

GIULIO BIGAZZI \*, FRANCESCO PAOLO BONADONNA \*\*, GIORGIO FERRARA \*

DATAZIONE DEGLI ZIRCONI:  
CONFRONTO DELLE ETÀ OTTENUTE CON IL METODO  
DELLE TRACCE DI FISSIONE E CON IL METODO  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$

RIASSUNTO. — Sono stati datati con il metodo delle tracce di fissione cinque campioni di zirconi di età compresa tra circa 12 e circa 140 m.a.. I conteggi delle tracce fossili ed indotte sono stati effettuati sulle facce non lucidate dei cristalli. I risultati delle misure sono stati confrontati con quelli ottenuti sugli stessi campioni con il metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ . La tecnica impiegata dà buoni risultati quando le superfici esaminate non presentano segni di contaminazione.

ABSTRACT. — Five zircon samples, ranging in age between 12 and 140 m.y. were dated with the fission track method. The fossil and induced fission tracks were counted on the unpolished crystal faces. The comparison with the  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$  ages measured on the samples were satisfactory. This technique gives good results if the crystals faces are not contaminated.

### Introduzione

Gli zirconi contenuti in molte rocce intrusive ed effusive hanno in generale un alto contenuto di uranio che li rende particolarmente adatti per la datazione con il metodo delle tracce di fissione delle formazioni giovani (BIGAZZI e FERRARA, 1971). Essi inoltre sono molto resistenti ai fenomeni che provocano il « fading delle tracce » (FLEISCHER et Al., 1965; GLEADOW e LOVERING, 1974; NISHIDA e TAKASHIMA, 1975), per cui rivestono grande importanza nella datazione delle rocce che abbiano subito effetti termici e metamorfici (NAESER, 1971; BIGAZZI et Al., 1973). Il metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$  dà in genere ottimi risultati nel corso della misura dell'età dello zircone; tuttavia questo metodo radiometrico richiede una tecnica molto elaborata e costosa. La quantità di campione necessaria per la misura è molto maggiore che per il metodo delle tracce di fissione. Si incontrano, inoltre, grandi difficoltà quando si debbono datare con il  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$  formazioni di età dell'ordine dei milioni di anni.

Da quanto detto si vede l'importanza di approfondire lo studio della tecnica per la datazione degli zirconi con il metodo delle tracce di fissione. Le difficoltà che si devono affrontare sono principalmente connesse alla rivelazione delle tracce e al conteggio. In generale un campione di un minerale costituito da piccoli frammenti viene datato, in sintesi, nel modo seguente: si divide il campione in due frazioni,

\* Laboratorio di Geocronologia e Geochimica Isotopica, C.N.R. - Via Cardinale Maffi, 36 - Pisa.

\*\* Laboratorio di Geologia Nucleare dell'Università di Pisa.

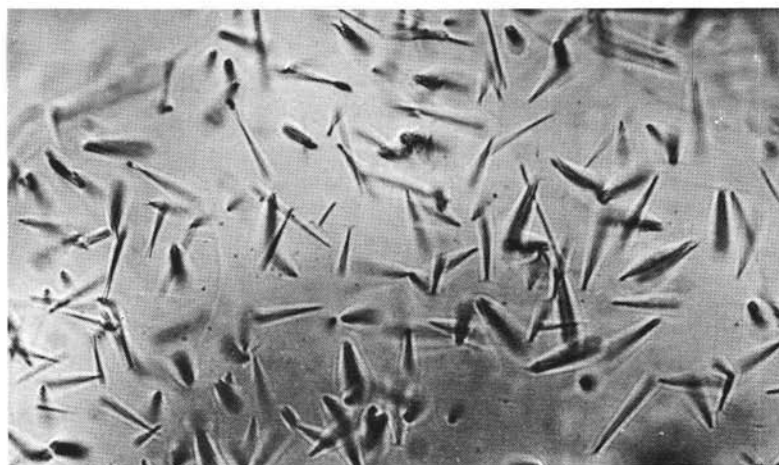


Fig. 1. — Tracce fossili e indotte su una faccia di uno zircone. I due tipi di tracce sono facilmente distinguibili per le loro dimensioni.

TABELLA 1

*Confronto dei risultati ottenuti con il metodo delle tracce di fissione e con il metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ . La dose di neutroni è riferita agli standard SRM 962 e SRM 964 del National Bureau of Standards (Washington - USA)*

campione	dose di neutroni neut/cm <sup>2</sup>	$\rho_T/\rho_F$	Età - tracce di fissione m.a. <sup>†</sup>	Età - $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ m.a. <sup>††</sup>
JM71-14 Z	$1.92 \times 10^{15}$	9.77	$12.2 \pm 0.4$	14.1
JM71-18 Z	$1.92 \times 10^{15}$	3.70	$32.2 \pm 2.2$	17.5
JM71-21 Z	$1.92 \times 10^{15}$	5.48	$21.6 \pm 1.2$	21.8
TRIO - 3	$1.73 \times 10^{16}$	7.72	$138.6 \pm 8.6$	154
IP - 4	$1.73 \times 10^{16}$	8.07	$132.5 \pm 5.4$	154

† L'errore è soltanto quello statistico relativo al conteggio delle tracce

†† Le età  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$  sono state eseguite da James M. Mattinson del Carnegie Institution of Washington, che ha fornito tutti i campioni e i risultati da lui ottenuti con questo metodo

una delle quali viene irraggiata con neutroni termici; le due frazioni vengono quindi montate con resine sintetiche. I due preparati vengono smerigliati e lucidati; dopo l'attacco chimico si contano sulla frazione irraggiata le tracce indotte, sull'altra le tracce fossili. Ma le grandi differenze di contenuto di uranio che si riscontrano generalmente tra cristallo e cristallo dello stesso campione di zirconi (NAGAJ, 1968) impongono di eseguire il conteggio delle tracce fossili e delle indotte corrispondenti sulla stessa superficie di ogni grano. D'altro canto l'alta temperatura alla quale ge-

neralmente devono essere eseguiti gli attacchi chimici (FLEISCHER et Al., 1964; NAESER, 1969; KRISHNAWAMI et Al., 1974) rende difficoltoso l'uso dei montaggi con resine sintetiche.

Senza pretendere di risolvere definitivamente il problema della datazione degli zirconi, abbiamo qui sperimentato una tecnica molto semplice, che consiste nel conteggio delle tracce fossili ed indotte sulle facce non lucidate dei cristalli. I risultati sono stati confrontati con quelli ottenuti con il metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$  sullo stesso campione. Abbiamo scelto questo confronto perchè, come abbiamo detto, gli zirconi sono resistentissimi agli effetti termici e metamorfici sia per quanto riguarda l'uso del metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$  che l'uso del metodo delle tracce di fissione. In letteratura si trovano misure eseguite con le tracce di fissione sugli zirconi confrontate con quelle ottenute per esempio col K/Ar o col Rb/Sr su altre fasi minerali della stessa roccia (NAESER e McKEE, 1970; BIGAZZI e FERRARA, 1971), ma le differenze talvolta osservate non sono univocamente interpretabili. In effetti nel caso di rocce intrusive recenti, non si può trascurare il tempo di raffreddamento della formazione: gli zirconi, data l'alta resistenza al « fading », cominciano a registrare tracce prima che in altre fasi minerali l'argon venga trattenuto o lo stronzio non diffonda. Quando le rocce abbiano subito effetti metamorfici si ottengono spesso età apparenti completamente contrastanti quando si usino metodologie diverse su fasi differenti. È meglio quindi che le misure con le tracce di fissione sugli zirconi vengano confrontate con quelle ottenute nella stessa fase minerale: in questo caso eventuali discrepanze sono presumibilmente ascrivibili alla tecnica della datazione.

### Tecnica di misura e risultati

La tecnica da noi adoperata è la seguente:

- 1) rivelazione delle tracce fossili con attacco in acido fosforico al 100 % per circa un'ora a 400° C;
- 2) immersione dei cristalli in una mistura (1:1) di acido solforico al 95 % e acido fluoridrico al 40 % per circa 10' ad una temperatura intorno ai 250° C. Questo trattamento libera le superfici dei cristalli da tutte le impurezze; la durata e la temperatura non sono critici;
- 3) irraggiamento con neutroni termici dei cristalli annegati in balsamo del Canada, montati in un « sandwich » in modo che siano separati, gli uni dagli altri, da uno strato di un « mezzo » dal contenuto di uranio trascurabile di spessore maggiore del range dei frammenti di fissione;
- 4) rivelazione delle tracce indotte come al punto 1) (in questo secondo attacco vengono raddoppiati i diametri delle tracce fossili che saranno quindi riconoscibili per le loro dimensioni, superiori a quelle delle indotte);
- 5) immersione in acido solforico e acido fluoridrico come al punto 2).

Gli zirconi sono stati montati in un vetrino da microscopio: lo scanning, eseguito con un ingrandimento 1000x, è stato fatto selezionando le superfici sicu-

mente esterne dei cristalli (e cioè a geometria  $2\pi$  sia per le tracce fossili che per le indotte) nelle quali i due tipi di tracce fossero perfettamente distinguibili per le dimensioni (fig. 1). Questa tecnica semplice e pratica permette la datazione anche su quantità minime di campione. Le principali critiche che possono essere fatte alla tecnica sopra descritta sono:

- dato che il tempo di attacco per la rivelazione delle tracce dovute alla fissione spontanea dell' $^{238}\text{U}$  è doppio, un certo numero di tracce fossili sviluppate solo durante il secondo trattamento con acido fosforico può essere stato contato nello scanning tra le rocce indotte;
- usando superfici esterne si presuppone che il contenuto di uranio degli zirconi sia molto maggiore di quello della roccia dalla quale sono stati separati e che non esistano contaminazioni delle superfici da parte delle rocce stesse.

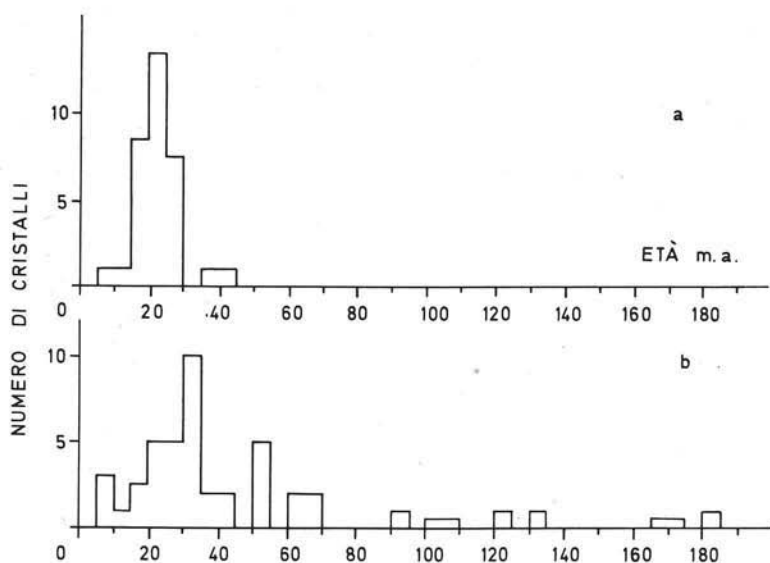


Fig. 2. — Distribuzione del numero di cristalli sui quali sono stati eseguiti i conteggi in funzione dell'età « apparente » calcolata per ognuno di essi. L'istogramma relativo al campione JM71-21 Z (fig. 2 a) ha un aspetto molto diverso da quello del campione JM71-18 Z (fig. 2 b). Le facce dei cristalli del campione JM71-18 Z sono contaminate, per cui vengono contate, tra le tracce fossili, tracce provenienti dall'esterno.

Per quanto riguarda il punto a) abbiamo verificato sperimentalmente che in due attacchi successivi nelle condizioni standard la densità delle tracce non aumenta in quantità apprezzabile sulle superfici esterne dei cristalli. Il campione IP-4, già attaccato per la rivelazione delle tracce fossili ed indotte, è stato nuovamente immerso in acido fosforico per 60' a 400° C. Durante lo scanning le nuove tracce rivelate dall'acido sono state contate tra le tracce indotte, mentre il numero delle tracce fossili contate è rimasto costante, perché abbiamo considerato tracce di fis-

sione dell' $^{228}\text{U}$  soltanto quelle che avessero un diametro pari a circa tre volte quello osservato per un attacco di 60'; l'eventuale incremento delle tracce è in questo modo misurato dall'incremento del rapporto  $\rho_i/\rho_F$ . Abbiamo osservato un aumento di valore di  $\rho_i/\rho_F$  del 5,6 % passando da  $\rho_i/\rho_F = 8,14 \pm 4\%$  a  $\rho_i/\rho_F = 8,59 \pm 6,7\%$ : dati gli errori sperimentali la differenza osservata non è significativa. In accordo con i dati precedenti, nel caso più sfavorevole, la densità superficiale delle tracce può essere aumentata al massimo del 16 %; questo porterebbe ad una differenza del 16 % nel calcolo finale dell'età soltanto quando  $\rho_i/\rho_F = 1$ , mentre in generale,

TABELLA 2

*Età apparenti di due cristalli del campione JM71-18 Z. Quello della riga superiore è chiaramente contaminato, l'altro ha un aspetto normale per quanto riguarda la lunghezza delle tracce e la loro distribuzione. Nell'ultima colonna abbiamo riportato, per confronto, le lunghezze medie delle tracce fossili misurate su alcuni cristalli del campione JM71-14 Z, che non presenta alcun segno di possibile contaminazione delle superfici*

aspetto delle superfici attaccate	età apparente in m.a.	lunghezza media delle tracce fossili	lunghezza media delle tracce indotte	lunghezza media delle tracce fossili-campione JM71 - 14 Z
addensamenti irregolari di tracce - lunghezza tra 1 e 8 $\mu$	38.6 $\pm$ 7.9	3.9 $\pm$ 0.4	5.8 $\pm$ 0.4	5.9 $\pm$ 0.4 5.4 $\pm$ 0.3 5.7 $\pm$ 0.3 5.8 $\pm$ 0.3 6.0 $\pm$ 0.4 5.7 $\pm$ 0.4 5.9 $\pm$ 0.4
tracce con distribuzione apparentemente uniforme e lunghezze tra 2,7 e 8 $\mu$	21.3 $\pm$ 6.4	5.2 $\pm$ 0.3	6.0 $\pm$ 0.4	

dato che questa differenza va divisa per il valore del rapporto  $\rho_i/\rho_F$ , noi avremmo potuto commettere un errore al massimo del 4 %, dato che abbiamo scelto dosi integrate di neutroni tali da determinare un numero di tracce indotte almeno quattro volte più grande di quello delle tracce fossili.

Per quanto riguarda il punto *b*), oltre che da un controllo diretto della distribuzione dell'uranio che si può eseguire irraggiando un sandwich costituito da una sezione sottile della roccia e da un detector, la eventuale presenza di tracce originate da fissioni avvenute esternamente ai cristalli si accerta mediante la misura delle lunghezze delle tracce che si osservano sulla loro superficie. Per una geometria  $2\pi$  la lunghezza delle tracce è compresa tra 3,5 e 8  $\mu$ ; la presenza di tracce più corte o un aspetto anomalo dell'istogramma che rappresenta la distribuzione delle tracce in funzione della loro lunghezza indicano o che l'ambiente che circondava il cristallo aveva un contenuto di uranio non trascurabile, o che la superficie non è esterna o che è contaminata.

Anche un metodo basato su una geometria « mista » ( $4\pi$  per le tracce fossili e  $2\pi$  per le tracce indotte) non è esente da critiche, in quanto per la disomogeneità della concentrazione di uranio dei cristalli di zirconio notata in molti campioni,

la superficie pulimentata per la misura della densità delle tracce potrebbe trovarsi in una zona del grano in cui c'è un gradiente del contenuto dell'uranio. In questo caso tracce fossili e tracce indotte sarebbero proporzionali a concentrazioni di uranio differenti tra di loro. I risultati che abbiamo ottenuto sono esposti in Tab. 1.

TABELLA 3

*Risultato della datazione effettuata sul campione JM71-18 Z eseguendo i conteggi su superfici interne lucidate (geometria  $4\pi$  per le tracce fossili e per le tracce indotte). Il dato ottenuto è, in questo caso, in accordo con quello relativo alla misura eseguita con il metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$*

campione	densità media tracce fossili tracce/cm <sup>2</sup> x10 <sup>-5</sup>	densità media tracce indotte tracce/cm <sup>2</sup> x10 <sup>-5</sup>	$\rho_I/\rho_F$	ETA' m.a.
JM71-18 Z	5.39±0.51	31.96±1.81	5.93	20.0±2.2

Soltanto nel caso del campione JM71-18 Z abbiamo ottenuto un'età assolutamente diversa da quella ottenuta col metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ . Ciò è dovuto alla forte contaminazione delle superfici dei cristalli che ha alterato il risultato della misura dell'età con il metodo delle tracce di fissione. La contaminazione è testimoniata da questi fatti:

- 1) la distribuzione del numero dei cristalli in funzione dell'età ha un andamento anomalo (vedi la fig. 2, dove abbiamo riportato per il confronto l'istogramma relativo al campione JM71-21 Z che ha un'età  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$  molto simile a quella del campione JM71-18 Z);
- 2) si notano sulle superfici degli zirconi numerose « stelle » (zone ad altissima concentrazione di tracce dovuta a impurezze di contenuto di uranio elevato) costituite da tracce molto corte;
- 3) mentre la lunghezza media delle tracce indotte è di circa 5,9  $\mu$ , con valori compresi tra 3,5 e 8  $\mu$ , la lunghezza media delle tracce fossili in questo caso è minore e varia da cristallo a cristallo fino a lunghezze di circa 1  $\mu$ . Una lunghezza media pari a 5,9  $\mu$  è tipica sia per le tracce fossili che per le tracce indotte sulle facce degli zirconi.

Nella Tab. 2 sono riportate le lunghezze medie delle tracce fossili e l'età apparente di due cristalli del campione JM71-18 Z. Nell'ultima colonna abbiamo riportato, per il confronto, le lunghezze medie delle tracce fossili relative ad alcuni grani del campione JM71-1-14 Z che non presenta alcun indizio di contaminazione esterna. Come si vede per il cristallo che ha caratteristiche quasi normali si ottiene un valore di età molto vicino a quello determinato col  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ .

Abbiamo ripetuto la datazione del campione JM71-18 Z utilizzando per la misura delle densità di tracce superfici interne pulimentate; il campione è stato

diviso in due frazioni, una per le tracce fossili e l'altra per le tracce indotte (per inciso, come già detto, questa tecnica non dà generalmente buoni frutti nel caso degli zirconi, date le enormi differenze di concentrazione di uranio tra cristallo e cristallo osservate in molti campioni; ma nel campione in esame avevamo notato che il contenuto medio delle tracce indotte non variava molto). Il risultato della datazione è visibile nella Tab. 3.

Se si tiene conto che l'errore è pari a una deviazione standard e si riferisce solo al conteggio, il valore di età riportato è in accordo con quello misurato con il metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ .

TABELLA 4

*Breve descrizione dei campioni presi in esame in questo lavoro*

campione	descrizione del campione studiato	provenienza
JM71-14 Z	crystallizzazione del "core" del plutone nell'area della Whire River Valley	complesso vulcano-plutonico di Tatoosh (Washington)
JM71-18 Z	crystallizzazione del "core" del plutone presso il ponte del Nisqually River	
JM71-21 Z	crystalli della piroclastite dovuta alla eruzione del magma. Clear West Peak	
TR 10-3 IP-4		ofioliti giurassiche (Washington)

*Ringraziamenti* - Gli Autori ringraziano il dr. JAMES M. MATTINSON del Carnegie Institute of Washington che ha fornito i campioni da noi esaminati ed ha eseguito le misure di età con il metodo  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ .

## BIBLIOGRAFIA

- BIGAZZI G., BONADONNA F.P., FERRARA G., INNOCENTI F. (1973) - *Fission track ages of zircons and apatites from Northern Appennine ophiolites*. Fortschr. der Mineralogie, 50, 3, 51-53.
- BIGAZZI G., FERRARA G. (1971) - *Determinazione dell'età di zirconi con il metodo delle tracce di fissione*. Rend. Soc. It. Min. Petr., XXVII, 295-304.
- FLEISCHER R.L., PRICE P.B., WALKER R.M. (1965) - *Effects of temperature pressure and ionization on the formation and the stability of fission tracks in minerals and glasses*. J. Geophys. Res., 70, 1497.
- FLEISCHER R.L., PRICE P.B., WALKER R.M. (1964) - *Fission track ages of zircons*. J. Geophys. Res., 69, 4885.
- GLEADOW A. J. W., LOVERING J. P. (1974) - *The effects of weathering on fission track dating*. E.P.S.L., 22, 163-168.
- KRISHNAWAMI S., LAL D., PRABHU N., MACDOUGALL D. (1974) - *Characteristic of fission tracks in zircons, application to geochronology and cosmology*. E.P.S.L., 22, 51-59.
- NAESER C. W. (1969) - *Etching fission tracks in zircons*. Science, 165, 388.
- NAESER C. W. (1971) - *Geochronology of the Navajo-Hopi Diatremes, Four Corners area*. J. Geophys. Res., 76, 20, 4978-4985.
- NAESER C. W., MCKEE E. M. (1970) - *Fission-track and K/Ar ages of tertiary Ash Flow Tuffs. North-Central Nevada*. Geol. Soc. Amer. Bull., 81, 3375-3384.
- NAGAJ J. (1968) - *Etude des Traces de Fission dans le Zircon. L'age, la repartition et la concentration en Uranium*. Mem. of the Faculty of Science, Kyoto University. Series of Geol. and Mineral., 35 (2), 119-130.
- NISHIDA T., TAKASHIMA Y. (1975) - *Annealing of fission tracks in zircons*. E.P.S.L., 27, 257-264.