphiques entre sites parfois très éloignés les uns des autres.

La méthode des traces est aussi potentiellement applicable aux verres fabriqués, avec une importante restriction, due à la combinaison d'une teneur en uranium en général faible et d'une gamme d'âges relativement récents, d'où un signal "traces" très faible. En pratique, cette méthode s'appliquera donc en priorité à des études d'authentification de verres colorés par l'inclusion de sels d'uranium.

**Remerciements.** - Le premier auteur de ce travail tient à remercier Isabel de Souza Azevedo, Elisa Baggio Saitovitch et Rosa B. Scorzelli de leur invitation à participer à cet ouvrage dédié à la mémoire de Jacques Danon. Ce travail a été préparé en partie dans le cadre du GDR 1033 du CNRS, "Méthodes Nucléaires en Archéologie".

## REFERENCES

- Arias C., Bernardes C., Bigazzi G., Bonadonna F. P., Cesar M. F., Hadler Neto J. C., Lattes C. M. G., Oliveira J. X., Osoria Araya, A. M. et Radi G., 1986, Identificação de obsidianas com o metodo dos traços de fissão, *Ciencia e Cultura*, **38**, 285-308.
- Balestrieri M. L., Bigazzi G., Bouska V., Labrin E., Hadler Neto J. C., Kitada N., Osorio Araya A. M., Poupeau G., Wadatsumi K. et Zuniega A., 1997a Potential glass age standards for fission-track dating : an overview, à paraître dans *Proc. 8th Intern. Workshop on Fission Track Dating*, Gent (Belgique), 26-30 septembre.
- Bellot-Gurlet L., Doriguel O., Riou L., Poupeau G., Cauvin M.-C. et Chataigner C., 1995, Caractérisation et datation par traces de fission d'obsidiennes de la région de Bingöl (Anatolie orientale,

- Turquie), *L'Archéométrie dans les Pays Européens de Langue Latine*, Périgueux (France), 26-29 avril, résumé.
- Bellot-Gurlet L., Calligaro T., Dorighel O., Dran J.-C., Poupeau G. et Salomon J., 1996, On the coupling of PIXE and fission track dating for obsidian sourcing, *Intern. Assoc. Obsidian Studies Bull.*, n°16, 3-7.
- Bellot-Gurlet L., Poupeau G., Dorighel O., Calligaro T., Dran J.-C. et Salomon T., 1997, A PIXE/fission track dating approach to sourcing studies of obsidian artefacts in Colombia and Ecuador, *J. Archaeological Sci.*, soumis.
- Berger G. W. et Huntley D. J., 1983, Dating volcanic ash by thermoluminescence, *PACT*, **9**, 581-592.
- Bigazzi G., Bonadonna F. et Neto J. C., 1986, Contribution to statistics in fission track counting, *Nucl. Tracks*, **11**, 123-136.
- Bigazzi G., Dompnier E., Hadler Neto J. C., Poupeau G. et Vuilliez E, 1988, A reactor intercalibration for fission-track dating and uranium micromapping, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, **15**, 755-757.
- Bigazzi G., Marton P., Norelli P. et Rozložnik L., 1990, Fission track dating of carpathian obsidians and provenance identification, *Nucl. Tracks Radiat. Meas., Int. J. Radiat. Appl. Instrum., Part D*, **17**, 391-396.
- Bigazzi G., Coltrelli M., Hadler Neto J. C., Osorio Araya A. M., Oddone M. et Salazar E., 1992, Obsidian-bearing lava flows and pre-columbian artefacts from the Ecuadorian Andes : First new multidisciplinary data, *J. South Amer. Earth Sci.*, **6**, 31-32.
- Bigazzi G., Bonadonna F. P., Laurenzi M. A. et Tonarini S., 1993a, A test sample for fission-track dating of glass shards, *Nuclear Tracks Radiat. Meas.*, **21**, 489-497.
- Bigazzi G., Ercan T., Oddone M., Ozdogan M. et Yezingil Z., 1993b, Application of fission track to archaeometry : provenance studies of prehistoric obsidian artefacts, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, **22**, 757-762.
- Bigazzi G., Yegingil Z., Ercan T., Oddone M. et Özdogan M., 1995a, The Pisa-Adana joint project on provenance studies of prehistoric obsidian artifacts : first results from Eastern Anatolia, *Proc. Symposium on Archaeometry*, Ankara (Turquie), 9-14 mai 1994, sous presse.
- Bigazzi G., Yegingil Z., Ercan T., Oddone M. et Özdogan M., 1995b, Provenance studies of prehistoric artifacts in Eastern Anatolia : interdisciplinary research results, *Mineralogica et Petrographica Acta*, XXXVII, 17-36.
- Bigazzi G., Poupeau G., Yegingil Y. et Bellot-Gurlet L., 1997, Provenance studies of obsidian artefacts in Anatolia using the fission track dating method : an overview, in *Synthèse sur l'obsidienne au Proche-Orient : du Volcan à l'Outil (Géologie, Géochimie, Datations, Archéologie)*, M.-C. Cauvin, A. Gourgaud, B. Gratuze, J.-L. Poidevin et G. Poupeau, Eds., BAR Intern. Series, Tempus Reparatum, Oxford (Angleterre), sous presse.
- Bird J. R., 1991, Obsidian characterisation and the peopling of the Pacific, in : *La Pierre Préhistorique*, M. Menu et Ph. Walter Eds., Laboratoire de Recherche des Musées de France, Paris, 59-70.
- Bonney T. G., 1877, On certain rock-structure, illustrated by pitchstones and felsites in Arran, *Geol. Mag.*, (II) **4**, 499-501.
- Brill R. H., 1964, Applications of fission-track dating to historic and pre-historic glasses, *Archaeometry*, **7**, 51-57.
- Brill R. H., Fleischer R. L., Price P. B. et Walker R. M., 1964, The fission track dating of man-made glass : part I, preliminary results, *J. Glass Studies*, **6**, 151-155.
- Camps G., 1979, *Manuel de Recherche Préhistorique*, Doin, Paris, pp. 445.

- Cann J. R., 1983, Petrology of obsidian artefacts, in : *The Petrology of Archaeological Artefacts*, D. R. C. Kempe Ed., Clarendon Press, Oxford, 227-255.
- Cann J. R. et Renfrew C., 1964, The characterization of obsidian and its application to the Mediterranean region, *Proc. Prehist. Soc.*, **30**, 111-113.
- Chesner C. A., Rose W. I., Deino A., Drake R. et Westgate J. A., 1991, Eruptive history of earth's largest quaternary caldera (Toba, Indonesia) clarified, *Geology*, **19**, 200-203.
- Cauvin M.-C., Gourgaud A., Gratuze B., Poidevin J.-L. et Poupeau G., Eds, 1997, *Synthèse sur l'obsidienne au Proche-Orient : du Volcan à l'Outil (Géologie, Géochimie, Datations, Archéologie)*, BAR Intern. Series, Tempus Reparatum, Oxford (Angleterre), sous presse.
- Deino A. et Potts R., 1990, Single crystal  $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$  dating of the Olorgesailie formation, southern Kenya rift, *J. Geophys. Res.*, **95**, 8453-8470.
- Dorighel O., Poupeau G., Bouchard J.-F. et Labrin E., 1994, Datation par traces de fission et étude de provenance d'artefacts en obsidienne des sites archéologiques de La Tolita (Equateur) et Inguapi (Colombie), *Bull. Soc. Préhist. Fr.*, **91**, 133-144.
- Dorighel O., Bellot-Gurlet L., Poupeau G., Bouchard J.-F. et Widemann F., 1996, Premiers résultats sur la provenance des artefacts en obsidienne de quelques sites archéologiques côtiers de Colombie et d'Equateur, *Revue d'Archéométrie (Supplément)*, 59-64.
- Dorighel O., Poupeau G., Labrin E. et Bellot-Gurlet L., 1997a, Fission track dating and provenience of prehistoric obsidian artefacts in Colombia and Ecuador, *Proc. 8th Intern. Workshop on Fission Track Dating*, Gent (Belgique), 26-30 septembre, soumis.
- Dorighel O., Bellot-Gurlet L. et Poupeau G., 1997b, Caracterizacion de artefactos en obsidiana mediante PIXE y trazas de fision. Un enfoque sobre las fuentes de materia prima utilizadas en Ecuador y Colombia entre 9000 AC y 1500 AD, *Proc. 49 Congreso Intern. de Americanistas*, Quito, 6-11 juillet, sous presse.
- Elitzsch C., Pernicka E. et Wagner G. A., 1983, Thermoluminescence dating of archaeometallurgical slags, *PACT*, **9**, 271-286.
- Ericson J. E., 1988, Obsidian hydration rate development, in : *Materials Issues in Art and Archaeology*, special issue of : *Material Research Society Symposium proceedings*, 215-224.
- Friedman I., Trembour F. W., Smith F. L. et Smith G. I., 1994, Is obsidian hydration dating affected by relative humidity? *Quatern. Res.*, **41**, 185-190.
- Fleischer R. L., Price P. B. and Walker R. M., 1975, *Nuclear Tracks in Solids ; Principles and Applications*, University of California Press, Berkeley, pp. 605.
- Gratuze B., Barrandon J. N., Al Isa K. et Cauvin M. C., 1993, Non-destructive analysis of obsidian artefacts using nuclear techniques : investigation of provenance of near eastern artefacts, *Archaeometry*, **35**, 11-21.
- Hurford A. J., 1974, Fission track dating of a vitric tuff from East Rudolf, North Kenya, *Nature*, **249**, 236-237.
- Lakatos S. et Miller D. S., 1972, Evidence for the effect of water on fission-track annealing in volcanic glass, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **14**, 128-130.
- Lo Bello P., Féraud G., Hall C. M., York D., Lavina P. et Bernat M., 1987,  $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$  step-heating and laser-fusion dating of a Quaternary pumice from Neschers, Massif Central, France : the defeat of xenocrystic contamination, *Chem. Geol. (Isotope Geosci.)*, **66**, 61-71.
- Miller D. S. et Wagner G. A., 1981, Fission-track ages applied to obsidian artefacts from South America using the plateau-annealing and the track-size age-corrections techniques, *Nucl. Tracks*, **5**, 147-155.



- Naeser C. W., Izett G. A. et Obradovitch J. D., 1980, Fission-track and K-Ar ages of natural glasses, *U. S. Geol. Survey Bull.* **1489**, 31p.
- Naeser C. W., Briggs N. D., Obradovitch J. D. et Izett G. A., 1981, Geochronology of Quaternary tephra deposits, in S. Self et R.S.J. Sparks Eds., *Tephra Studies*, Reidel, 13-47.
- Naeser N. D., Westgate J. A., Hughes O. L. et Péwé T. L., 1982, Fission-track ages of late Cenozoic distal tephra beds in the Yukon Territory and Alaska, *Can. J. Earth Sci.*, **19**, 2167-2178.
- Pickford M., Senut B., Poupeau G., Brown F. et Haileab B., 1991, Corrélation entre les cinérites du rift occidental (Ouganda) et celles du bassin du lac Turkana (Kenya/Ethiopie) et du golfe d'Aden, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **313**, série II, 223-229.
- Poupeau G., 1982, Precision, accuracy and meaning of fission track ages, in : *Nuclear Tracks*, J. N. Goswami Ed., The Indian Academy of Sciences, Bangalore, 53-100.
- Poupeau G., Labrin E., Sabil N., Bigazzi G., Arroyo G. et Vatin-Pérignon N., 1993, Fission-track dating of 15 macusanite glass pebbles from the Macusani volcanic field (SE Peru), *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, **21**, 499-506.
- Poupeau G., Bellot-Gurlet L., Dorighel O., Calligaro T., Dran J.-C. et Salomon J., 1996, PIXE et traces de fission : une approche des réseaux d'échange de l'obsidienne dans l'aire andine préhispanique (Colombie, Equateur), *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **323**, série IIa, 443-450.
- Poupeau G., Toro Villegas G., Bellot-Gurlet L. et Cisternas M. E., 1997, Datacion por trazas de fision y tefrocronologia, *Revista Chilena de Geologia*, soumis.
- Price P. B. et Walker R.M., 1963, Fossil tracks of charged particles in micas and the age of minerals, *J. Geophys. Res.*, **68**, 4748-4862.
- Renfrew C., Dixon J. E. et Cann J. R., 1966, Obsidian and early cultural contact in the Near East, *Proc. Prehist. Soc.*, **32**, 30-72.
- Renfrew C., Dixon J. E. et Cann J. R., 1968, Further analysis of Near Eastern obsidians, *Proc. Prehist. Soc.*, **34**, 319-331.
- Ridings R., 1996, Where in the world does obsidian hydration dating works? *Amer. Antiquity*, **61**, 136-148.
- Sandhu A. S., Westgate J. A. et Alloway B. V., 1993, Optimizing the isothermal plateau fission-track dating method for volcanic glass shards, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, **21**, 479-488.
- Seward D., 1974, Age of New Zealand pleistocene substages by fission-track dating of glass shards from tephra horizons, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **24**, 242-248.
- Scott B. G., 1976, The possible application of fission-track counting to the dating of bloomery slag and iron, *Hist. Metall.*, **10**, 87.
- Stevenson C. M., Carpenter J. et Scheetz B. E., 1989, Obsidian dating : recent advances in the experimental determination and application of hydration rates, *Archaeometry*, **31**, 193-206.
- Storzer D. et Poupeau G., 1973, Ages-plateaux de minéraux et verres par la méthode des traces de fission, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **276D**, 137-139.
- Storzer D. et Wagner G. A., 1969, Correction of thermally lowered fission-track ages of tektites, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **5**, 463-468.
- Suzuki M., 1973a, Chronology of prehistoric human activity in Kanto, Japan. Part I, Framework for reconstructing prehistoric human activity in obsidian, *J. Fac. Sci., The University of Tokyo, Sec. V, vol. IV, Part 3*, 241-318.
- Suzuki M., 1973b, Chronology of prehistoric human activity in Kanto, Japan. Part II, Time-space analysis of obsidian transportation, *J. Fac. Sci., The University of Tokyo, Sec. V, vol. IV, Part 4*, 395-469.

- Wadatsumi K., Kitada N., Bigazzi G., Deino A., Laurenzi M., Kowallis B., Nagao K. et Masuda H., 1994, Obsidian from Japan as a “putative” glass age standard “JAS-G1”, *ICOG 8*, Berkeley, California, 5-11 juin, Résumés, 345.
- Wagner G. A., 1978, Archaeological applications of fission-track dating, *Nuclear Track Detection*, **2**, 51-64.
- Wagner G. A. et Van den Haute P., 1992, *Fission-track dating*, Kluwer Academic Press, Dordrecht, pp. 285.
- Wagner G. A., Reimer G. M., Carpenter B. S., Faul H., Van der Linden R. et Gijbels R., 1975, The spontaneous fission rate of  $^{238}\text{U}$  and fission track dating, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **39**, 1279-1286.
- Walter R. C., 1989, Application and limitation of fission-track chronology to quaternary tephra, *Quaternary International*, **1**, 35-46.
- Walter R. C., 1994, Age of Lucy and the first family : single-crystal  $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$  dating of the Denen Dora and lower Kada Hadar members of the Hadar formation, Ethiopia, *Geology*, **22**, 6-10.
- Walter R. C. et Aronson J. L., 1993, Age and source of the Sidi Hakoma tuff, Hadar formation, Ethiopia, *J. Human Evolution*, **25**, 229-240.
- Walter R. C., Manega P. C., Hay R. L., Drake R. E. et Curtiss G. H., 1991, Laser-fusion  $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$  dating of Bed I, Olduvai Gorge, Tanzania, *Nature*, **354**, 145-149.
- Westgate J. A., 1989, Isothermal plateau fission-track ages of hydrated glass shards from silicic tephra beds, *Earth Planet Sci. Lett.*, **95**, 226-234.



**ESSAYS ON INTERDISCIPLINARY TOPICS  
IN NATURAL SCIENCES**

**MEMORABILIA: JACQUES A. DANON**

Edited by

R. B. Scorzelli  
I. Souza Azevedo  
E. Baggio Saitovitch

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS (CBPF)  
RIO DE JANEIRO, BRAZIL, 1997

---

EDITIONS  
FRONTIERES