



HAL
open science

Datation par luminescence : recherches méthodologiques et applications au volcanisme dans l'environnement de Laschamp

C. Bassinet

► **To cite this version:**

C. Bassinet. Datation par luminescence : recherches méthodologiques et applications au volcanisme dans l'environnement de Laschamp. Géologie appliquée. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2007. Français. NNT: . tel-00171318

HAL Id: tel-00171318

<https://theses.hal.science/tel-00171318>

Submitted on 12 Sep 2007

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.

UNIVERSITÉ BLAISE PASCAL

U.F.R. Sciences et Technologies

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES

THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITÉ

Spécialité : Physique corpusculaire

par

Céline BASSINET

Diplômée d'Études Approfondies

DATATION PAR LUMINESCENCE : RECHERCHES MÉTHODOLOGIQUES ET APPLICATIONS AU VOLCANISME DANS L'ENVIRONNEMENT DE LASCHAMP

Soutenue publiquement le 23 mars 2007, devant la commission d'examen :

Président :	Alain Baldit	
Examineurs :	Pierre Boivin	
	Christophe Falguères	Rapporteur
	Michel Lamothe	Rapporteur
	Didier Miallier	Directeur de thèse
	Hélène Valladas	Responsable de thèse au CEA

UNIVERSITÉ BLAISE PASCAL

U.F.R. Sciences et Technologies

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES

THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITÉ

Spécialité : Physique corpusculaire

par

Céline BASSINET

Diplômée d'Études Approfondies

DATATION PAR LUMINESCENCE : RECHERCHES MÉTHODOLOGIQUES ET APPLICATIONS AU VOLCANISME DANS L'ENVIRONNEMENT DE LASCHAMP

Soutenue publiquement le 23 mars 2007, devant la commission d'examen :

Président :	Alain Baldit	
Examineurs :	Pierre Boivin	
	Christophe Falguères	Rapporteur
	Michel Lamothe	Rapporteur
	Didier Miallier	Directeur de thèse
	Hélène Valladas	Responsable de thèse au CEA

Remerciements

Ce travail, pour lequel j'ai bénéficié d'un cofinancement CEA-Région Auvergne, a été réalisé au Laboratoire de Physique Corpusculaire (LPC, Université Blaise Pascal, IN2P3/CNRS) à Clermont-Ferrand et au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE/IPSL, CEA-CNRS-UVSQ) à Gif-sur-Yvette. Au cours de ma thèse, Bernard Michel et Alain Baldit d'une part, et Laurent Turpin et Robert Vautard d'autre part, se sont succédés à la direction de ces laboratoires. Je les remercie pour m'avoir accueillie au sein de leurs établissements respectifs.

Je remercie également mon directeur de thèse, Didier Miallier, pour m'avoir proposé ce sujet, après m'avoir initiée à la datation par la luminescence au cours de mon stage de maîtrise.

Hélène Valladas a encadré mes travaux au LSCE. Je lui adresse mes plus vifs remerciements pour son soutien, ses relectures minutieuses de ce mémoire et sa profonde gentillesse.

J'exprime toute ma gratitude à Thierry Pilleyre, Serge Sanzelle et Norbert Mercier pour leur aide, leurs précieux conseils, leur disponibilité et leur sympathie.

Je remercie sincèrement les membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont manifesté pour ce travail, et particulièrement Michel Lamothe et Christophe Falguères qui ont accepté d'être rapporteurs de cette thèse.

Je tiens aussi à remercier Laurence Vialettes pour l'aide qu'elle m'a apportée pour des mesures de thermoluminescence, et pour sa gentillesse.

Mes remerciements vont également à :

- Martine Paterné, du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, pour avoir accepté de dater des échantillons par carbone 14,*
- Pierre Boivin, du Laboratoire Magmas et Volcans, pour avoir analysé les lames minces décrites dans ce mémoire,*
- Jean-Louis Joron, du Laboratoire Pierre Süe, qui a effectué des mesures par activation neutronique,*
- Jean-Michel Dolo et Tristan Garcia, du Laboratoire National Henri Becquerel, pour les irradiations qu'ils ont réalisées.*
- Gilles Guérin, pour m'avoir permis de réaliser des mesures de thermoluminescence sur son appareil au Laboratoire de Géochronologie Multi-Techniques à Orsay.*

J'ai également une pensée pour mes camarades de laboratoire et leur exprime toute ma sympathie.

Enfin, j'adresse un grand merci à mes proches, en particulier à mes parents, pour leur soutien indéfectible.

SOMMAIRE

SOMMAIRE	3
INTRODUCTION GÉNÉRALE	7
CHAPITRE 1 : CONTEXTE GÉNÉRAL ET OBJECTIFS	11
1.1 L'événement de Laschamp et la Chaîne des Puys.....	13
1.1.1 Le phénomène.....	13
1.1.2 Présentation de la chronologie existante.....	15
1.2 Objectifs du projet.....	17
1.2.1 Apports chronologiques attendus.....	18
1.2.2 Apports méthodologiques attendus.....	19
CHAPITRE 2 : LES PHÉNOMÈNES DE LUMINESCENCE ET LEUR APPLICATION À LA DATATION	21
2.1 Les phénomènes de luminescence.....	23
2.1.1 Origine de la luminescence.....	23
2.1.2 Signaux de luminescence et modèles associés.....	25
2.1.3 Propriétés de la luminescence à l'égard de la dose d'irradiation.....	30
2.2 Datation par la luminescence.....	32
2.2.1 Principe de la datation.....	32
2.2.2 Applications.....	33
CHAPITRE 3 : DÉTERMINATION DE LA PALÉODOSE.....	37
3.1 Signaux de luminescence des quartz.....	39
3.1.1 Signaux de TL.....	39
3.1.2 Signaux d'OSL.....	40
3.2 Évolution des méthodes d'évaluation de la paléodose.....	41
3.2.1 Méthode de la proportionnalité et mise en évidence des problèmes posés.....	41
3.2.2 Protocoles de multiple-aliquot.....	43
3.2.3 Protocoles de single-aliquot.....	49
3.3 Méthodes retenues.....	57
3.4 Techniques expérimentales et matériels utilisés.....	61
3.4.1 Préparation des échantillons.....	61
3.4.2 Mesure des signaux de luminescence.....	63
3.4.3 Traitement des données.....	66
3.4.4 Incertitudes sur la paléodose.....	66
CHAPITRE 4 : DÉTERMINATION DE LA DOSE D'IRRADIATION ANNUELLE.....	67
4.1 Introduction.....	69
4.2 Les débits de dose.....	69
4.2.1 Expression générale des débits de dose.....	69
4.2.2 Efficacité relative des particules α	70
4.2.3 Influence de la taille des matériaux datés.....	71

4.3	Cas des grains de quartz	71
4.3.1	Atténuation due à la taille des grains	71
4.3.2	Dose interne	71
4.3.3	Dose externe	73
4.4	Cas des galets de quartz	76
4.4.1	Caractérisation des galets.....	76
4.4.2	Dose interne	77
4.4.3	Dose externe	79
4.5	Détermination <i>in situ</i> de la dose annuelle externe gamma et cosmique	80
4.5.1	Spectrométrie gamma de terrain	80
4.5.2	Dosimètres thermoluminescents	80
4.6	Variations possibles de la dose annuelle	90
4.7	Incertitudes sur la dose annuelle	91
4.8	Exemple pour un site	92
 CHAPITRE 5 : MESURES ET RÉSULTATS SUR LES SITES RETENUS LIÉS À LASCHAMP		97
5.1	Tests de détermination de paléodoses générées expérimentalement	100
5.1.1	Mode opératoire.....	100
5.1.2	Résultats et discussion	100
5.1.3	Conclusion	107
5.2	Secteur de Volvic.....	108
5.2.1	Présentation du secteur géographique et échantillonnage.....	108
5.2.2	Analyses des sédiments	110
5.2.3	Site des Riaumes.....	111
5.2.4	Site du Fraisse 1	127
5.2.5	Site du Fraisse2.....	133
5.2.6	Bilan général pour les coulées en aval de Volvic.....	137
5.3	Secteur de Royat	138
5.3.1	Présentation du secteur géographique et échantillonnage.....	138
5.3.2	Analyses des sédiments	140
5.3.3	Échantillon C423	141
5.3.4	Échantillon C405	141
5.4	Secteur de Blanzat	145
5.4.1	Présentation du secteur géographique et échantillonnage.....	145
5.4.2	Échantillon C416	146
5.5	Secteur d'Aydat	150
5.5.1	Présentation du secteur géographique et échantillonnage.....	150
5.5.2	Échantillon C410	151
5.6	Synthèse des résultats	154
 CHAPITRE 6 : ÉTUDES ET RECHERCHES SUR LES COMPORTEMENTS OBSERVÉS		157
6.1	Introduction.....	159
6.2	Tests sur les échantillons naturels récents	159
6.2.1	Saint-Saturnin	159
6.2.2	Terre Noire.....	166

Sommaire

6.2.3	Neschers.....	174
6.2.4	Bilan des mesures pour des sites récents	180
6.3	Études spécifiques	181
6.3.1	Contrôle de fading	181
6.3.2	Influence du débit de dose	183
6.3.3	Influence de la température de recuit sur la sensibilisation de la courbe de deuxième lecture pour la datation par TL avec le protocole mixte multiple-aliquot	187
6.3.4	Étude expérimentale d'un cycle complet de datation par TL avec le protocole mixte multiple-aliquot avec des quartz « géologiques » chauffés au laboratoire	193
CONCLUSION GÉNÉRALE		203
BIBLIOGRAPHIE		209
ANNEXES		225
Annexe 1 : Chaînes de désintégration radioactives du thorium 232, de l'uranium 238 et de l'uranium 235		227
Annexe 2 : Analyses des échantillons		230
Annexe 3 : Description des lames minces des galets des Riaumes		232

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Depuis la découverte, en 1967, de l'anomalie géomagnétique enregistrée par la lave de Laschamp (Chaîne des Puys, Massif Central), la réalité du phénomène, qui s'est traduit par un affaiblissement important de l'intensité du champ magnétique terrestre et un renversement partiel de sa direction il y a environ 40000 ans, a été confirmée par d'autres investigations dans la même province volcanique, à Olby, à Louchadière et à Royat, mais aussi à plus grande échelle, de l'Islande à la Californie. L'objectif principal de ma thèse était de fournir de nouvelles datations de coulées volcaniques de la Chaîne des Puys situées chronologiquement au voisinage de la « période de Laschamp », en utilisant les méthodes de la luminescence. Ces méthodes reposent sur la propriété de certains minéraux (quartz et feldspaths) à se comporter comme des dosimètres naturels. La mesure et la calibration de leur signal de luminescence à l'aide de sources radioactives de laboratoire conduisent à évaluer la dose accumulée par l'échantillon (ou paléodose). L'estimation de ce paramètre et celle du débit de dose auquel les minéraux ont été soumis permettent de calculer le temps écoulé depuis la remise à zéro du signal, qui intervient lorsque les minéraux sont portés à haute température ($>450^{\circ}\text{C}$), par exemple au cours de la mise en place d'une coulée volcanique.

Les échantillons étudiés dans ma thèse sont des sédiments chauffés sous coulée provenant des secteurs de Volvic, de Royat, de Blanzat et d'Aydat. Il est apparu rapidement que les grains de quartz exploités se caractérisaient par des signaux de luminescence qui étaient, à la fois, irréguliers pour un échantillon donné et variables selon les échantillons. Pour tenir compte de cette variabilité et apprécier la cohérence interne des résultats, nous nous sommes donc attachés à utiliser plusieurs approches expérimentales pour estimer les paléodoses des grains de quartz : protocoles des aliquotes multiples appliqués à la thermoluminescence (TL) bleue ou rouge ; protocole de l'aliquote unique pour exploiter soit le signal TL, soit le signal de luminescence stimulée optiquement (OSL). Dans le même temps, nous avons effectué des expériences « en aveugle » sur des échantillons expérimentaux, dont l'objectif était de mesurer, selon les différents protocoles utilisés, des paléodoses connues, appliquées au laboratoire. Des contrôles méthodologiques ont aussi été réalisés sur des échantillons chauffés sous des coulées d'âge connu pour apprécier la pertinence et la fiabilité de notre démarche expérimentale.

Après une présentation générale de l'évènement de Laschamp et des objectifs de ma thèse (chapitre 1), je décrirai les phénomènes de la luminescence (chapitre 2) ; je discuterai ensuite les méthodes disponibles pour estimer la paléodose (chapitre 3) et la dose d'irradiation annuelle (chapitre 4) reçue par les minéraux, puis je détaillerai celles que j'ai retenues pour ma thèse. Les deux chapitres suivants sont consacrés à la présentation et à l'analyse des

résultats que j'ai obtenus sur les sites liés à Laschamp (chapitre 5) et à la description des investigations méthodologiques que ces résultats ont suscitées (chapitre 6). Pour terminer, je ferai la synthèse des résultats déduits des méthodes de la luminescence et je les confronterai aux autres données chronologiques disponibles (carbone 14, K-Ar) pour tester la cohérence de l'ensemble des datations et envisager les recherches à entreprendre dans l'avenir.

CHAPITRE 1 :
CONTEXTE GÉNÉRAL ET OBJECTIFS

1.1 L'événement de Laschamp et la Chaîne des Puys

1.1.1 Le phénomène

Le champ magnétique de la Terre, qui est produit par les déplacements de son noyau externe, est assimilable, en première approximation, à celui que créerait un dipôle magnétique placé à l'intérieur du globe. Il ne cesse de varier en intensité et en direction au cours du temps et, quand le pôle nord devient le pôle sud de manière durable, on parle d'inversion du champ magnétique terrestre. La dernière inversion s'est achevée il y a 780 000 ans environ. Nous sommes depuis dans une période magnétique positive (ou normale) appelée « période de Brunhes ».

Durant une période magnétique comme celle de Brunhes, des inversions du champ de faible durée (de l'ordre de quelques milliers d'années) sont observées. Elles sont appelées excursions et sont, de même que pour les inversions, associées à un affaiblissement important de l'intensité du champ. La première excursion durant la période actuelle a été découverte en 1967 par Bonhommet et Babkine, dans les coulées volcaniques de la Chaîne des Puys (Massif Central, France) à Laschamp et à Olby (Figure 1.1). Les premières datations entreprises par Bonhommet et Zähringer (1969) donnèrent un âge compris entre 8 et 20 ka (kiloannées) pour cet événement. L'âge le plus faible correspondait à des analyses par ^{14}C réalisées sur des troncs brûlés découverts dans une unité trachytique qui recouvrait les scories du Puy de Laschamp, tandis que l'âge le plus élevé se rapportait à des mesures par la méthode K-Ar (Potassium-Argon) effectuées sur des échantillons de lave de Laschamp et Olby. Des études ultérieures réalisées par diverses techniques ont conduit à des âges significativement plus élevés, compris entre 35 et 45 ka. Citons par exemple les mesures de thermoluminescence sur des quartz extraits d'une enclave granitique de la coulée de Laschamp (Gillot et al., 1978) et sur des galets de quartz chauffés par la coulée d'Olby (Valladas et Gillot, 1978) qui ont donné respectivement des âges moyens de $34,6 \pm 4,0$ ka et $40,3 \pm 3,0$ ka. Les travaux de Hall et York (1978) par K-Ar et $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ ont, quant à eux, conduit à un âge moyen de $45,4 \pm 2,5$ ka et ceux de Condomines (1978) par U-Th à un âge moyen de $39,0 \pm 6,0$ ka. Plus récemment, Guillou et al (2004) ont déterminé un âge de $40,4 \pm 2,0$ ka pour cet événement géomagnétique, en combinant des mesures K-Ar et par $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$.

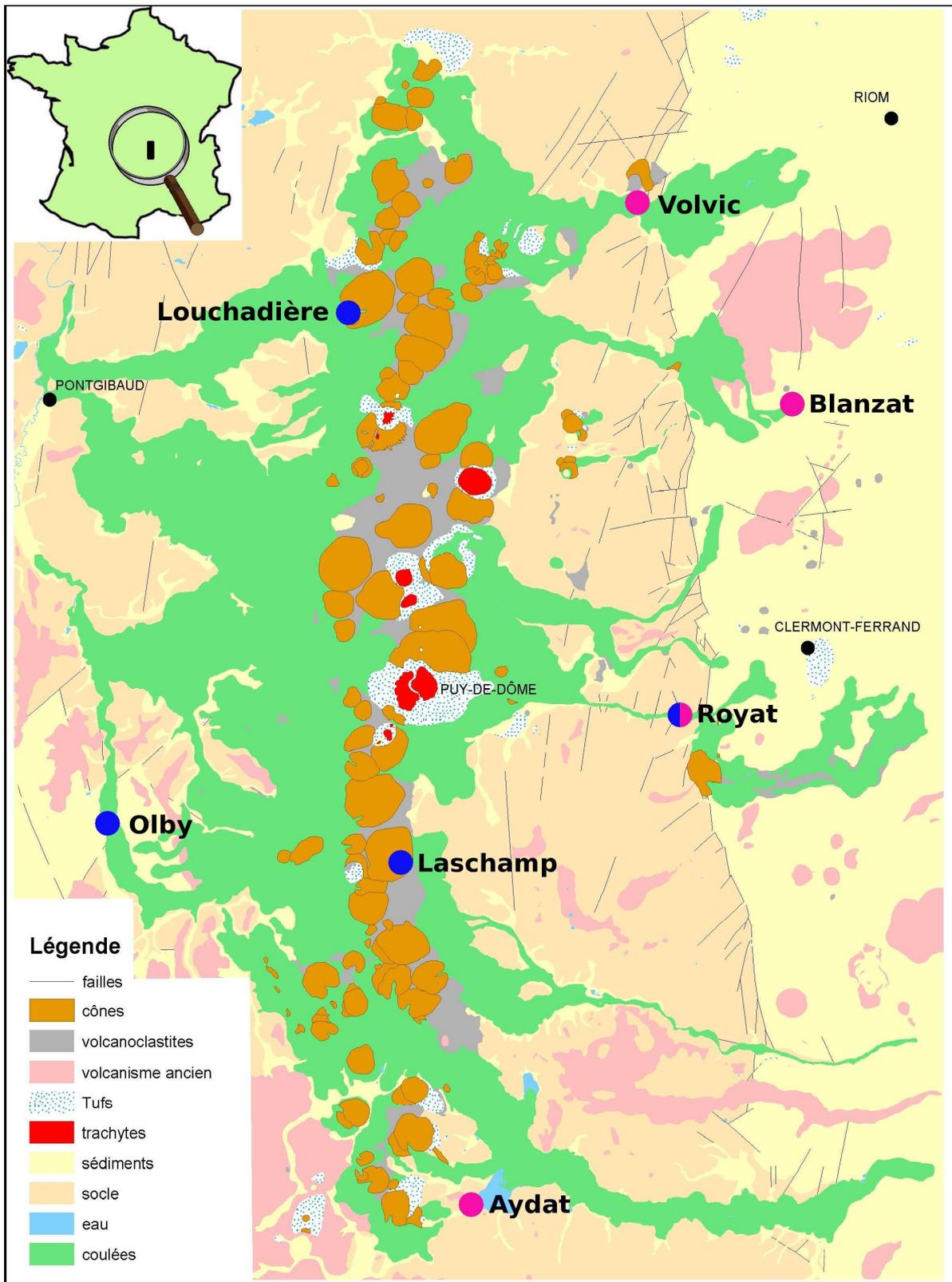


Figure 1.1 : Carte géologique de la Chaîne des Puys (d'après P. Boivin et E. Langlois). Les points bleus correspondent à des secteurs où ont été observées des anomalies magnétiques et les points magenta aux secteurs étudiés dans ce travail.

D'autres directions anormales par rapport à celles de l'époque actuelle ont été observées dans le même secteur volcanique, sur la coulée de Louchadière (Bonhommet, 1972 ; Roperch et al., 1988 ; Chauvin et al., 1989), ainsi que sur un sédiment cuit par la coulée de Royat (Barbetti et Clude, 1979). Des datations de ces sites par TL (Huxtable et al., 1978 ; Guérin, 1983) et par la méthode K-Ar (Chauvin et al., 1989) ont conduit à des âges compris dans l'intervalle 35-45 ka, période de l'événement de Laschamp.

A l'heure actuelle, ce phénomène magnétique reste mal compris. Bien que Heller (1980) et Heller et Petersen (1982) aient suggéré la possibilité d'un mécanisme d'auto-inversion, basé sur des propriétés magnétiques et minéralogiques propres aux roches étudiées, l'origine géomagnétique de l'événement ne paraît pas devoir être remise en cause. Par ailleurs, les barres d'erreur affectant les datations effectuées sur les quatre sites ne permettent pas d'établir clairement la succession temporelle des coulées, ni de définir la durée de l'événement.

Kristjansson et Gudmundsson (1980) ont également rapporté des directions anormales du champ magnétique terrestre dans des affleurements de lave basaltique de la péninsule de Reykjanes (sud-ouest de l'Islande). Cet événement nommé « excursion de Skalamaelifell » fut confirmé par Marshall et al. (1988) et Levi et al. (1990) qui observèrent par ailleurs que ces coulées avaient enregistré de faibles paléointensités du champ magnétique terrestre. Une datation par K-Ar par Levi et al. (1990) attribua un âge moyen de $42,9 \pm 7,8$ ka à cette excursion, valeur compatible avec les données de l'excursion de Laschamp. Des directions anormales, datées d'environ 40 ka, ont aussi été enregistrées dans les sédiments de l'Atlantique Nord (Laj et al., 2000). Une étude précise de ces carottes sédimentaires a permis à ces auteurs d'estimer la durée du phénomène à 1500 ans (Laj et al., 2000).

Quant à l'excursion du Mono Lake enregistrée dans des sédiments lacustres (Californie) et marins (Océans Atlantique et Arctique), sa corrélation possible avec l'événement de Laschamp fait encore l'objet de controverses. Les données chronologiques associées sont en effet discordantes, certains auteurs situant cette anomalie magnétique autour de 32-34 ka (Benson et al., 2003 ; Laj et al., 2000), d'autres autour de 40 ka (Kent et al., 2002).

1.1.2 Présentation de la chronologie existante

La Chaîne des Puys est constituée d'une centaine d'édifices volcaniques alignés selon un axe Nord-Sud, du gour de Tazenat, au nord, au puy de Montenard, au sud, et présentant une grande variété de structures. Celles-ci peuvent être classées en trois types principaux : les

cônes stromboliens formés de scories et accompagnés de coulées de lave plus ou moins longues, les dômes constitués par l'accumulation sur place de lave visqueuse et, enfin, les maars, cratères d'explosion produits lors de la rencontre du magma très chaud avec une nappe d'eau souterraine.

La Chaîne des Puys représente le plus jeune ensemble volcanique de la France métropolitaine. Son activité commença il y a environ 200 ka, en bordure occidentale de Limagne avec quelques maars basaltiques tels que celui de Ladoux (au sud de Riom). Elle se déplaça sur le plateau des Dômes vers 70 ka, avec une augmentation de la fréquence des éruptions et une évolution de la nature de la lave, qui subit un début de différenciation (évolution de la chimie et de la minéralogie) durant un long séjour dans des réservoirs intermédiaires. Cette différenciation se poursuivit et donna naissance, entre 45 et 30 ka environ, à une série de volcans stromboliens, principalement trachy-andésitiques, qui contribuèrent à donner à la Chaîne son architecture générale. C'est durant cette période que se produisit l'événement de Laschamp. Après une longue phase de repos, presque complet, les éruptions se sont succédées à partir de 15 ka environ, jusqu'à leurs dernières manifestations, révélées par la présence de cendres dans l'étang de Fung, datées d'environ $4,4 \pm 0,4$ ka.

Outre les sites de Laschamp, Olby, Louchadière et Royat, de nombreuses coulées de la Chaîne des Puys présentent des âges compris entre 30 et 50 ka, comme le montre le tableau 1.1. C'est le cas, entre autres, des sites de Blanzat, Peschadoires, Combegrasse, Gonnard, Randanne, Roche Merle, Salomon et de La Toupe. Quelques-uns ont fait l'objet d'études paléomagnétiques (Guérin, 1983). Hormis quelques événements étudiés par les méthodes du K-Ar ou des déséquilibres de la famille de l'Uranium, la plupart des âges ont été obtenus sur ces coulées il y a plus de 20 ans par thermoluminescence et demanderaient d'être affinés en tenant compte des avancées techniques récentes. Certains de ces sites pourraient donc constituer d'éventuels candidats à une « étiquette Laschamp » et mériteraient des études chronologiques et paléomagnétiques plus approfondies. Par ailleurs, de nouveaux affleurements ont été découverts récemment lors de travaux d'aménagements routiers ou répertoriés dans le cadre de la réédition de la carte volcanologique de la Chaîne des Puys (2004) par exemple, ce qui offre un champ d'étude important.

Volcan	Site	Age (en ka)	Méthodes	Bibliographie	Paléomagnétisme
inconnu	Coulée d'Olby	38 ± 5	TLF, TL, U, K	1, 2, 3, 5	✓
inconnu	Coulée de Blanzat	37,8 ± 7,6	TLF	1	
inconnu	Peschadoires	40 ± 4	TLF, U	1, 10	✓
inconnu	Chanonat	61 ± 8	TLF	1	✓
inconnu	Ceyssat Champ de	34,2 ± 7,0	TLF	1	
Balmet (?)	St Pierre le Chastel	36,0 ± 4,7	U	10	
Barne	Les Bramauds	21,6 ± 7,0	TLF	1	✓
Beaunit	Maar	54 ± 7	TL	8	
Charmont		29,9 ± 5,2	TLF	1	✓
Combegrasse	Coulée	38,9 ± 7,0	TLF	1	✓
Gonnard		44 ± 10	TLF	1	
Gouttes (?)	Les Fontêtes	36,4 ± 6,2	TLF	1	
Grave Noire	Beaumont	60 ± 6	TLF, TL, A, R	1, 4	✓
Gravenoire d'Orcival	Château de Cordès	50 ± 5	TL, R	9	
Grosmanaux	Roche Merle	46,1 ± 8,0	TLF	1	✓
La Rodde	Cimetière d'Aydat	27,1 ± 6,2	TLF	1	
Laschamp		44 ± 5	TLF, TL, A, K	1, 5, 6	✓
Lemptégy 1		30 ± 4	TL, TLF	1, 8	✓
Lemptégy 2		29,6 ± 6,0	TLF	1	✓
Louchadière		38 ± 5	K, TLF	1, 5	✓
Manzat		51 ± 15	TLF	1	
Mercocoeur	Theix	60 ± 9	TLF	1	✓
Mercocoeur (?)	Vallée de l'Auzon	54,4 ± 8,0	TLF	1	✓
Monchier	Chez Pierre	63,7 ± 9,0	TLF	1	✓
Montgy	Randanne	44 ± 7	TLF	1	✓
Paugnat	Moulet-Marcenat	30,5 ± 7,0	TLF	1	✓
Petit Puy de Dôme	Vallée de Royat	42 ± 5	TLF, TL	1, 8	✓
Petit Sarcouy	Bois de la Rigaude	31,5 ± 5,0	TLF	1	
Pourcharet (?)		37 ± 6	TLF	1	
Salomon	Fontaine du loup	43 ± 7	TLF	1	
Suquet Genestoux	Carrière	44 ± 12	TLF	1	✓
Tartaret	Murols ; Les Granges	27,8 ± 6,0	TLF	1	
Tazenat	Maar	> 30	TL, P	7, 9	
Toupe	Carrière	45,5 ± 7,0	TLF	1	

Tableau 1.1 : Datations effectuées avant 2003, dans la gamme d'âge 20-60 ka. (Extrait de la carte volcanologique de la Chaîne des Puys)

Légende :

Méthodes : A : argon-argon, C : radiocarbone, K : potassium-argon, T : téphrostratigraphie, P : palynologie, R : résonance paramagnétique électronique, TLF : TL sur feldspaths, TL : TL sur divers minéraux, U : déséquilibres U-Th

Paléomagnétisme : ✓ : mesures paléomagnétiques déjà réalisées

Bibliographie (simplifiée) : 1 : Guérin, 1983 ; 2 : Condomines, 1978 ; 3 : Juvigné et al., 1986 ; 4 : Goër et al., 1993 ; 5 : Chauvin et al., 1989 ; 6 : Hall et York, 1978 ; 7 : Pilleyre, 1991 ; 8 : équipe TL, LPC, Univ. Blaise Pascal, Clermont ; 9 : Juvigné et Stach-Czerniak, 1998 ; 10 : Condomines et al., 1982

1.2 Objectifs du projet

L'objectif initial de ce travail est de proposer de nouvelles datations pour des coulées volcaniques de la Chaîne des Puys situées chronologiquement au voisinage de la « période de Laschamp », en utilisant les méthodes de la luminescence déjà disponibles et en les adaptant à la spécificité du problème posé. Ces datations devant, à terme, permettre de mieux cerner la cinétique de l'événement de Laschamp, elles doivent être associées à des mesures – déjà faites ou à faire – de paléomagnétisme sur ces mêmes coulées.

1.2.1 Apports chronologiques attendus

Si la Chaîne des Puys fournit une opportunité exceptionnelle pour réaliser des études de l'évolution de la direction et de l'intensité du champ magnétique terrestre sur plusieurs millénaires, celles-ci doivent s'intégrer dans un cadre chronologique bien établi. C'est pourquoi les équipes de datation par luminescence du LPC (Didier Miallier, Thierry Pilleyre et Serge Sanzelle) et du LSCE (Norbert Mercier et Hélène Valladas), équipes d'accueil pour mes travaux de doctorat, ont mis en commun leurs expériences pour améliorer cette chronologie.

Par ailleurs, dès le début de cette étude, deux autres laboratoires se sont intéressés à cette thématique. Jean-Pierre Valet, de l'Institut de Physique du Globe de Paris (IPGP, Équipe de Paléomagnétisme, UMR 7154 CNRS, Université Paris VII), souhaitait en effet acquérir de nouvelles données paléomagnétiques sur des affleurements compris dans la période 10-60 ka, tandis que Gilles Guérin et Jean-Claude Lefèvre, du Laboratoire de Géochronologie Multi-Techniques (LGMT, Université Paris-Sud - IPGP, UMR CNRS 8148 IDES), se proposaient de réaliser respectivement des datations par la TL des plagioclases présents dans la lave et par la méthode K-Ar.

Dans le cadre de ce travail, nous nous sommes intéressés aux coupes géologiques qui présentaient un niveau de sédiment cuit par des coulées volcaniques, dans la gamme d'âge 30-50 ka : notre objectif était de dater ces sédiments en appliquant les méthodes de la luminescence aux grains de quartz qu'ils recelaient. Les secteurs retenus sont énumérés ci-dessous :

1) Trois affleurements dans le secteur de Volvic, sur un ensemble de coulées d'origine inconnue mais supposées pénécotemporaines (Figure 1.1), ont ainsi fait l'objet d'analyses, l'un situé au lieu-dit « les Riaumes » (commune de Vovic) et deux au lieu-dit « le Fraisse » (commune de Malauzat). Comme une datation préliminaire par la TL appliquée aux grains de quartz chauffés du « Fraisse » (Bassinet et al., 2003) avait donné un âge de 40 ka environ se trouvant au cœur de la période Laschamp, nous souhaitons poursuivre l'étude de cet ensemble de coulées.

2) Des anomalies magnétiques ayant été enregistrées à Royat, où plusieurs coulées se superposent, nous avons étudié deux échantillons de sol cuit dans le but de préciser la chronologie des éruptions.

3) Un âge de $37,8 \pm 3,8$ ka avait été obtenu à Blanzat par Guérin (1983) par la TL des plagioclases de la lave. Afin de compléter l'étude de ce secteur, nous avons prélevé deux échantillons de sol cuit sous des coulées distinctes, l'un sur une coupe révélée à l'occasion de travaux de voirie, l'autre sur un affleurement découvert récemment.

4) Dans le secteur d'Aydat, nous nous sommes intéressés à un niveau de retombées volcaniques présent sous la coulée du puy de Charmont, au bord du Lac d'Aydat, datée d'environ 30 ka par Guérin (1983). Nous avons également prélevé deux échantillons de retombées à caractère phréatomagmatique sur une coupe près du cimetière de cette commune.

1.2.2 Apports méthodologiques attendus

Les méthodes de datation par la luminescence utilisées dans ce travail sont la thermoluminescence (TL) et la luminescence stimulée optiquement (OSL). Elles reposent sur la propriété de certains minéraux tels que les quartz et feldspaths de se comporter comme des dosimètres : le signal de luminescence est en effet une fonction croissante de la dose de rayonnement accumulée ou paléodose, qui est fonction du temps. La mesure de ce paramètre au laboratoire et la détermination, *in situ* et au laboratoire, du débit de dose (ou dose annuelle) auquel les échantillons ont été soumis permettent donc de calculer le temps écoulé depuis la remise à zéro du signal de luminescence, laquelle intervient par exemple lorsque le minéral est porté à haute température ($>450^{\circ}\text{C}$). Dans le cadre de ce travail, ce chauffage correspond à la mise en place de la coulée volcanique.

Les datations sont réalisées sur des grains de quartz et des galets quartzeux extraits de sédiments cuits sous des coulées de la Chaîne des Puys. Ces minéraux émettent des signaux de luminescence dont le comportement est souvent irrégulier et difficile à convertir en dose d'irradiation équivalente. Nous nous sommes donc attachés à déterminer, par différentes méthodes, la paléodose, afin de définir le protocole qui paraissait le plus fiable et qui permettait d'obtenir les résultats les plus justes pour les échantillons étudiés. Les émissions de TL des quartz ont ainsi été mesurées indépendamment dans deux gammes de longueur d'onde (rouge et bleu) et en utilisant deux protocoles différents : 1) celui des « aliquotes multiples » où la paléodose est déterminée en comparant la courbe de croissance $TL=f(\text{dose naturelle} + \text{dose artificielle})$ à la courbe régénérée $TL=f(\text{dose artificielle})$, obtenue à partir de l'échantillon chauffé et irradié au laboratoire ; 2) celui de « l'aliquote unique » qui consiste à mesurer le signal naturel d'une seule fraction de l'échantillon et à le comparer à ceux régénérés par des doses croissantes, au cours de cycles successifs. Les signaux d'OSL de ces minéraux ont par ailleurs été mesurés avec le protocole de l'aliquote unique. Certaines de ces

méthodes avaient été utilisées avec succès par les équipes d'accueil (LPC et LSCE), d'autres étaient décrites dans la littérature mais n'avaient pas encore été testées sur les quartz chauffés de la zone volcanique d'intérêt. A terme, le bilan général de ces intercomparaisons permettra de conclure sur les possibilités et les limites de la datation par luminescence appliquée aux coulées volcaniques anciennes, notamment dans la période correspondant à l'événement de Laschamp.

CHAPITRE 2 :
LES PHÉNOMÈNES DE LUMINESCENCE ET LEUR
APPLICATION À LA DATATION

2.1 Les phénomènes de luminescence

2.1.1 Origine de la luminescence

Certaines substances préalablement irradiées ont la propriété d'émettre de la lumière lorsqu'elles sont soumises à une stimulation thermique ou lumineuse. Dans le premier cas, le phénomène est nommé thermoluminescence (TL) et, dans le second cas, luminescence stimulée optiquement (OSL, acronyme de la traduction anglaise « optically stimulated luminescence »). L'intensité du signal lumineux est une fonction croissante de la dose d'irradiation reçue.

Le phénomène de luminescence a été observé pour des minéraux naturels, mais également pour des matériaux synthétiques comme le fluorure de lithium (LiF). Il est usuellement expliqué à l'aide d'un diagramme de bandes qui représente les niveaux d'énergie possibles des électrons dans un cristal. Le schéma présente trois bandes qui sont, par ordre croissant d'énergie :

- la bande de valence (BV) dans laquelle les électrons sont liés aux atomes,
- la bande interdite (BI), zone intermédiaire où les électrons, dans un cristal parfait, ne séjournent pas,
- la bande de conduction (BC) dans laquelle les électrons se déplacent librement.

En réalité, les cristaux contiennent toujours en nombre élevé des défauts, qu'il s'agisse d'imperfections physiques telles que des lacunes atomiques ou des dislocations, ou d'imperfections chimiques telles que la présence d'impuretés, c'est-à-dire d'atomes étrangers au réseau cristallin. Ces défauts sont à l'origine de la présence de niveaux d'énergie métastables, localisés dans la bande interdite, caractérisés par leur énergie d'activation E qui correspond à la différence d'énergie entre la bande de conduction et ce niveau.

L'exposition du matériau à des rayonnements ionisants a pour effet la création de porteurs de charges libres (trous et électrons) susceptibles d'être piégés dans les défauts cristallins (Figure 2.1). Dans ce qui suit, nous considérerons par convention que la luminescence est liée au piégeage des électrons, mais un raisonnement semblable pourrait s'appliquer en considérant les trous. Lors d'une stimulation thermique ou optique, les électrons piégés dans des sites métastables sont libérés et peuvent se recombiner avec un trou.

Ce dernier est décrit comme un « centre de recombinaison ». Si la recombinaison se produit au niveau d'un centre « luminogène » (CL), l'énergie de l'électron est dissipée sous forme d'un photon : c'est le phénomène de la luminescence. Dans les autres cas de recombinaison, l'énergie de l'électron est dissipée sous forme de chaleur (phonon) au niveau de centres appelés « inhibiteurs », « quencher » ou « killer ».

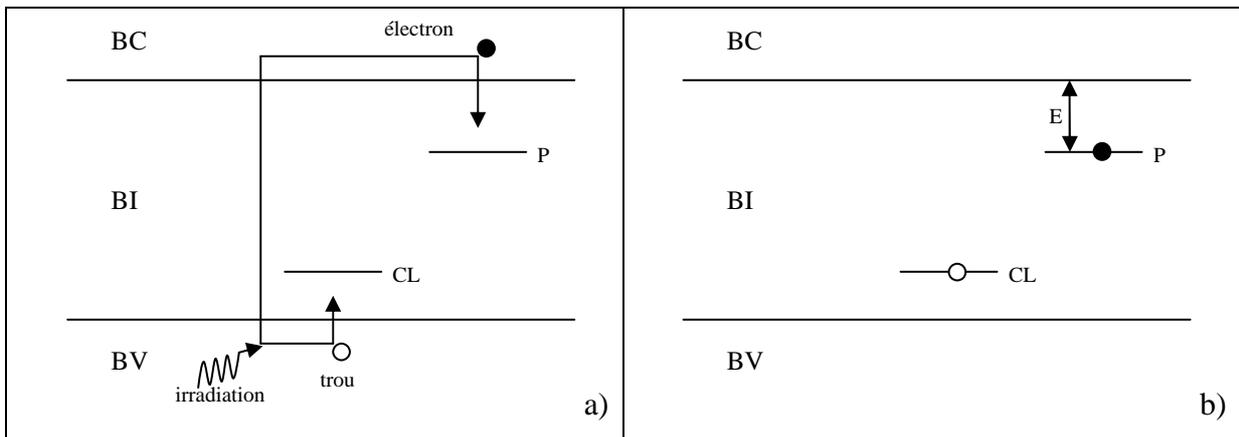


Figure 2.1 : Schéma de bandes montrant : a) la création de charges libres due à l'irradiation et b) leur piégeage dans des défauts cristallins (P : piège, CL : centre luminogène, E : profondeur du piège).

Différents processus de recombinaison sont envisageables, impliquant par exemple le passage de l'électron par la bande de conduction (Figure 2.2.a) selon le modèle de Schön-Klasens (Schön, 1942 ; Klasens, 1946) ou bien par un niveau intermédiaire (NI) localisé dans la bande interdite (Figure 2.2.b) selon le modèle de Bräunlich-Scharmman (1964).

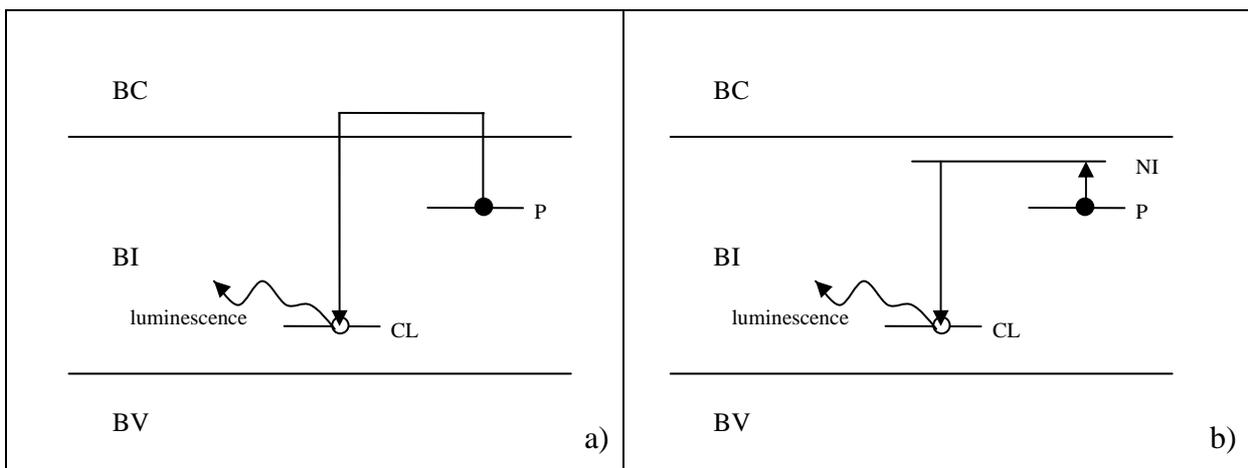


Figure 2.2 : Processus de recombinaison électron-trou selon le modèle de Schön-Klasens (a) et de Bräunlich-Scharmman (b).

2.1.2 Signaux de luminescence et modèles associés

2.1.2.1 Thermoluminescence

2.1.2.1.1 Les signaux de TL

Une courbe de TL (Figure 2.3), enregistrée au cours d'une élévation de température à vitesse constante, présente des pics se recouvrant partiellement et correspondant au vidage des divers types de pièges présents dans le cristal. Plus la température d'apparition du pic est élevée, plus la profondeur du piège est grande en terme d'énergie d'activation. La température d'apparition des pics varie aussi en fonction de la vitesse de chauffe utilisée. L'aire comprise sous le pic est une fonction croissante du nombre de pièges occupés avant la stimulation thermique : elle est donc fonction de la dose d'irradiation reçue. La longueur d'onde de la lumière TL émise est, quant à elle, une caractéristique du centre de recombinaison.

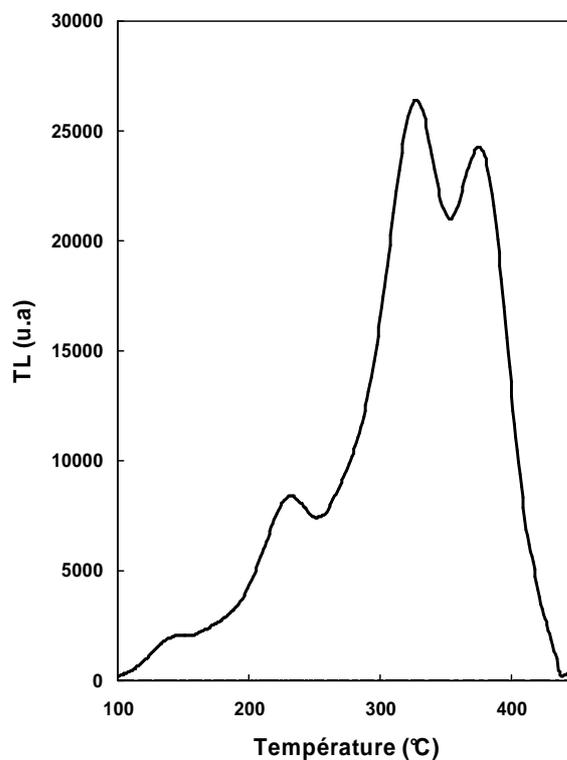


Figure 2.3 : Courbe de thermoluminescence d'un échantillon de quartz enregistrée au cours d'une montée en température à 5°C/s (filtre rouge Schott RG610).

2.1.2.1.2 Modèles

Dans le paragraphe suivant sont présentés quelques modèles établis pour décrire les cinétiques de vidage des pièges à électrons.

a) Modèle le plus simple

Le modèle le plus simple pour décrire les variations de l'intensité de la TL en fonction du temps $I_{TL}(t)$ comporte deux niveaux d'énergie, à savoir un piège à électron et un centre de recombinaison. Si la concentration en électrons piégés est notée $n(t)$ et celle en centres de recombinaison, $m(t)$:

$$n(t) = m(t) \quad (2.1)$$

afin de respecter la neutralité du cristal.

L'intensité de la TL $I_{TL}(t)$ émise au cours du chauffage est proportionnelle au taux de recombinaison. Si l'on suppose que toutes les recombinaisons sont radiatives, $I_{TL}(t)$ est donc donnée par :

$$I_{TL}(t) = -dm / dt = -dn / dt \quad (2.2)$$

Notons par ailleurs que la probabilité λ de libération par unité de temps d'un électron piégé dans un niveau d'énergie métastable obéit à la statistique de Maxwell-Boltzmann :

$$\lambda = s \cdot \exp(-E / kT) \quad (2.3)$$

avec : k : constante de Boltzmann (en eV.K⁻¹)

s : facteur de fréquence du piège à électron (en s⁻¹)

E : énergie d'activation thermique du piège à électron (en eV)

T : température à laquelle est porté le cristal (en K)

La durée moyenne de vie τ d'un électron dans un piège est donnée par :

$$\tau = s^{-1} \cdot \exp(E / kT) = \lambda^{-1} \quad (2.4)$$

Des hypothèses supplémentaires sont nécessaires afin d'obtenir une expression analytique de l'intensité de la TL en fonction de la température $I_{TL}(T)$.

i) Cinétique du premier ordre (Randall et Wilkins, 1945)

Dans le modèle de Randall et Wilkins, la probabilité de repiégeage d'un électron au cours du chauffage est supposée négligeable. L'intensité de la TL $I_{TL}(t)$ est donc égale à la probabilité λ de libération des électrons par unité de temps (pour une température fixe) multipliée par le nombre d'électrons piégés, d'où :

$$I_{TL}(t) = -dn/dt = n.s.\exp(-E/kT) \quad (2.5)$$

En considérant une élévation de température à vitesse constante β depuis la température initiale T_0 , en intégrant de $t=0$ à t et en notant n_0 la concentration en électrons piégés à $t=0$, la résolution de cette équation différentielle conduit à l'expression suivante :

$$n(T) = n_0 \cdot \exp\left\{-\left(s/\beta\right) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT) dT\right\} \quad (2.6)$$

L'intensité de la TL $I_{TL}(T)$ est alors donnée par :

$$I_{TL}(T) = n_0 \cdot s \cdot \exp(-E/kT) \cdot \exp\left\{-\left(s/\beta\right) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT) dT\right\} \quad (2.7)$$

La résolution de l'équation $dI_{TL}/dT=0$ conduit à la relation suivante:

$$\frac{E}{kT_m^2} = \frac{s}{\beta} \cdot \exp(-E/kT_m) \quad (2.8)$$

où T_m correspond à la température du maximum d'émission du pic de TL.

Cette expression montre que, pour une cinétique du premier ordre, T_m dépend de la vitesse de chauffage β , mais est indépendante de la dose d'irradiation. Les pics de TL qui obéissent à cette cinétique présentent une dissymétrie par rapport au maximum d'émission.

ii) Cinétique du second ordre (Garlick et Gibson, 1948)

Dans le modèle de Garlick et Gibson, la probabilité de repiégeage n'est plus considérée comme négligeable. En notant N la densité totale de pièges et en supposant que le taux de remplissage des pièges est faible (i.e. $N \gg n$), les expressions (2.5) et (2.7) deviennent respectivement :

$$I_{TL}(t) = -dn/dt = s \cdot \exp(-E/kT) \cdot n^2 \cdot (\sigma_n / \sigma_{mn} N) \quad (2.9)$$

et

$$I_{TL}(T) = n_0^2 \cdot s \cdot \exp(-E/kT) \cdot \left\{1 + (n_0 s / \beta) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT') dT'\right\}^{-2} \quad (2.10)$$

où σ_n est la section efficace de repiégeage, σ_{nm} la section efficace de recombinaison et $s' = s \cdot \sigma_n / (\sigma_{nm} N)$.

La dissymétrie des pics de TL qui obéissent à cette cinétique est moins marquée que dans le cas d'une cinétique du premier ordre, mais la forme du pic varie avec la dose et la température du maximum d'émission diminue significativement lorsque la dose reçue augmente.

b) Modèles complexes

Bien que le modèle comportant un piège et un centre de recombinaison ait permis de comprendre les principaux aspects de la production de la TL, il ne représente pas la réalité d'un matériau. En effet, les cinétiques de vidage des pièges rencontrées expérimentalement sont en général plus complexes que celles présentées dans les paragraphes précédents. Des déplacements importants du pic de TL avec la dose, tels que le prévoit la cinétique du second ordre, sont par exemple rarement observés. Des modèles plus complexes ont donc été élaborés. Certains tiennent compte de l'existence de pièges profonds qui ne sont pas vidés lors de la lecture du signal TL du fait de leur stabilité thermique (*e.g.* Faïn et al., 1994, 1999a). Un électron libéré lors du chauffage peut alors être repiéagé dans un piège du même type, se recombiner avec un centre de recombinaison radiatif ou non, ou bien être piégé dans un piège profond. Ces phénomènes de compétition entre pièges sont à l'origine de comportements particuliers des signaux de TL que nous ne développerons pas ici. Le lecteur pourra se reporter à la publication de McKeever et Chen (1997) entre autres pour davantage de détails.

2.1.2.2 OSL

2.1.2.2.1 Les signaux d'OSL

Les signaux d'OSL enregistrés au cours d'une stimulation optique à puissance constante, exprimée mW.cm^{-2} , décroissent au fur et à mesure que les pièges se vident et l'aire sous la courbe dépend de la dose reçue par le cristal (Figure 2.4). L'énergie excitatrice et l'énergie émise étant de même nature (photons), il est nécessaire d'éviter un recouvrement de leurs domaines spectraux. Le choix d'une longueur d'onde de stimulation dans le bleu et une détection du signal d'OSL dans le proche UV permet, par exemple, de remplir cette condition.

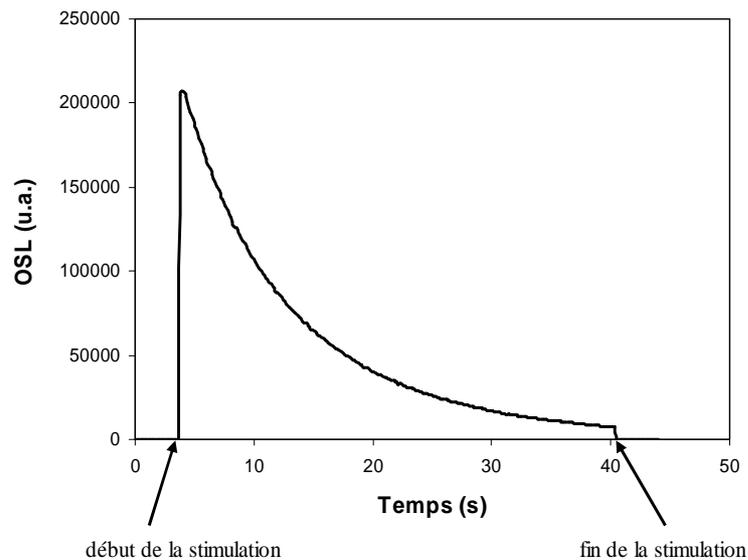


Figure 2.4 : Signal d'OSL d'un échantillon de quartz, enregistré après une préchauffe de 10s à 260°C.

2.1.2.2.2 Modèles

A l'instar de la TL, le modèle le plus simple envisagé pour décrire la variation de l'intensité de l'OSL en fonction du temps $I_{OSL}(t)$, comporte un piège et un centre de recombinaison.

Notons f le taux de libération des électrons piégés. Il est le produit de l'intensité de l'excitation ϕ par la section efficace σ d'éviction de l'électron hors du piège ($f=\sigma.\phi$), ϕ et σ dépendant de la longueur d'onde de la stimulation. En supposant une probabilité négligeable de repiégeage, l'intensité de l'OSL s'exprime ainsi :

$$I_{OSL}(t) = -dn / dt = f.n \quad (2.11)$$

La solution de cette équation est :

$$I_{OSL}(t) = n_0.f.\exp(-tf) = I_0.\exp(-tf) \quad (2.12)$$

où n_0 est la concentration initiale en électrons piégés (à $t=0$) et I_0 , l'intensité initiale de la luminescence.

L'évolution du signal d'OSL en fonction du temps est donc décrite par une exponentielle.

En général, la forme de la courbe de décroissance de l'OSL ne peut pas s'expliquer avec une analyse aussi simple. En effet, la courbe ne correspond pas forcément à une simple exponentielle et une stimulation lumineuse prolongée ne permet pas toujours de réduire le signal OSL à zéro. D'après Smith et Rhodes (1994) et Bailey et al. (1997), les courbes d'OSL peuvent être décomposées en une somme de trois exponentielles décroissantes en fonction du temps, appelées composantes « rapide », « moyenne » et « lente » selon leur vitesse de blanchiment. Des modèles faisant intervenir des compétitions avec des pièges profonds ou peu profonds, radiatifs et non radiatifs, ont donc été élaborés (*e.g.* McKeever et al., 1997) pour décrire le déclin de l'OSL. Plus récemment, Bailey (2001) a proposé un modèle général comportant cinq pièges et quatre centres de recombinaison pour tenter d'expliquer les cinétiques de production de la luminescence stimulée thermiquement et optiquement.

2.1.3 Propriétés de la luminescence à l'égard de la dose d'irradiation

Les signaux de TL et d'OSL dépendent du nombre d'électrons piégés et croissent donc avec la dose d'irradiation reçue, tant que celle-ci n'est pas trop grande. Cependant, la croissance du signal de luminescence avec la dose n'est pas toujours linéaire, comme l'illustre la figure 2.5 pour la TL.

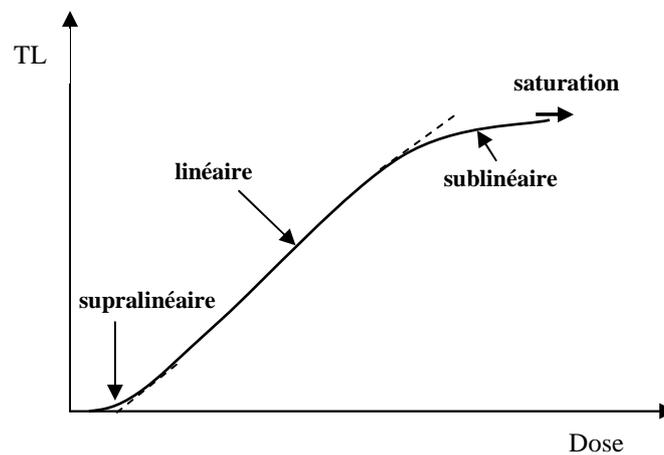


Figure 2.5 : Croissance théorique de la thermoluminescence (d'après Aitken, 1985).

A faible dose, la courbe de croissance de la TL présente parfois un domaine supralinéaire, pour lequel la croissance du signal augmente plus vite que la dose, tandis qu'à forte dose, on observe une saturation du signal, dont les causes sont encore discutées (Wang

et al., 2006), aussi bien en TL qu'en OSL. Le niveau de saturation diffère selon la nature du matériau luminescent, selon la stimulation appliquée (thermique ou optique) et selon la fenêtre optique d'enregistrement des signaux de luminescence. Il est donc caractéristique des défauts du cristal.

Pour les minéraux naturels, les courbes de croissance expérimentales en TL sont, à hautes doses, souvent plus complexes que celle de la description précédente (*e.g.* David et Sunta, 1977 ; Huntley et al., 1988 ; Pilleyre et al., 1992). Elles présentent généralement un « seconde croissance » ou un aspect sinueux. L'expérimentateur est donc amené à établir au cas par cas la loi de croissance de la luminescence en fonction de la dose d'irradiation reçue.

Cette propriété de croissance du signal de luminescence en fonction de la dose de rayonnement accumulée est exploitée en dosimétrie. Un dosimètre sera donc utile à condition de présenter un niveau de saturation suffisamment élevé, et fiable si le signal est stable dans le temps. En effet, certains matériaux perdent une partie des charges stockées dans les pièges sans qu'intervienne une stimulation thermique ou optique. Ce phénomène appelé « fading anormal » conduit à une sous-estimation de la dose reçue. Un mécanisme de vidage des pièges par effet tunnel est évoqué pour l'expliquer (Visocekas, 1993).

La dosimétrie par la luminescence connaît différents champs d'application. Dans le domaine nucléaire, par exemple, elle permet la surveillance des doses auxquelles est exposé le personnel, la détermination de la dose reçue lors d'une exposition accidentelle et le contrôle des émissions et des déchets radioactifs dans l'environnement. Dans le domaine médical, elle permet la surveillance dosimétrique des utilisateurs d'appareils radiologiques ou des patients dans le cadre de traitements par radiothérapie. Des matériaux synthétiques comme le fluorure de lithium LiF, le fluorure de calcium CaF₂ ou l'alumine Al₂O₃, en général dopés pour augmenter leur sensibilité, sont communément utilisés. Mais certains minéraux ou roches naturels, dont les quartz, les feldspaths, les zircons, la calcite ou encore les silex, se comportent également comme des dosimètres et permettent la datation d'événements anciens en géologie et archéologie. Le principe des méthodes de datation par la luminescence fait l'objet du paragraphe suivant.

2.2 Datation par la luminescence

2.2.1 Principe de la datation

Le principe de la datation par la luminescence est donné par la figure 2.6.

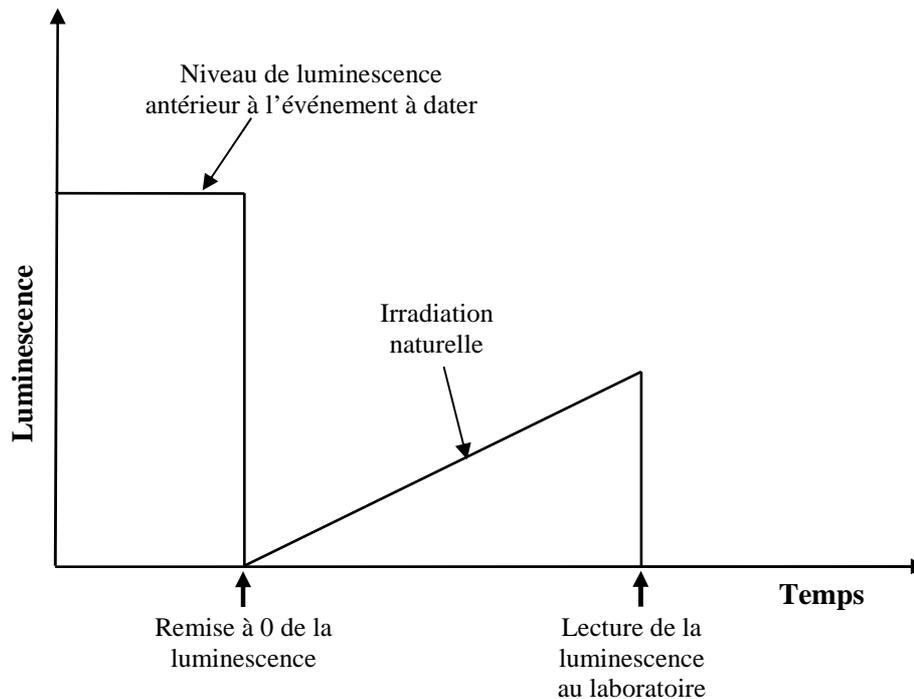


Figure 2.6 : Schéma du principe de la datation par la luminescence (d'après Aitken, 1998).

L'événement à dater, aussi bien par TL que par OSL, correspond à la remise à zéro du signal de luminescence du cristal. Elle peut avoir lieu par chauffage, lors de la cuisson de poteries ou de céramiques, de la chauffe de pierres dans un foyer préhistorique ou encore lors de la mise en place d'une coulée volcanique en ce qui concerne les sédiments et galets de notre étude. Cette remise à zéro peut aussi avoir lieu par exposition à la lumière solaire (ou blanchiment) lors du transport des minéraux par le vent ou par un cours d'eau. Enfin, il peut s'agir de la formation même du minéral, par exemple la cristallisation de la calcite des stalactites des grottes ou celle des quartz ou feldspaths d'une lave.

Au cours de l'enfouissement, les rayonnements α , β , γ émis par les éléments radioactifs contenus dans les échantillons et ceux qui sont présents dans leur environnement, auxquels s'ajoute le rayonnement cosmique, déposent une fraction de leur énergie en

traversant les minéraux. Cette énergie est transférée à des charges qui se déplacent et peuvent être piégées dans le minéral jusqu'à la mesure du signal de luminescence au laboratoire.

La datation de l'échantillon par les méthodes fondées sur la luminescence comporte alors deux volets d'égale importance, à savoir :

- l'évaluation de la paléodose, c'est-à-dire de la dose totale d'énergie reçue depuis la remise à zéro du signal.

Cette étape consiste à comparer le signal « naturel » résultant de l'irradiation naturelle et enregistré pendant l'enfouissement, aux signaux du même échantillon induits au laboratoire par l'administration de doses de rayonnement artificiel avec une source calibrée. Les différentes procédures d'évaluation de la paléodose seront détaillées dans le chapitre 3 de ce mémoire.

- l'évaluation du débit de dose annuel (ou dose annuelle) auquel est soumis l'échantillon.

Il est évalué par estimation de la radioactivité de l'échantillon et de son environnement à partir de mesures au laboratoire et sur le terrain. Sa détermination sera développée au chapitre 4.

Le temps écoulé depuis la remise à zéro du cristal est alors obtenu en faisant le rapport suivant :

$$\text{Age} = \frac{\text{Paléodose}}{\text{Débit de dose}} \quad (2.13)$$

2.2.2 Applications

Les méthodes de datation par la luminescence présentent de nombreux domaines d'application. Nous en donnons seulement quelques exemples dans ce paragraphe.

La datation par la thermoluminescence a été initialement développée dans les années 1960 pour la datation de poteries (Aitken et al., 1964, 1968). Elle a ensuite été étendue à la datation de pierres (grès, quartzite, granite, ...) et de silex chauffés dans les foyers préhistoriques (*e.g.*, Valladas, 1992 ; Mercier et al., 1995).

La TL permet également la datation d'éruptions volcaniques, de manière directe ou indirecte. Elle peut reposer sur l'étude des signaux de luminescence :

- des quartz ou feldspaths de la lave (*e.g.* Guérin, 1983 sur des plagioclases),
- des grains de quartz (*e.g.* Pilleyre, 1991) et des verres volcaniques (*e.g.* Berger et Huntley, 1983) extraits de retombées volcaniques,
- des grains de quartz provenant de galets, enclaves granitiques ou couches sédimentaires chauffés lors de la mise en place de la coulée de lave. Des exemples concernant l'événement de Laschamp ont été donnés dans le chapitre 1.

A partir de 1979, sous l'impulsion de Wintle et Huntley (1979), la TL a été appliquée à la datation de sédiments non chauffés. Ces auteurs ont en effet mis en évidence que l'exposition à la lumière du soleil pendant le transport des minéraux avait la capacité de remettre à zéro une partie du signal de TL. Cependant, l'estimation du niveau de luminescence résiduelle avant leur enfouissement est difficile et limite la précision du résultat. En 1985, Huntley et ses collègues ont montré qu'il était possible de s'affranchir de ce problème en exploitant le signal d'OSL des quartz. Le blanchiment de ce signal par la lumière est en effet plus rapide et permet d'atteindre un niveau résiduel négligeable le plus souvent par rapport au signal naturel. La datation par l'OSL des quartz et feldspaths s'applique par exemple aux dunes (*e.g.* Clarke, 1994), aux loess (*e.g.* Frechen, 1999) et aux colluvions (*e.g.* Lang et Wagner, 1997). Naturellement, la datation par OSL peut également s'appliquer aux matériaux chauffés évoqués pour la TL. Citons par exemple l'étude réalisée par Murray et Mejdahl (1999) sur des poteries et des pierres chauffées.

Pour davantage de détails concernant les diverses applications de la datation par la luminescence, le lecteur pourra se reporter aux revues effectuées par Prescott et Robertson (1997) et Roberts (1997). Ces articles portent respectivement sur la géologie et l'archéologie.

Le domaine chronologique accessible par la datation par luminescence s'étend de quelques années à plusieurs centaines de milliers d'années (*e.g.* les études de la TL du quartz de Pilleyre (1991) et Fattahi et Stokes (2000) ; les études de la TL des loess de Berger et al. (1994)).

L'étendue du domaine chronologique dépend de nombreux facteurs. La limite supérieure est déterminée par :

- l'apparition de la saturation du signal de luminescence

Ce phénomène dépend de la nature du minéral étudié (les feldspaths présentent des doses de saturation plus élevées que les quartz par exemple), mais également de sa teneur en radioéléments et de la dose annuelle à laquelle

il est soumis. Un échantillon riche en radioéléments ou soumis à un débit de dose élevé atteindra en effet plus rapidement la saturation.

- la stabilité des pièges

La durée de rétention des électrons varie selon le piège considéré.

Par ailleurs, la détermination de l'âge d'échantillons récents, et présentant par conséquent une faible paléodose, sera limitée par la sensibilité des appareils de mesure des signaux de luminescence.

La figure 2.7 compare le domaine chronologique accessible à la méthode de la luminescence à ceux des autres méthodes de datation : dendrochronologie, radiocarbone, potassium-argon, série de l'uranium, traces de fission... La nature des échantillons datés est aussi indiquée. Cette figure montre que les méthodes de datation par la luminescence, par la gamme d'âge importante qu'elles permettent de couvrir, sont des méthodes de choix pour l'étude du Quaternaire. Elles constituent parfois les seules méthodes qu'il est possible d'appliquer dans un contexte particulier, par exemple lorsque l'absence de matière organique ne permet pas d'utiliser la méthode du carbone 14 ou lorsque la lave est localement trop altérée pour permettre des mesures K-Ar.

Dans ce travail, nous avons choisi d'étudier la luminescence du quartz. Ce minéral, stable chimiquement, résistant mécaniquement, facile à séparer, est souvent abondant dans les paléosols étudiés. Il est moins lumineux que les feldspaths, mais n'est pas sujet au phénomène de « fading anormal ». Il constitue ainsi un dosimètre relativement fiable.

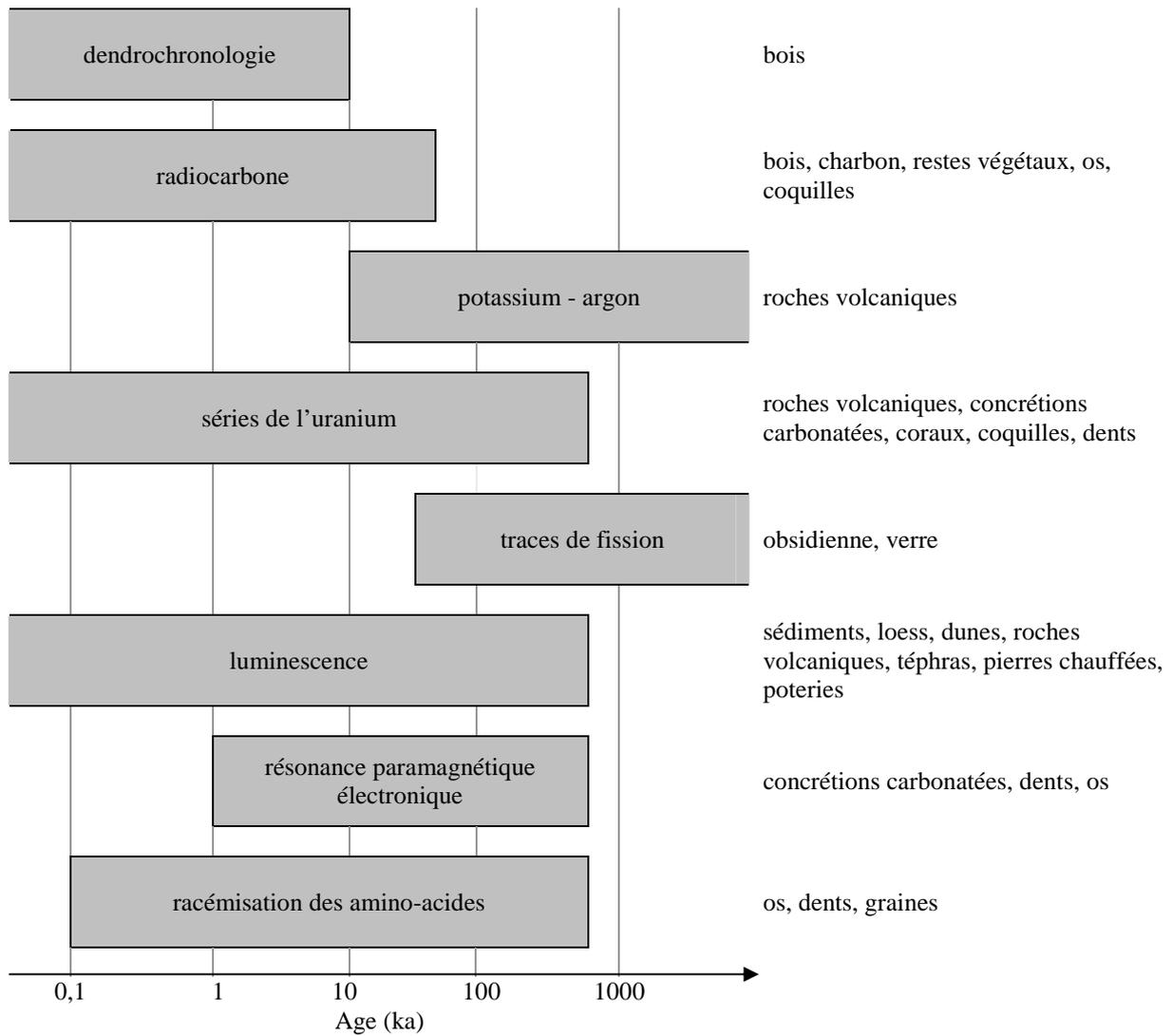


Figure 2.7 : Domaines chronologiques accessibles par les méthodes de datation et types d'échantillon auxquels elles s'appliquent.

CHAPITRE 3 :
DÉTERMINATION DE LA PALÉODOSE

Outre la sélection d'un minéral luminescent constituant un dosimètre fiable, l'évaluation de la paléodose nécessite de choisir :

- une technique de stimulation du signal de luminescence (TL ou OSL),
- une fenêtre spectrale d'enregistrement de ce signal,
- une méthode pour étudier les variations de la luminescence en fonction de la dose d'irradiation.

Dans ce chapitre, nous donnerons d'abord quelques caractéristiques des signaux de luminescence du quartz, minéral sélectionné pour nos études, puis nous présenterons les principales procédures proposées dans la littérature pour déterminer la dose reçue par le minéral depuis sa remise à zéro. Nous préciserons enfin les approches retenues pour déterminer la paléodose de nos échantillons et leur mise en œuvre au laboratoire.

3.1 Signaux de luminescence des quartz

3.1.1 Signaux de TL

Les quartz, lors d'une stimulation thermique, présentent essentiellement deux bandes d'émission dans le visible (cf. *e.g.* Hashimoto et al., 1986), centrées respectivement à environ 450 nm (émission bleue ou « TL bleue » ou « TLB ») et 620 nm (émission rouge ou « TL rouge » ou « TLR »).

L'émission bleue a été utilisée dès les premières datations par la thermoluminescence (Aitken, 1985). La figure 3.1.a présente des exemples de courbes caractéristiques de la TL bleue pour une vitesse de montée en température de 5°C/s. Elles ont été obtenues avec un échantillon de quartz extrait d'un sol cuit de la Chaîne des Puys. Un pic à environ 325°C domine la courbe de TL naturelle, tandis que la mesure d'une aliquote après ajout d'une dose artificielle présente des pics supplémentaires, moins stables, vers 150, 180 et 230°C.

L'émission rouge est observée notamment pour les quartz rencontrés dans les contextes volcaniques. La courbe de TL naturelle présente un pic principal vers 380°C. Après ajout d'une dose artificielle, des pics apparaissent à basse température, le plus souvent vers 160, 220, 270 et 320°C. Les propriétés de l'émission rouge ont été étudiées de manière approfondie par Hashimoto et al. (1987) et par l'équipe de datation par la luminescence du LPC (Miallier et al., 1991, 1994a ; Pilleyre, 1991). Les courbes de TL rouge présentent le plus souvent une meilleure reproductibilité que celles de TL bleue et le pic principal de TL rouge (dont le maximum d'émission est compris entre 370 et 390°C selon l'échantillon de quartz

étudié et la dose d'irradiation reçue) est généralement mieux défini (en termes de largeur à mi-hauteur) que les pics de TL bleue à haute température. La position de ce pic de TLR se déplace de quelques degrés vers les basses températures lorsque la dose d'irradiation augmente, mais sa forme ne varie pas. En TLR, le bruit de fond thermique est important. C'est pourquoi chaque mesure de TLR est suivie systématiquement d'une seconde lecture de l'aliquote pour enregistrer ce bruit de fond et le soustraire du signal émis lors de la première lecture de l'aliquote. La figure 3.1.b présente des exemples de courbes de TL rouge pour une vitesse de chauffage de 5°C/s. Elles ont été obtenues à partir d'aliquotes du même échantillon que celui utilisé pour les mesures présentées sur la figure 3.1.a.

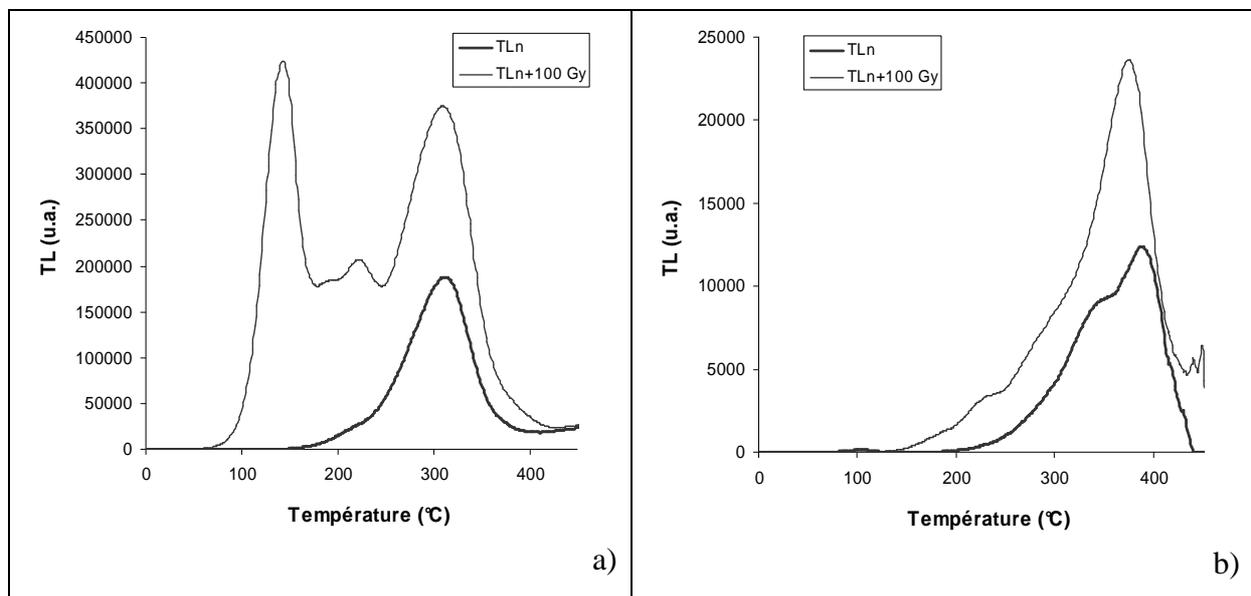


Figure 3.1 : Exemple de signaux de TL enregistrés au cours d'une montée en température à 5°C/s et émis a) dans le bleu et b) dans le rouge (bruit de fond soustrait). Les quartz ont été extraits d'un échantillon de sol cuit par une coulée volcanique de la Chaîne des Puys.

3.1.2 Signaux d'OSL

Les quartz, lors d'une stimulation optique (OSL), présentent principalement une bande d'émission dans le violet-proche UV, centrée à 365 nm (Huntley et al., 1991). Au début des années 80, les signaux d'OSL du quartz étaient stimulés par un laser à argon émettant dans le vert, à 514,5 nm (Huntley et al., 1985). Par la suite, des moyens moins onéreux de stimulation optique tels que des lampes halogènes filtrées ou des diodes électroluminescentes (LED) ont été proposés. Actuellement de nombreux appareils d'OSL sont équipés de LEDs émettant dans le bleu (470 nm), les faibles longueurs d'onde étant celles qui permettent de stimuler la luminescence avec la meilleure efficacité.

A la différence des feldspaths, les quartz n'émettent pas de signal lors d'une stimulation optique dans le domaine de l'infrarouge (Short et Huntley, 1992). Cette propriété permet d'ailleurs de vérifier la qualité de la séparation de ces minéraux.

3.2 Évolution des méthodes d'évaluation de la paléodose

Différentes méthodes ont été développées pour évaluer la paléodose (P) au fur et à mesure des avancées dans les techniques d'obtention des signaux de luminescence et dans la compréhension du comportement de ces derniers. Nous ne donnerons pas une liste exhaustive de ces méthodes, mais simplement les principales approches qui s'appliquent au quartz. Nous souhaitons montrer comment les techniques que nous envisageons de mettre en œuvre au début de ce travail, s'inscrivent dans la continuité de la réflexion sur ce sujet, en mettant en évidence d'une part les améliorations apportées, et d'autre part les problèmes non résolus à ce jour. L'un des objectifs de ce travail était en effet de contribuer à l'évaluation et au développement de certaines des méthodes.

3.2.1 Méthode de la proportionnalité et mise en évidence des problèmes posés

La méthode la plus simple pour évaluer la paléodose consiste à mesurer le signal de luminescence naturelle d'une aliquote constituée de quelques dizaines de grains de quartz, de granulométrie bien sélectionnée, et à le comparer à celui émis par la même aliquote après ajout d'une dose de rayonnement connue avec une source radioactive calibrée. Cette dose est qualifiée de « dose de régénération » et, par suite, le signal associé de « signal de régénération ». L'évaluation de P résulte ainsi d'un simple calcul de proportionnalité (règle de trois).

Rappelons que les signaux de TL sont enregistrés au cours d'une montée en température à vitesse constante (de 0,1 à 10°C/s habituellement), jusqu'à 450 ou 500°C en général, et se présentent sous la forme de pics, chaque pic correspondant à la libération d'électrons hors d'un type de piège particulier. La comparaison du signal naturel et du signal de régénération pourra donc porter sur les signaux correspondant à une température donnée (par exemple celle correspondant au sommet d'un pic) ou à un intervalle de température donné.

Les signaux d'OSL sont, quant à eux, enregistrés au cours d'une stimulation optique à puissance constante et décroissent au fur et à mesure que les pièges se vident. La comparaison

du signal naturel et du signal de régénération porte donc, dans ce cas, sur les signaux enregistrés pour un intervalle de temps donné (par exemple les 0,2 premières secondes de la stimulation).

La méthode de la proportionnalité pose plusieurs problèmes :

- Pour que la comparaison des signaux (TL ou OSL) naturel et régénéré soit valide, ces signaux doivent être issus de pièges considérés comme stables par rapport à l'âge de l'échantillon. Or, lors de l'ajout de la dose de régénération, des pièges instables sont remplis. Le signal régénéré est donc plus complexe que le signal naturel et leur comparaison directe s'avère difficile.
- Des changements de sensibilité (c.-à-d. des changements dans la quantité de lumière émise par unité de dose) interviennent dans les minéraux luminescents au cours d'une chauffe ou d'un blanchiment, en l'occurrence lors de la lecture de la luminescence naturelle. Une correction du signal de régénération s'avère donc nécessaire.
- La croissance du signal de luminescence avec la dose d'irradiation est rarement linéaire dans un large domaine de doses et, en général, il n'y a pas simple proportionnalité entre les deux signaux.

L'expérimentateur est alors amené à étudier les variations de la luminescence en fonction de la dose artificielle ajoutée. Les protocoles utilisés à cette fin sont appelés :

- « **protocoles des aliquotes multiples ou protocoles de multiple-aliquot** » lorsqu'ils nécessitent la mesure de plusieurs aliquotes du minéral,
- « **protocoles des aliquotes uniques ou protocoles de single-aliquot** » lorsque toutes les mesures nécessaires à la construction d'une courbe de croissance de la luminescence en fonction de la dose sont, au contraire, réalisées sur une seule aliquote de l'échantillon. Dans ce cas, la procédure est répétée sur plusieurs aliquotes (une douzaine par exemple) afin d'améliorer la précision sur P.

Notons par ailleurs que, pour que la comparaison du signal de régénération et du signal naturel soit valide, la sensibilité à l'égard des irradiations réalisées au laboratoire doit être la même qu'à l'égard de l'irradiation naturelle. Cela suppose notamment une indépendance des signaux vis-à-vis du débit de dose. Cette hypothèse fondamentale sera discutée dans le chapitre 6.

3.2.2 Protocoles de multiple-aliquot

3.2.2.1 Normalisation

L'estimation de la paléodose avec une méthode de multiple-aliquot nécessite la normalisation des signaux de luminescence des différentes aliquotes. Différentes procédures de normalisation ont été développées :

- En TL, les mesures sont généralement réalisées sur des aliquotes de même masse ou de même volume. Cette méthode de normalisation n'est pas toujours adéquate, compte tenu des variations statistiques de la sensibilité des grains, comme le montre la figure 3.2.

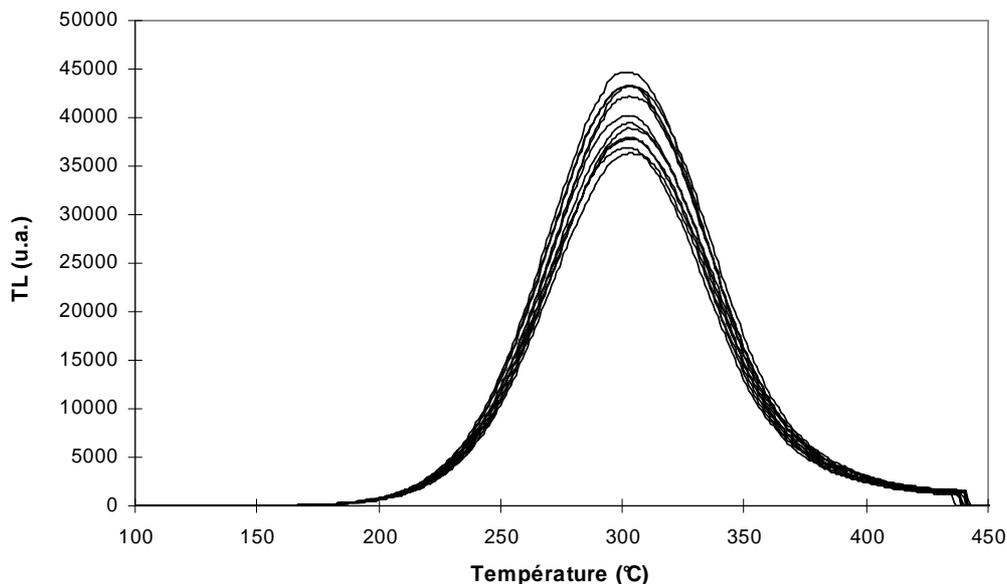


Figure 3.2 : Courbes de TL d'un échantillon de quartz enregistrées dans le bleu pour une même dose d'irradiation ($TL_n + 45$ Gy) (mesures de 12 aliquotes de 10 mg de quartz, vitesse de montée en température : 5°C/s , préchauffage : $230^\circ\text{C}/10\text{s}$).

- Une autre méthode consiste à ajouter, avant la mesure, une dose très faible par rapport à la paléodose (inférieure à 1%) et à utiliser un pic apparaissant à basse température induit par cette irradiation (Aitken et al., 1979 ; Franklin et Hornyak, 1992). Ce pic, appelé aussi « pic de pré-dose », apparaît à 70, 100 ou 110°C selon le taux de chauffage. Cependant, cette méthode n'est pas très fiable et serait abandonnée. En effet, le rapport [pic mesuré pour la datation/pic de pré dose] est supposé constant, ce qui n'est pas toujours vérifié. De plus, la décroissance rapide

du pic à 110°C pose des problèmes pratiques, le temps entre l'irradiation et la mesure devant être le même pour toutes les aliquotes.

- En OSL, une normalisation au « short-shine » peut être réalisée. Elle consiste à mesurer pour chaque aliquote le signal OSL résultant d'une courte exposition à la source de stimulation, avant de procéder à toute autre mesure. Pour éviter une sous-estimation de la paléodose, l'exposition doit être suffisamment courte pour que la diminution du signal n'excède pas 1 à 2 %.
- La normalisation peut aussi consister à mesurer pour chaque aliquote le signal de luminescence induit par une même dose test, après les mesures nécessaires à la détermination de la paléodose.

3.2.2.2 Méthode de la dose additive

Dans la méthode de la dose additive, les grains de quartz sont divisés en plusieurs lots qui sont irradiés à des doses croissantes, à l'exception de l'un d'entre eux qui permettra la mesure de la luminescence naturelle. Pour chaque dose, la luminescence de plusieurs aliquotes est mesurée afin d'améliorer la précision statistique et d'estimer la dispersion des mesures. La valeur moyenne de la TL de ces différentes doses permet la construction d'une courbe dite « de première lecture ». La paléodose est obtenue en extrapolant le signal à zéro. La figure 3.3 illustre la détermination de P par cette méthode en TL.

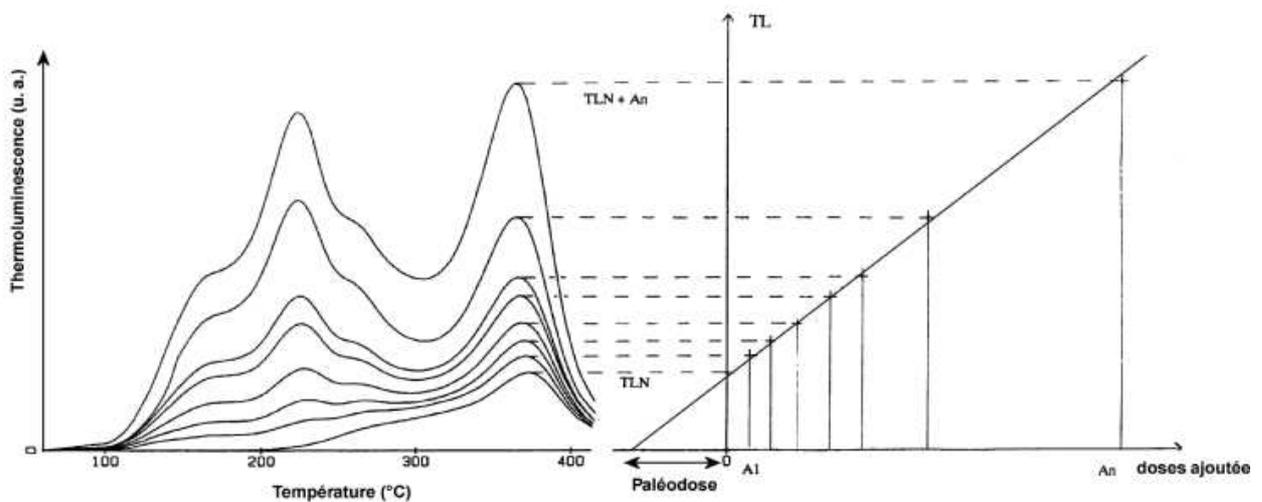


Figure 3.3 : Détermination de la paléodose par la méthode de la dose additive en TL (Pilleyre, 1991).

Cette procédure permet donc de s'affranchir des problèmes de changement de sensibilité dus au chauffage, mais elle présente néanmoins des inconvénients :

- La validité de l'extrapolation dépend de la fonction mathématique utilisée pour représenter la croissance du signal. L'incertitude sur la paléodose augmente donc fortement lorsque la mesure de la luminescence des échantillons présente une faible reproductibilité, puisqu'il devient difficile d'évaluer le modèle de croissance à utiliser.

- Par ailleurs, la forme de la courbe de croissance pour les doses inférieures à la paléodose n'est pas accessible par cette méthode. Une extrapolation de cette courbe suivant le modèle établi pour des doses supérieures à P est donc hasardeuse, en particulier dans le cas où la croissance n'apparaît pas linéaire.

En TL, un test permet de s'assurer que la détermination de la paléodose a été effectuée sur des signaux correspondant à des pièges stables. Il consiste à déterminer la paléodose P pour différentes températures T et à représenter $P=f(T)$. Dans le domaine de température correspondant aux pièges stables, la courbe présentera un plateau. Ce test est nécessaire mais pas forcément suffisant. En effet, si les courbes de TL présentent un pic unique, en cas de « fading anormal » (i.e. fading non lié au vidage thermique des pièges), un plateau acceptable peut être obtenu. Le test du plateau doit donc être complété par des tests de fading.

3.2.2.3 Méthode de régénération

Les grains de quartz (excepté une portion permettant la mesure du signal naturel) sont remis à zéro, puis divisés en plusieurs lots irradiés à des doses encadrant la valeur présumée de P. La lecture de leur signal permet la construction d'une courbe dite « de régénération », ou encore « de deuxième lecture ». La paléodose est obtenue par interpolation du signal naturel sur la courbe de deuxième lecture (Figure 3.4), si bien que les difficultés mathématiques posées par la méthode des doses additives sont éliminées. Toutefois, le problème de changement de sensibilité dû à la remise à zéro persiste.

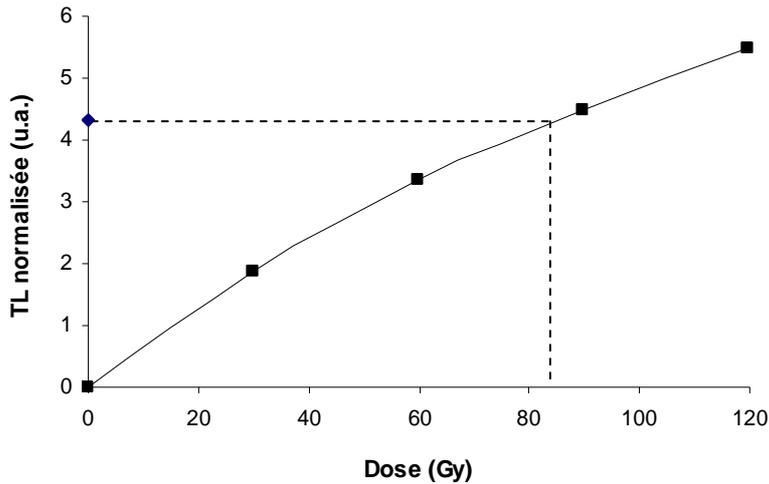


Figure 3.4 : Détermination de la paléodose par la méthode de régénération (exemple en TL).

3.2.2.4 Méthode « mixte »

Des méthodes tirant profit des avantages de la mesure du signal des doses additives et de régénération ont été imaginées. Elles impliquent la construction d'une courbe de première lecture, non influencée par les changements de sensibilité liés au chauffage, et d'une courbe de deuxième lecture, utilisée comme modèle de croissance du signal, en particulier pour les doses inférieures à la dose naturelle.

Dès les débuts de la datation des céramiques archéologiques par TL (années 60), il avait été observé que la croissance du signal en fonction de la dose n'était pas toujours linéaire. Le domaine de doses alors exploré correspondait à celui de faibles doses. L'écart à la linéarité n'apparaissait donc, en première approximation, qu'à très faible dose et se traduisait par une croissance supralinéaire du signal. L'extrapolation linéaire de la courbe additive permettait d'obtenir une première estimation Q de la paléodose. La courbe de deuxième lecture coupait l'axe des abscisses à une distance I (« intercepte ») de l'origine. La paléodose P était alors la somme de ce facteur correctif I , obtenu par extrapolation linéaire de cette courbe, et de Q . Le même objectif pouvait aussi être atteint en translatant la courbe de croissance de deuxième lecture sur la courbe de croissance de première lecture (Figure 3.5). Il s'agissait donc d'une première méthode de « glissement », appliquée dans le cas le plus simple. Ce résultat était valide uniquement si la forme de la courbe de régénération aux faibles doses (et par conséquent la valeur de I) n'avait pas été modifiée par le recuit. De plus, l'application de cette méthode nécessitait une croissance linéaire des signaux de TL.

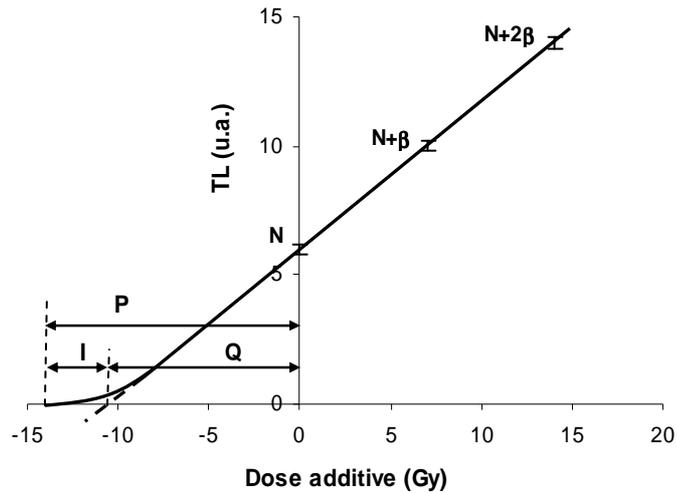


Figure 3.5 : Méthode additive avec correction d'intercepte (d'après Aitken, 1985). La paléodose P est la somme de Q et de la correction I .

Des méthodes mixtes plus élaborées (Figure 3.6) ont ensuite été introduites quand il a été constaté que les courbes de croissance ont des formes complexes et que la correction ne peut pas se réduire au simple « intercepte ». Ces méthodes tiennent compte de la forme de la courbe de croissance dans une gamme de dose plus importante. Pour la détermination de P , la courbe de régénération est translatée le long de l'axe des abscisses jusqu'à ce qu'elle puisse se superposer à la courbe additive moyennant, s'il le faut, l'application d'un facteur d'échelle sur l'une des deux courbes. La paléodose correspond au déplacement en dose (suivant l'axe horizontal) nécessaire pour superposer au mieux les deux lots de données. Ces méthodes supposent a priori que les courbes de première et de deuxième lecture sont homothétiques, à un facteur d'échelle près. Si un changement de forme entre les deux courbes est observé, la détermination de la paléodose devient moins évidente, voire impossible.

Différentes variantes de cette méthode de glissement (« slide technique ») ont été développées : celles de Valladas et Gillot (1978), de Mercier et al. (1992), la variante "2+1" (Sanzelle et al., 1993), celle de l'Australian Slide Technique (Prescott et al., 1993) pour la TL et celle nommée MARA (Multiple Aliquot Regeneration and Added dose) pour l'OSL (Folz et Mercier, 1999). Certains auteurs utilisent une fonction mathématique, par exemple une exponentielle saturante, pour modéliser la croissance du signal de luminescence. En fait, comme nous l'avons évoqué au chapitre précédent, la croissance du signal est souvent plus complexe. Pour cette raison, Sanzelle et al. (1996) ont introduit la méthode LISA qui ne

requière aucun modèle mathématique et qui, de plus, tient compte des incertitudes expérimentales dans l'évaluation de la paléodose.

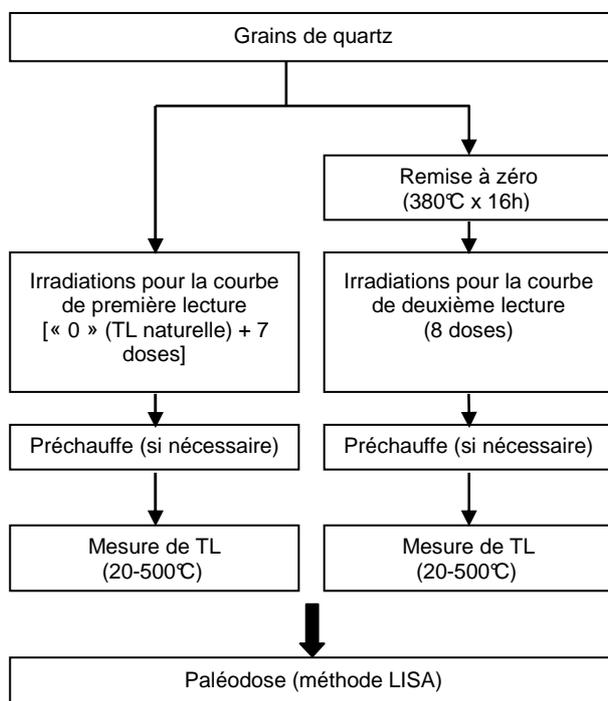


Figure 3.6 : Organigramme des mesures pour le protocole mixte en TL. L'étape « préchauffe » n'est pas systématique, mais permet, si nécessaire, d'éliminer les pics TL apparaissant à basse température et susceptibles de perturber le pic utilisé pour la détermination de la paléodose. Le nombre de doses additives et de régénération est donné à titre indicatif et dépend notamment de la quantité de quartz disponible. Ce nombre doit permettre de définir la croissance des signaux de luminescence avec suffisamment de précision.

3.2.2.5 Cas des matériaux non chauffés

Les méthodes de détermination de la paléodose présentées jusqu'ici supposent que le signal de luminescence géologique a été complètement remis à zéro lors de l'événement à dater. En TL, cette hypothèse n'est valide que pour les matériaux suffisamment chauffés, puisqu'il a été montré que même une exposition prolongée à la lumière ne permettait pas de vider totalement les pièges à électrons. Pour la datation des sédiments non chauffés, Wintle et Huntley (1980) ont suggéré de diviser le signal de TL, « I_{TL} », en deux composantes :

- une composante « non blanchissable » I_0 (dénommée TL résiduelle), provenant de pièges insensibles à la lumière et qui subsistait avant l'enfouissement du sédiment,
- une composante « blanchissable » I_d , provenant de pièges sensibles à la lumière et qui a crû depuis l'enfouissement du sédiment.

Ainsi I_{TL} peut s'exprimer :

$$I_{TL} = I_0 + I_d. \quad (3.1)$$

Il s'agit d'une approximation, étant donné qu'il existe en fait plusieurs composantes susceptibles d'être blanchies, mais à des vitesses différentes.

Les procédures mises au point pour la détermination de P dans le cas des matériaux chauffés ont donc été modifiées pour tenir compte de la présence de la TL résiduelle. Des méthodes telles que la « partial bleach method » (Wintle et Huntley, 1980) ou la « selective bleach method » (Prescott et Mojarrabi, 1993) ont ainsi été introduites. Ces méthodes n'ont pas été utilisées dans ce travail et ne seront donc pas développées ici. Rappelons simplement que les difficultés rencontrées pour la détermination de la paléodose par la TL dans le cas des sédiments non chauffés ont été une des motivations à l'origine de l'introduction de la datation par OSL (Huntley et al., 1985). Les signaux d'OSL sont en effet remis à zéro plus rapidement et efficacement par la lumière. Par la suite, la datation par l'OSL a également été appliquée aux quartz chauffés (*e.g.* Bonde et al., 2001 ; Tsukamoto et al., 2003).

3.2.3 Protocoles de single-aliquot

Avec les procédures de single-aliquot, toutes les mesures nécessaires à l'estimation de la paléodose sont réalisées sur la même fraction (aliquote), d'où l'utilisation d'une très faible quantité de minéral, ce qui constitue un avantage important en archéologie et en géologie, quand les échantillons sont peu abondants, « précieux » ou pauvres en minéraux luminescents. En pratique, plusieurs aliquotes de l'échantillon étudié sont mesurées indépendamment afin d'apprécier la distribution des paléodoses obtenues. Cette dernière fournit des indications sur l'homogénéité de l'échantillon du point de vue de la dosimétrie ou, dans le cas des sédiments non chauffés, sur l'homogénéité du blanchiment des minéraux.

Dans la description des protocoles de single-aliquot, l'accent sera mis sur les méthodes de correction des changements de sensibilité induits par les recuits successifs. Comme pour les méthodes de multiple-aliquot, deux approches sont possibles, à savoir des méthodes additives et de régénération. Le développement des appareils de mesures (automatisation, détection de faibles niveaux de lumière) permet désormais d'appliquer ces procédures à des grains uniques. Les premières études concernant les feldspaths potassiques ont été réalisées par Lamothe et al. (1994) et pour les quartz par Murray et Roberts (1997).

3.2.3.1 Méthode additive

Cette méthode est envisageable uniquement pour l'OSL, puisqu'en TL les pièges sont vidés totalement dès la mesure du signal de TL naturel. Elle porte le nom de Single-Aliquot

Additive-Dose (SAAD). La construction de la courbe de croissance consiste en une succession de cycles « ajout de dose - préchauffe - mesure de "short-shine" ». A la différence de la méthode additive en multiple-aliquot, la dose est donc cumulative, *i.e.* pour une mesure donnée, la dose reçue est la somme de la dose ajoutée juste avant cette mesure et des doses précédentes.

La première procédure automatique mise au point par Duller en 1991 pour des K-feldspaths nécessitait en réalité la mesure de deux disques, l'un pour construire la courbe de croissance et l'autre pour déterminer la perte de signal due aux préchauffes et mesures successives et corriger ainsi la courbe de croissance avant l'extrapolation. Des cycles « préchauffe - mesure sans ajout de dose » étaient réalisés sur ce second disque. Il s'agissait donc d'une correction de la luminescence (Figure 3.7.c). Cependant, lorsque la courbe de croissance s'éloigne de la linéarité, la correction proposée ci-dessus n'est plus adaptée. Duller (1994) proposa donc une méthode de correction de la dose (Figure 3.7.d) et non plus de la luminescence. Avec cette nouvelle approche, l'effet du préchauffage est considéré en fait comme l'ajout d'une dose d'irradiation « négative ».

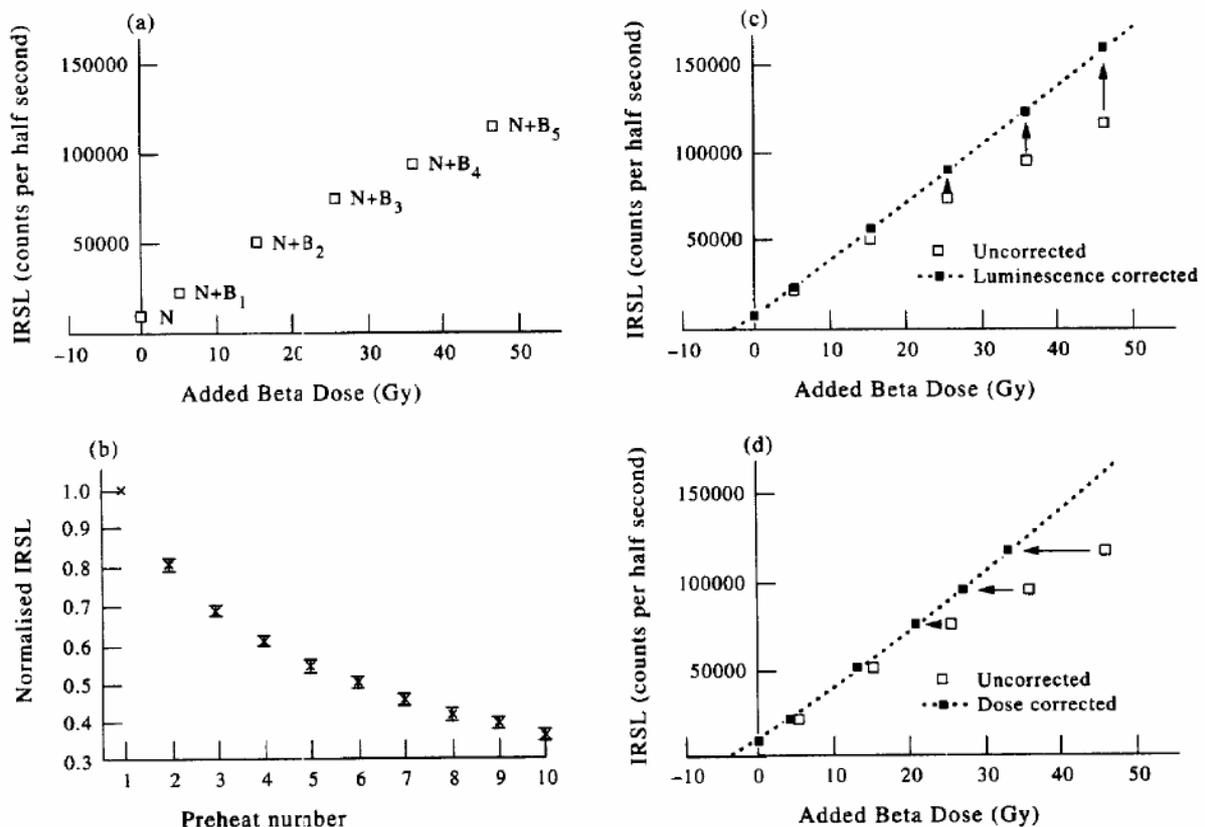


Figure 3.7 : Méthodes de correction des signaux de luminescence pour la méthode additive en single-aliquot (d'après Duller, 1995) : a) données brutes, b) effet du préchauffage sur le signal, c) données de a) corrigées à partir des données de b) pour la "méthode de correction de la luminescence" (Duller, 1991) et d) de même qu'en c) mais en utilisant la "méthode de correction de la dose" (Duller, 1994). Les mesures ont été réalisées sur des K-feldspaths extraits d'une dune de Nouvelle Zélande.

Un protocole nécessitant un seul disque fut proposé par Galloway (1996), les corrections pour la courbe de croissance étant réalisées à partir de mesures supplémentaires (cycles de préchauffes et mesures) réalisées à la fin du cycle de mesures des doses additives. La méthode de la dose additive a également été appliquée au quartz (*e.g.* Murray et al., 1997).

3.2.3.2 Méthode de régénération

Depuis la fin des années 1990, des protocoles SAR (Single-Aliquot Regenerative-dose) tenant compte des changements de sensibilité dus aux préchauffes et mesures ont été développés pour la datation par OSL. Pour ces méthodes, c'est le signal total d'OSL, et non plus seulement sa fraction initiale, qui est mesuré (et par suite remis à zéro). Ceci constitue un avantage pour les échantillons jeunes ou qui présentent une faible luminescence, puisque l'intégration du signal OSL sur une durée de stimulation plus longue améliore la statistique de comptage. Deux approches ont été proposées pour prendre en compte les changements de sensibilité.

✓ Utilisation du pic de TL à 110°C

En 1998, Murray et Roberts ont introduit dans la procédure des corrections de changement de sensibilité fondées sur la réponse du pic de TL à 110°C, enregistré au cours du préchauffage suivant la mesure d'OSL. En effet, le changement de sensibilité ayant lieu essentiellement au cours du préchauffage, le signal de TL à 110°C mesuré immédiatement après l'ajout d'une dose de régénération est relié au signal d'OSL précédent.

Cette procédure de correction repose sur l'hypothèse suivante : l'émission de TL et celle d'OSL utilisent les mêmes centres de recombinaison et, par conséquent, les changements dans l'efficacité de ces centres affectent de manière similaire les sensibilités de TL et d'OSL. Elle suppose également que les signaux d'OSL et de TL du pic à 110°C sont proportionnels et que cette propriété perdure lors de la répétition des mesures. Mais, en général, cette propriété de proportionnalité n'est pas vérifiée.

Des tests sont d'abord réalisés sur quelques aliquotes afin de déterminer un « plateau de préchauffe », c.-à-d. un domaine pour lequel la paléodose ne varie pas en fonction de la préchauffe appliquée. Le protocole développé par Murray et Roberts (1998) est ensuite appliqué (voir figure 3.8).

- (1) Préchauffe X°C/10sec et mesure du pic à 110°C
 - (2) Mesure OSL à 125°C/100sec
 - (3) Ajout d'une dose de régénération
 - (4) Préchauffe X°C/10sec et mesure du pic à 110°C
 - (5) retour à l'étape (2)
- Répété 6 fois environ, en utilisant la même dose de régénération
-

Figure 3.8 : Protocole développé par Murray et Roberts (1998).

L'aliquote est préchauffée pendant 10s à une température X choisie dans le plateau de préchauffe (entre 160 et 300°C généralement), puis le signal d'OSL naturel est enregistré au cours d'une stimulation à 125°C pendant une durée de 100s. Cette température est maintenue pendant toute la durée de la stimulation afin d'éviter le repiégeage des charges dans les pièges peu profonds (en particulier dans le piège correspondant au pic de TL à 110°C), ce qui entraînerait la perte d'une fraction du signal OSL. La durée de la stimulation permet de réduire le signal OSL à une fraction négligeable de sa valeur de départ, donc à le remettre à zéro. Cette durée dépend donc de l'intensité de la source de stimulation. Une dose de régénération, choisie de façon à ce que sa valeur soit proche de la paléodose attendue pour éviter une erreur due à une possible non linéarité de la courbe de croissance, est ajoutée, puis l'aliquote est préchauffée. Les auteurs préconisent de répéter ensuite 6 fois le cycle « mesure du signal OSL - ajout d'une dose de régénération – préchauffe -», en utilisant la même dose de régénération, pour établir la relation entre la sensibilité de l'OSL et celle du signal de TL à 110°C enregistrée au cours du préchauffage qui suit cette mesure (Fig. 3.9).

Cette relation linéaire est extrapolée, puis la TL enregistrée au cours du préchauffage de la première dose de régénération est utilisée pour déterminer la sensibilité du signal d'OSL naturel qui aurait été observée si la paléodose avait été égale à la dose de régénération employée. Un calcul de proportionnalité entre le signal d'OSL naturel réellement enregistré et ce signal OSL obtenu par interpolation permet de déterminer la paléodose. Cette procédure est valide si la dose de régénération a été choisie très proche de la paléodose ou si la sensibilité est indépendante de la dose.

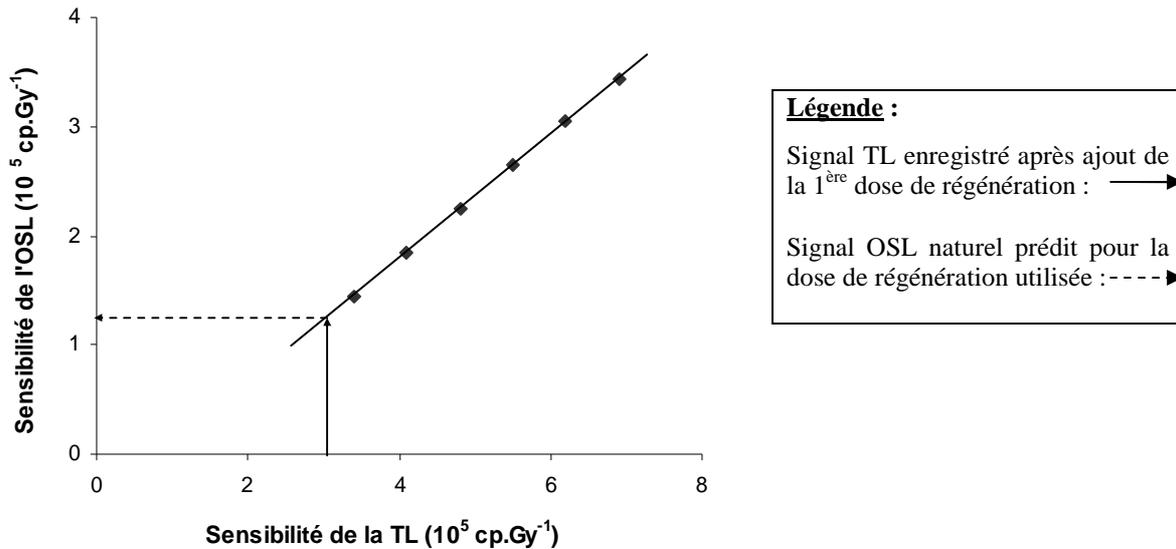


Figure 3.9 : Etablissement de la relation entre la sensibilité de l'OSL et celle du pic de TL à 110°C (d'après Aitken, 1998).

✓ Utilisation du signal OSL généré par une dose test

En 1999, Murray et Mejdahl ont proposé un protocole de régénération simplifié, fondé sur la réponse du signal OSL généré par une dose test pour corriger les changements de sensibilité (Figure 3.10). Ils ont en effet montré qu'il existait une relation linéaire entre le signal OSL d'une dose de régénération et le signal OSL de la dose test suivante, relation qui passe par (ou pratiquement par) 0. Il n'est donc plus nécessaire de répéter les ajouts de dose de régénération.

De même que pour le protocole de Murray et Roberts (1998), la dose de régénération doit être proche de la paléodose et une préchauffe à une température X appartenant au plateau de préchauffe, doit précéder la mesure du signal d'OSL qui en résulte. La dose test, par contre, est petite par rapport à P et subit une préchauffe moins sévère, afin de ne pas induire de changement de sensibilité (160°C/0s). Les signaux d'OSL naturel et de régénération sont ensuite divisés par le signal d'OSL correspondant à la dose test qui suit. Un calcul de proportionnalité permet de déterminer P, à partir de ces données normalisées et de la valeur de la dose de régénération.

- (1) Préchauffe X°C/10sec
- (2) Mesure OSL à 125°C/100sec (Li)
- (3) Ajout d'une dose test
- (4) Préchauffe 160°C/0sec (cutheat)
- (5) Mesure OSL à 125°C/100sec (Ti)
- (6) Ajout d'une dose de régénération
- (7) retour à l'étape (1)



Figure 3.10 : Protocole développé par Murray et Mejdahl (1999).

Les protocoles présentés jusqu'ici supposent que la dose de régénération utilisée est suffisamment proche de la paléodose pour permettre le calcul de cette dernière par proportion. Si P appartient à un domaine de dose où la croissance n'est pas linéaire, le calcul sera erroné. Pour s'affranchir de ce problème, Murray et Wintle (2000a) ont proposé un protocole SAR (Figure 3.11) qui permet de construire une courbe de régénération corrigée des changements de sensibilité (rapports Li/Ti en fonction de la dose). Plusieurs doses de régénération Ri (en général 3 ou 4) encadrant la paléodose attendue sont utilisées et chaque signal OSL (Li) est corrigé par celui d'une dose test fixée (Ti). P est obtenue par interpolation du signal OSL naturel corrigé sur la courbe $Li/Ti=f(dose)$.

- (1) Ajout d'une dose de régénération (=0 lors du 1^{er} cycle)
- (2) Préchauffe (160-300°C/10sec)
- (3) Mesure OSL à 125°C/100sec (Li)
- (4) Ajout d'une dose test
- (5) Préchauffe à 160°C/0sec (cut-off ou cutheat)
- (6) Mesure OSL à 125°C/100sec (Ti)
- (7) retour à l'étape (1)

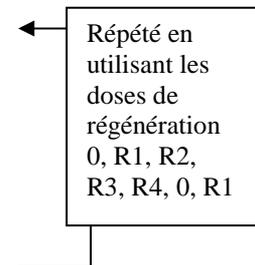


Figure 3.11 : Protocole SAR proposé par Murray and Wintle (2000a).

D'après Murray et Wintle (2000a), la courbe de croissance corrigée est indépendante de l'ordre dans lequel les doses de régénération sont administrées. L'estimation de P ne devrait pas, en principe, présenter de dépendance systématique vis-à-vis de la valeur de la dose test, de la température de préchauffe et de la température de stimulation. Li et Ti proviennent de la partie initiale du signal OSL (0,3 à 0,8 s, signal rapidement blanchissable) à laquelle a été soustrait un bruit de fond, ce dernier étant estimé à partir du signal OSL enregistré au cours des dernières secondes de la stimulation.

Trois tests, impliquant des cycles de mesures supplémentaires après la construction de la courbe de croissance, ont été suggérés pour vérifier si le protocole SAR est approprié pour la détermination de la paléodose d'un échantillon :

- *recuperation test* (test de récupération) : la mesure du point correspondant à aucun ajout de dose ne devrait donner aucun signal, mais, en fait, à cause de transferts, lors du préchauffage, de charges localisées dans des pièges profonds vers les pièges d'OSL, ce signal appelé « signal de récupération » est non nul. Corrigé en sensibilité, il peut s'exprimer comme un pourcentage du signal naturel corrigé. Selon Murray et Wintle (2000a), cette valeur ne devrait pas dépasser 5%.

- *recycling ratio* (test de recyclage) : les courbes de croissance corrigées en sensibilité sont généralement construites en administrant les doses de régénération par ordre croissant (*i.e.* en commençant par la plus petite dose), puis une mesure est réalisée sans ajout préalable de dose pour le test de récupération, puis la mesure d'une des doses de régénération est répétée. En général, il s'agit de la plus petite (donc celle administrée juste après la mesure du signal naturel) : le changement de sensibilité étant généralement progressif, la première et la dernière mesures présenteront les changements de sensibilité les plus importants. Le rapport des deux points corrigés en sensibilité est le « recycling ratio ». Si le protocole SAR corrige correctement les changements de sensibilité, le ratio sera égal à 1. La gamme de valeurs acceptables pour ce ratio est 0,90 à 1,10 (Murray et Wintle, 2000a).

- *dose recovery test* : la procédure SAR suppose que le signal de la dose test suivant la mesure du signal naturel reflète réellement la sensibilité de l'aliquote lors de la mesure du signal naturel; malheureusement, aucun test de laboratoire ne permet de le confirmer. La meilleure approche pour avoir une idée du maximum de précision que l'on peut attendre sur la paléodose avec la procédure SAR serait d'appliquer une dose connue (assez proche de la paléodose) à l'échantillon remis à zéro au laboratoire, et de retrouver la valeur de la dose avec cette procédure.

Le protocole SAR de Murray et Wintle (2000a), testé sur de nombreux échantillons de quartz, a donné globalement de bons résultats. Cependant, certains auteurs (*e.g.* Stokes et al., 2000) ont observé un désaccord entre les âges obtenus selon ce protocole et ceux obtenus avec des méthodes de datation indépendantes. Murray et Wintle (2003) ont donc apporté des modifications pour l'améliorer. Ainsi, de hauts niveaux de récupération d'OSL ayant été parfois observés, une étape supplémentaire, consistant en une stimulation optique à une température supérieure à la température de préchauffe (*e.g.* 280°C/40sec), a été ajoutée à la

fin de chaque cycle de mesure (*i.e.* après la mesure des doses test) pour minimiser cet effet. Par ailleurs, les signaux d'OSL comportent plusieurs composantes appelées « fast », « medium » et « slow ». Jain et al. (2003) ont mis en évidence la présence d'une composante supplémentaire (« ultrafast ») pour les signaux de régénération et de la dose test de quelques échantillons. Cette composante étant absente des signaux naturels, sa prise en compte est susceptible de conduire à une sous-estimation de l'âge. L'emploi de températures de préchauffe plus élevées a donc été préconisé pour l'éliminer.

Le protocole SAR a également été adapté pour la TL. Citons par exemple les études de Murray et Wintle (2000b), Fattahi et Stokes (2000, 2005) et Ganzawa et al. (2005).

Méthode SARA

Duller (1991) avait exclu l'utilisation d'un protocole de régénération en single-aliquot, à cause des changements de sensibilité intervenant lors des mesures de luminescence. Avant la mise en évidence du fait que l'utilisation d'une dose test permettait de construire une courbe de régénération corrigée des changements de sensibilité, Mejdahl et Bøtter-Jensen (1994, 1997) ont introduit la méthode SARA (Single Aliquot Regeneration and Added dose). De même que la méthode mixte pour les aliquotes multiples, elle combine les avantages de la technique de régénération (notamment l'interpolation), avec une procédure conçue pour compenser les changements de sensibilité en utilisant une approche de doses additives. Il ne s'agit pas véritablement d'une technique de single-aliquot puisqu'au moins quatre aliquotes sont requises pour déterminer P.

La méthode comprend les étapes suivantes :

1) des doses croissantes $B_0(=0)$, B_1 , B_2 , B_3 sont ajoutées à la dose naturelle de 4 aliquotes de quartz,

2) une procédure de régénération (construction d'une courbe de régénération non corrigée en sensibilité avec 3 doses de régénération encadrant la dose enregistrée par l'aliquote) est utilisée pour déterminer les doses D_0 , D_1 , D_2 , D_3 reçues par les 4 aliquotes (D_0 est en fait la paléodose « apparente » de l'échantillon),

3) les doses D_0 , D_1 , D_2 , D_3 sont représentées en fonction des doses ajoutées B_0 , B_1 , B_2 , B_3 (Figure 3.12). P est déterminée par extrapolation de la droite de régression jusqu'à l'axe des abscisses.

La paléodose ainsi obtenue est supposée indépendante du changement de sensibilité introduit avec les mesures de régénération, à condition que le changement de sensibilité soit le même pour les doses D0, D1, D2, D3 (et donc indépendant de la dose ajoutée). Cette hypothèse sera vérifiée si les triangles 0, D0, I et B3, D3, I sont homothétiques, c.-à-d. si l'équation suivante est vérifiée :

$$\frac{D0}{P} = \frac{D3}{P+B3} \quad (3.2)$$

Si les résultats diffèrent de plus de 3%, le protocole n'est pas applicable. Une condition supplémentaire est que le coefficient de régression de la droite doit être très proche de 1.

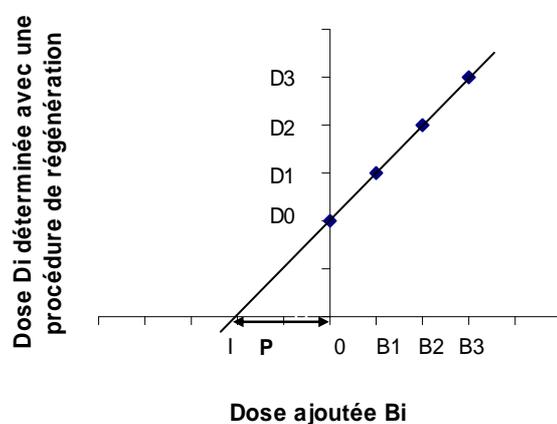


Figure 3.12 : Représentation schématique de la méthode SARA.

3.3 Méthodes retenues

Pour la détermination de la paléodose de nos échantillons, nous avons choisi :

- d'exploiter les émissions de TL des grains de quartz avec le protocole mixte multiple-aliquot, dans deux gammes de longueur d'onde, à savoir le rouge et le bleu.

Le protocole mixte, qui combine les avantages des méthodes de la dose additive et de régénération, est utilisé en routine par l'équipe du LPC et la paléodose est déterminée avec la méthode LISA. Par ailleurs, cette équipe a une bonne connaissance des propriétés de l'émission rouge des quartz chauffés (Miallier et al., 1991 et 1994a ; Pilleyre, 1991) et cette approche a été utilisée avec succès pour dater des volcans de la Chaîne des Puys (Montret et al., 1992 ; Pilleyre et al., 1992 ; Miallier et al., 1994b). L'émission rouge permet, de plus, de

dater des échantillons sur une gamme d'âge plus étendue que la TL bleue (jusqu'à plusieurs centaines de milliers d'années).

L'utilisation de l'émission de TL bleue pour dater des volcans anciens a souvent présenté des difficultés. Nous avons donc souhaité comparer systématiquement les résultats obtenus pour ces deux longueurs d'onde, pour tenter de comprendre les phénomènes observés et mettre en évidence les paramètres qui les contrôlent.

- de tester le protocole SAR en TL bleue

Il existe peu d'études sur cette approche dans la littérature.

- de tester le protocole SAR de Murray et Wintle (2003) en OSL

L'exploitation des émissions d'OSL des quartz de la Chaîne des Puys n'avait pas été testée jusqu'alors. D'ailleurs, de manière plus générale, cette approche a été peu utilisée pour les quartz chauffés.

Des résultats de mesures et de simulations (Bailey, 2004 ; Bailey et al., 2005) ont suggéré que la manière habituelle d'administrer les doses de régénération au laboratoire (à température ambiante et en une seule exposition) pouvait conduire, pour des paléodoses supérieures à 40 Gy, à une surestimation de ce paramètre et à une dispersion importante des valeurs obtenues pour une série d'aliquotes. Ce problème serait lié à la différence entre le débit de dose naturel et celui des sources de rayonnement utilisées au laboratoire. Pour y remédier, Bailey et ses collaborateurs ont préconisé d'administrer les doses de régénération par pulses de 10 Gy, entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/0s. Nous avons également testé cette nouvelle procédure d'irradiation pour nos échantillons.

Lorsque la teneur en quartz des échantillons que nous nous proposons de dater le permettait, nous nous sommes efforcés de faire une comparaison systématique des différentes approches retenues afin de vérifier si elles donnaient des paléodoses identiques sur des minéraux issus des mêmes sites et préparés de façon commune. L'organigramme de la figure 3.13 indique comment les grains de quartz, homogènes en granulométrie, ont été divisés à cette fin.

Nous avons également proposé une nouvelle approche (Miallier et al., 2007) qui repose sur l'exploitation des signaux de TL résiduelle des grains de quartz après un blanchiment à la lumière du jour. Westaway et Roberts (2006) avaient suggéré que la

composante non blanchissable de la TL croissait linéairement avec la dose d'irradiation. Son utilisation constituait un moyen potentiel de s'affranchir des difficultés rencontrées pour déterminer la paléodose d'échantillons anciens, dont les courbes de croissance présentent des formes complexes. Nous souhaitions donc vérifier l'hypothèse de Westaway et Roberts et tester un protocole mixte multiple-aliquot mettant en jeu :

- une courbe de première lecture dont la construction repose sur la lecture d'aliquotes irradiées à des doses croissantes et blanchies à la lumière,
- une courbe de deuxième lecture dont la construction implique la lecture d'aliquotes remises à zéro par chauffage (380°C/16h), irradiées à des doses croissantes et blanchies à la lumière.

La détermination de P est effectuée à l'aide de la méthode LISA.

Pour la datation des galets, nous avons exploité l'émission de TL bleue avec le protocole mixte pour estimer leur paléodose. Cette approche est utilisée en routine par l'équipe du LSCE.

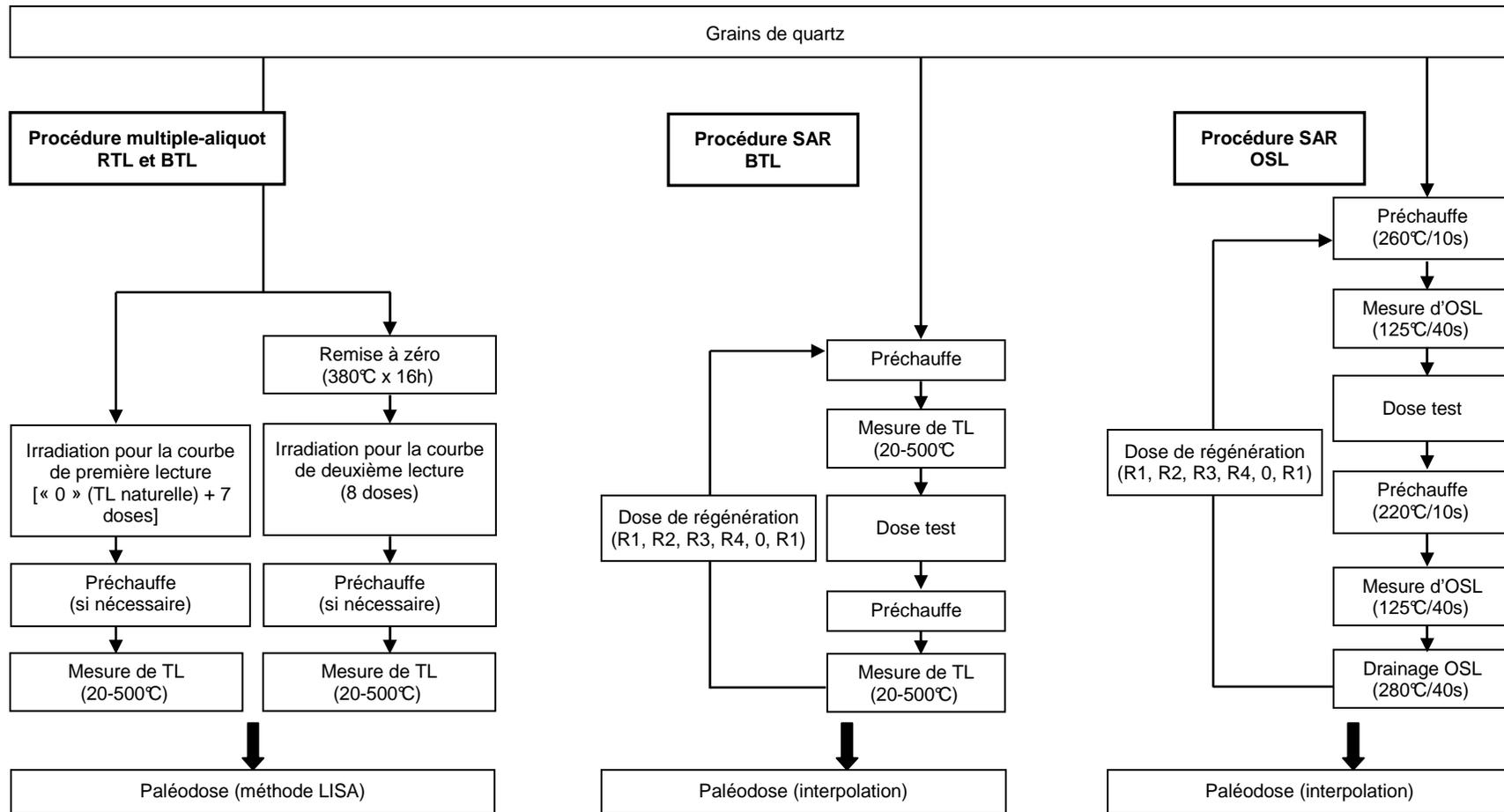


Figure 3.13 : Organigramme des mesures.

(Remarque : Contrairement à ce qui est préconisé dans la littérature, nous n'avons pas effectué de tests systématiques concernant les conditions de préchauffe en OSL, d'où les valeurs données dans l'organigramme)

3.4 Techniques expérimentales et matériels utilisés

3.4.1 Préparation des échantillons

3.4.1.1 Conditions d'éclairage

Afin de ne pas altérer les signaux de luminescence du quartz, il est nécessaire de prendre des précautions lors du prélèvement des échantillons destinés à l'évaluation de la paléodose et au cours de leur traitement au laboratoire. Nous avons prélevé les sédiments sous forme de blocs dont la surface exposée à la lumière a été éliminée avant l'extraction des grains de quartz, tandis que les galets de quartz ont été rapidement enveloppés dans du papier aluminium et leur couche superficielle éliminée par sciage. Toutes les opérations nécessaires à la préparation des échantillons au laboratoire ont été réalisées dans des conditions d'éclairage contrôlées, en lumière rouge ou jaune-orangée. Le quartz est en effet très sensible aux courtes longueurs d'onde. Des précautions identiques ont été prises lors de la mesure des signaux de luminescence.

3.4.1.2 Séparation des grains de quartz

Nos datations ont été réalisées selon la technique des « inclusions de quartz » (Fleming, 1970). Celle-ci nécessite de travailler avec des échantillons homogènes en nature, mais également en granulométrie. Chaque fraction granulométrique a en effet enregistré une dose naturelle qui lui est propre. Selon l'abondance en quartz du sédiment, nous avons utilisé les fractions 100-200 et 200-315 μm . Pour l'échantillon C397bis, les études méthodologiques qui nécessitaient une quantité importante de quartz ont également porté sur les fractions 500-600 et 850-1000 μm , les grains étant ensuite broyés à 100-200 ou 200-315 μm pour les mesures.

L'échantillon de sédiment prélevé est d'abord séché sous une hotte ventilée pour faciliter l'étape suivante au cours de laquelle une agglomération des grains serait gênante, puis il est tamisé dans le but d'isoler la fraction granulométrique d'intérêt. Afin de séparer les grains de quartz des autres minéraux ou composés susceptibles de générer un signal parasite, cette fraction subit un traitement chimique, adapté à la composition du sédiment et comportant les étapes suivantes :

- attaque à l'acide chlorhydrique (HCl) dilué pour éliminer les carbonates,
- attaque à l'acide fluorhydrique (HF).

Celle-ci a deux objectifs. Elle permet d'une part d'altérer les feldspaths présents dans l'échantillon et d'autre part d'enlever la couche superficielle des grains de quartz sur une épaisseur de 10 à 20 μm , supprimant la plus grande partie de la couche irradiée par les α dont le parcours est très faible dans la matière. Elle permet donc, par la même occasion, d'éliminer la gangue d'argile qui entoure les grains. Afin d'éviter une réaction trop violente sur les éléments les plus fins, cette attaque est menée en deux étapes, la première avec de l'HF dilué (10%) pendant 10 min environ, puis la seconde avec de l'HF concentré durant 30 à 45 min.

- attaque à l'acide chlorhydrique (HCl) dilué pour éliminer les fluorures éventuellement formés au cours du traitement précédent,
- élimination des impuretés magnétiques (magnétite et autres oxydes de fer) de l'échantillon, à l'aimant à main, puis au séparateur magnétique de Frantz pour affiner la séparation,
- séparation des minéraux lourds de densité supérieure à 2,70 encore présents, au moyen d'une liqueur dense, le polytungstate de sodium,
- séparation des feldspaths altérés de densité inférieure à 2,62 avec la même liqueur.

Cette valeur est préconisée par Mejdahl (1985). En réalité, la densité des minéraux naturels varie légèrement selon les conditions de leur formation ou à cause de la présence d'impuretés. La densité du quartz pur étant de 2,65, l'intervalle 2,62-2,70 permet d'isoler une fraction riche en quartz, mais comportant encore des feldspaths.

- attaque d'une semaine à l'acide hexafluorosilicique (H_2SiF_6 ; 31%) pour dissoudre les feldspaths altérés encore présents,
- multiples rinçages de l'échantillon à l'eau, avant son séchage sous une hotte ventilée.

La fraction granulométrique considérée ne contient pratiquement plus que des grains de quartz. Nous l'avons vérifié pour les échantillons C422 et C397bis par diffraction X (analyse réalisée par J.L. Devidal).

3.4.1.3 Traitements des galets

La couche superficielle des galets, qui a vu la lumière ou a été altérée au cours de leur enfouissement, est tout d'abord éliminée par sciage, sur une épaisseur d'au moins 2 mm. Le cœur du galet est ensuite broyé dans un mortier et la poudre tamisée à 100 et 160 μm . Les mesures de luminescence nécessaires à la détermination de la paléodose sont en effet réalisées sur la fraction 100-160 μm . Cette fraction est ensuite nettoyée à l'acide chlorhydrique (3N), puis elle est rincée à l'eau, à l'éthanol et à l'acétone et séchée à l'étuve (100°C).

3.4.2 Mesure des signaux de luminescence

Les appareils permettant de mesurer les signaux de luminescence comprennent principalement :

- un dispositif permettant la stimulation de la luminescence

Il consiste en une plaque chauffante pour la TL et en une source de lumière pour l'OSL.

- un système de détection de la lumière

Il s'agit d'un photomultiplicateur (PM) et d'une chaîne électronique d'analyse.

Un système d'acquisition et d'enregistrement des données est associé à ces instruments.

Selon l'approche envisagée, nos études de luminescence ont été réalisées sur l'appareil manuel du LPC ou sur les appareils automatiques du LSCE. G. Guérin nous a également facilité l'accès à son appareil automatique au LGMT à Orsay. Dans ce paragraphe seront décrites les spécificités relatives à la mesure et au traitement des signaux de luminescence propres à chacun des laboratoires. Notons que toutes les mesures de TL ont été enregistrées jusqu'à 500°C (excepté pour les galets : jusqu'à 450°C), à une vitesse de montée en température constante et égale à 5°C/s. Elles ont été réalisées sous atmosphère d'azote, afin d'éviter des signaux parasites induits par la présence d'oxygène.

3.4.2.1 Études de luminescence au LPC

3.4.2.1.1 Instrumentation

Le LPC dispose d'un appareil manuel destiné à la mesure de la TL. Il a été réalisé en grande partie au laboratoire (Sanzelle, 1988), à partir des plans de G. Valladas. Les mesures de TL avec le protocole de multiple-aliquot, entre autres, ont été effectuées avec ce lecteur. Il

est équipé d'un PM EMI 9635QA à cathode bi-alcaline et à faible bruit de fond. Le choix du domaine spectral de mesure est réalisé par l'intermédiaire d'un filtre coloré. Pour la TL rouge, un filtre RG610 (Schott) a été utilisé. La combinaison PM-filtre détermine une bande assez étroite centrée autour de 620 nm. Pour la TL bleue, un filtre BG12 (Leitz), laissant passer une large bande centrée autour de 400 nm et s'étendant dans le vert, a été employé. Il permet de réduire considérablement le bruit de fond thermique. Dans chaque cas, un filtre en silice a été intercalé entre le four et le filtre coloré afin de préserver ce dernier du chauffage. De plus, il a parfois été nécessaire d'ajouter un filtre atténuateur pour réduire l'intensité de signaux dépassant la capacité de l'électronique.

La mesure du signal TL est réalisée sur une dizaine de milligrammes de quartz déposés sur une coupelle en acier inoxydable de 10 mm de diamètre, préalablement chauffée pour éliminer sa TL parasite éventuelle. La coupelle est ensuite placée dans le « four », sur une lame chauffante en tantale. L'utilisation d'une « louche » qui comporte un évidement calibré, rempli puis arasé soigneusement, permet de réaliser des mesures TL sur la même quantité de matériau (à 1 ou 2 % près). Pour une meilleure précision statistique, une dizaine d'aliquotes sont mesurées par dose d'irradiation.

3.4.2.1.2 Irradiations artificielles

Le LPC dispose d'un irradiateur gamma de Césium 137, conçu par le CEA à partir des plans de G. Valladas (1979). Le débit de dose était d'environ 40 mGy.s^{-1} à la date de nos mesures. Pour assurer l'équilibre électronique, les irradiations sont réalisées dans des enceintes en aluminium d'épaisseur 2 mm et pouvant contenir environ 100 mg d'échantillon.

3.4.2.2 Études de luminescence au LSCE

3.4.2.2.1 Instrumentation

Nous présentons ici les appareils de mesure de la luminescence que nous avons utilisés au LSCE.

a) Le Risø

Ce lecteur automatique, de type TL/OSL-DA-15, est commercialisé par le Risø National Laboratory au Danemark. Il est équipé d'un PM de type Thorn-EMI 9235QA et permet des mesures de TL et d'OSL. Le système de stimulation optique est constitué de diodes électroluminescentes émettant dans le bleu, à une longueur d'onde de 470 nm. Une

diode laser infrarouge permet par ailleurs une excitation dans l'infrarouge (830 nm). Les signaux d'OSL sont détectés à travers un filtre de type Hoya U-340 dont le maximum de détection se situe à 340 nm. Nos mesures de TL bleue avec le protocole SAR ont été également réalisées avec cet appareil, en plaçant un filtre bleu (MTO 380 nm) devant le PM.

Pour les mesures de luminescence impliquant cet appareil, une monocouche de grains de quartz était déposée sur des disques en acier inoxydable de 9,7 mm de diamètre et fixée avec de l'huile de silicone. Ces disques étaient ensuite placés sur un carrousel pouvant recevoir jusqu'à 48 aliquotes.

Le Risø est équipé d'une source bêta de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ qui a été calibrée par rapport au faisceau d'une source de ^{137}Cs du Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants (LMRI) du CEA. Elle délivrait un débit d'environ $140 \text{ mGy}\cdot\text{s}^{-1}$ à la date de nos expériences.

b) L'appareil automatique de G. Valladas

Pour les mesures de TL nécessaires à la détermination de la paléodose des galets, nous avons utilisé un lecteur TL conçu par G. Valladas et comportant un carrousel de 16 positions. Le PM est de type EMI 9635QB. La TL de quatre coupelles de 10 mg de poudre par dose a été enregistrée avec un filtre violet (maximum de transmission à 380 nm).

3.4.2.2 Irradiations artificielles

En plus de la source bêta équipant le Risø, nous avons utilisé un irradiateur gamma de ^{137}Cs (Valladas, 1979), de configuration semblable à celle de l'irradiateur du LPC. Dans le cadre de la détermination de la paléodose des galets, les irradiations ont été réalisées dans des gélules en plastique, de 1 mm de paroi, pouvant contenir 60 mg de poudre de quartz. Le débit de cette source était d'environ $18,8 \text{ mGy}\cdot\text{s}^{-1}$ à la date de nos expériences.

3.4.2.3 Études de luminescence au LGMT

Les mesures en TL rouge avec le protocole SAR ont été réalisées avec un appareil automatique conçu par G. Guérin (Guérin et Lefèvre, 2005). Le PM est de type EMI 9235QSA. La mesure des signaux TL a été effectuée sur des aliquotes de 2 mg de quartz déposés sur une coupelle et un filtre RG610 (Schott) a été utilisé pour leur détection. De même que le Risø, cet appareil comporte une source bêta de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ dont le débit était d'environ $59 \text{ mGy}\cdot\text{s}^{-1}$ à la date de nos expériences.

3.4.2.4 Intercomparaison des débits des sources

Les débits des sources utilisées dans ce travail ont fait l'objet d'intercomparaisons. Ils sont compatibles à 5% près.

3.4.3 Traitement des données

Les signaux de luminescence sont enregistrés sous forme de comptages. Ces données sont ensuite traitées par des programmes informatiques qui permettent d'effectuer toutes les opérations nécessaires à la détermination de la paléodose (soustraction de bruit de fond, construction des courbes de croissance, application d'une méthode numérique permettant de calculer P, test du plateau ...). Au LPC, il s'agit notamment d'un logiciel Excel développé par l'équipe de datation par la luminescence et qui inclue la méthode numérique LISA. Au LSCE, le logiciel ANATOL développé par N. Mercier comprend des fonctionnalités permettant d'analyser les données enregistrées lors de la mise en œuvre des protocoles de single et multiple-aliquot.

3.4.4 Incertitudes sur la paléodose

Pour le protocole de multiple-aliquot mis en œuvre au LPC pour l'exploitation de la TL rouge et de la TL bleue des grains de quartz, l'incertitude associée à la paléodose comprend une incertitude statistique sur les mesures de l'ordre de 2 à 10% selon les échantillons, à laquelle s'ajoute une incertitude systématique concernant la méthode numérique employée, évaluée à 7% (Sanzelle et al., 1996).

Pour le protocole de multiple-aliquot utilisé au LSCE pour la détermination de la paléodose des galets de quartz, l'erreur sur P comporte une incertitude statistique de l'ordre de 2 à 6 % selon les échantillons (reproductibilité des mesures) et une incertitude systématique liée au choix de la fonction mathématique utilisée pour représenter la croissance des signaux de TL et à leur extrapolation (variable selon les échantillons, entre 2 et 10%).

Concernant le protocole SAR, aussi bien en TL qu'en OSL, la détermination de P a été réalisée indépendamment sur une douzaine d'aliquotes de l'échantillon de quartz considéré. La valeur de P étant obtenue par interpolation, l'incertitude associée à chacune de ces déterminations est faible (1 à 2%). Nous considérerons donc l'erreur statistique sur leur moyenne. Elle correspond à l'écart-type de la distribution des paléodoses individuelles.

Pour chacun des protocoles, l'incertitude sur la paléodose comporte également une erreur systématique liée à la calibration des sources radioactives et estimée à 2%.

CHAPITRE 4 :
DÉTERMINATION DE LA DOSE D'IRRADIATION
ANNUELLE

4.1 Introduction

Les méthodes de datation par la luminescence requièrent, outre la détermination de la paléodose, l'estimation de la dose d'irradiation annuelle reçue par les minéraux luminescents depuis leur remise à zéro. La dose annuelle est due, pour sa plus grande part, aux rayonnements émis par les éléments radioactifs présents dans l'environnement terrestre. Il s'agit principalement :

- des radioéléments de la famille de l'uranium 238 et de celle de l'uranium 235 (^{238}U et ^{235}U représentent respectivement 99,28% et 0,72% en masse de l'uranium naturel). Ils sont émetteurs α , β et γ .
- des radioéléments de la famille du thorium 232. Ils sont émetteurs α , β et γ .
- du potassium 40, émetteur β et γ et qui représente 0,0117% de la composition isotopique du potassium naturel.

Les chaînes de désintégration radioactives de ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th sont données en annexe 1. La contribution du rubidium 87, émetteur β , à la dose est quant à elle faible, (<1% de la dose totale) et est donc souvent négligée. Le rayonnement cosmique formé, à basse altitude, de particules de haute énergie (muons), intervient également, mais à un niveau assez faible (<10% du débit annuel total). Il dépend de la profondeur d'enfouissement de l'échantillon, de l'altitude du site et de sa latitude géomagnétique.

Le pouvoir de pénétration des rayonnements dans la matière condensée, c'est-à-dire la distance sur laquelle ils perdent leur énergie, est très variable : il est de quelques dizaines de micromètres pour les α et de 2-3 millimètres pour les β . Quant aux rayonnements γ , plusieurs dizaines de centimètres sont nécessaires pour atténuer presque complètement leur flux.

4.2 Les débits de dose

4.2.1 Expression générale des débits de dose

La dose correspond à l'énergie déposée par irradiation par les particules lors de leur interaction avec la matière. Elle est exprimée en Grays (unité : Gy) et $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J.kg}^{-1}$.

Il est d'usage de considérer séparément les débits de dose délivrés par les trois types de particules, à savoir D_α , D_β et D_γ , qui sont calculables à partir des teneurs en uranium [U], thorium [Th] et potassium [K] du milieu.

Ils s'expriment ainsi :

$$\text{Dose } \alpha : \quad D_{\alpha} = D_{\alpha U} \times [U] + D_{\alpha Th} \times [Th] \quad (4.1)$$

$$\text{Dose } \beta : \quad D_{\beta} = D_{\beta U} \times [U] + D_{\beta Th} \times [Th] + D_{\beta K} \times [K] \quad (4.2)$$

$$\text{Dose } \gamma : \quad D_{\gamma} = D_{\gamma U} \times [U] + D_{\gamma Th} \times [Th] + D_{\gamma K} \times [K] \quad (4.3)$$

où les coefficients $D_{\alpha i}$, $D_{\beta i}$ et $D_{\gamma i}$ sont les débits de dose spécifiques associés à chaque type de rayonnement, pour les familles de l'uranium et du thorium et le potassium (Tableau 4.1), l'indice i faisant référence au radioélément considéré (U, Th ou K).

En géochimie, il est d'usage de donner la teneur en K_2O plutôt qu'en K, [K] s'obtenant en multipliant $[K_2O]$ par le coefficient 0,83.

Radioélément		U	Th	K_2O
Débit de dose spécifique ($mGy.an^{-1}$)	Alpha	2,78	0,732	-
	Bêta	0,146	0,273	0,649
	Gamma	0,113	0,0476	0,202

Tableau 4.1 : Débits de dose spécifiques exprimés en $mGy.an^{-1}$ pour 1 ppm d'uranium naturel, 1 ppm de thorium et 1 % de K_2O (d'après Adamiec et Aitken, 1998).

4.2.2 Efficacité relative des particules α

L'efficacité des particules α à produire de la luminescence par unité de dose absorbée est faible par rapport à celle des β et γ (environ 10%). Cette différence s'explique par la distribution spatiale de l'énergie déposée par le rayonnement (Montret-Brugerolle, 1980) : les particules α présentent une forte densité de dépôt d'énergie sur une faible distance, ce qui conduit à une saturation des phénomènes physiques liés à la luminescence. En supposant un coefficient d'efficacité des α égal à 0,1 (Aitken, 1985), la formule (4.1) donnant le débit de dose D_{α} devient donc :

$$D_{\alpha eq\beta} = 0,1 \times (2,78 \times [U] + 0,732 \times [Th]) \quad (4.4)$$

pour des concentrations en U et Th exprimées en ppm et $D_{\alpha eq\beta}$ en $mGy.an^{-1}$.

$D_{\alpha eq\beta}$ correspond au débit de dose β qui induirait une luminescence égale à celle induite par D_{α} .

4.2.3 Influence de la taille des matériaux datés

Dans ce travail, nous avons étudié deux types de support : des galets de quartz, de dimensions centimétriques, ainsi que des grains de quartz, d'un diamètre de l'ordre de la centaine de micromètres. Ces différences notables de taille nous conduisent à évaluer séparément les débits de dose pour chaque type de support étudié.

De plus, il est d'usage de distinguer deux composantes dans la dose annuelle pour chacun de ces supports :

- celle d'origine externe, qui provient de son environnement,
- celle d'origine interne, dont la source est le support lui-même.

4.3 Cas des grains de quartz

4.3.1 Atténuation due à la taille des grains

En raison des dimensions typiques des grains analysés (~100 μm), seule une fraction de l'énergie transportée par les particules α et β est déposée dans les grains. Brennan et al. (1991) ont évalué les fractions de dose déposées par les particules α pour des grains sphériques et différentes granulométries, sous la forme de coefficients χ_i , l'indice i faisant référence au radioélément considéré (U, Th ou K).

Des coefficients identiques ont également été calculés pour les β par Mejdahl (1979). Cette étude a ensuite été étendue à d'autres formes de grains par Faïn et al. (1999b), qui ont montré que les facteurs d'atténuation dépendaient peu de la forme du grain, tant que la dimension de ce dernier ne dépassait pas le millimètre. Les valeurs des χ_i correspondant aux fractions granulométriques étudiées dans ce travail ont été obtenues par interpolation des valeurs publiées par ces auteurs.

4.3.2 Dose interne

4.3.2.1 Évaluation des teneurs en radioéléments des grains de quartz

On suppose généralement que le quartz est exempt de radioactivité (Mejdahl, 1987 ; Grün et Fenton, 1990). La dose interne est donc *a priori* négligeable devant celle de la matrice. Cette hypothèse étant toutefois plus ou moins valide selon l'origine du quartz et la nature de la matrice, nous souhaitons la vérifier pour des grains de quartz présents dans des sédiments cuits de la Chaîne des Puys. Pour cela, nous avons extrait des grains de ce minéral

de granulométrie 315-500 μm de l'échantillon C396 et de granulométrie 850-1000 μm de l'échantillon C397bis, puis nous les avons broyés en une poudre très fine ($< 50 \mu\text{m}$). Les teneurs en radioéléments de C396 ont été mesurées par spectrométrie gamma à haute résolution au LPC et l'analyse des éléments traces de C397bis a été réalisée par ICP-MS au Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques de Vandoeuvre-lès-Nancy. Les résultats obtenus (Tableau 4.2) ont confirmé la très faible teneur des quartz en radioéléments.

Référence de l'échantillon	U (ppm)	Th (ppm)	K ₂ O (%)
C396	0,39 \pm 0,04	1,40 \pm 0,15	0,08 \pm 0,02
C397bis	0,20 \pm 0,02	0,88 \pm 0,05	- ⁽¹⁾

Tableau 4.2 : Teneurs en radioéléments de deux échantillons de quartz de la Chaîne des Puys. Les teneurs de l'échantillon C396 ont été déterminées par spectrométrie gamma à haute résolution et celles de l'échantillon C397bis par ICP-MS.

⁽¹⁾ L'analyse des majeurs de C397bis n'a pas été réalisée, c'est pourquoi nous ne disposons pas de sa teneur en K₂O.

La révélation d'un détecteur solide de traces nucléaires LR115 (voir paragraphe 4.4.2.2) qui avait été placé en contact avec une couche de poudre de quartz a mis en évidence le fait que leur radioactivité vient de quelques points fortement radioactifs dispersés dans une matrice (en l'occurrence le quartz) qui l'est très peu. Par ailleurs, l'analyse des éléments traces dans le quartz de C397bis par ICP-MS a mis en évidence la présence de zirconium, ce qui suggère que les émetteurs α proviennent d'éléments radioactifs présents dans des grains de zircon en inclusion dans les grains de quartz ou accolés à ces derniers.

4.3.2.2 Estimation de la dose interne

Du fait de la dimension réduite des grains étudiés dans ce travail et du parcours des particules, nous avons négligé la contribution des β et γ à la dose annuelle interne des grains de quartz. Nous avons essayé d'estimer l'ordre de grandeur de la contribution des particules α à cette composante. En considérant la formule 4.4, l'application numérique conduit respectivement à une dose annuelle α interne de 0,21 \pm 0,02 mGy.an⁻¹ et de 0,12 \pm 0,01 mGy.an⁻¹ pour les grains de quartz extraits des échantillons C396 et C397bis. Cette valeur correspond à un débit de dose α maximal, puisque nous avons négligé les coefficients d'atténuation due à la taille des grains de quartz. Cette contribution, rarement bien connue, est très faible par rapport à la dose annuelle totale et sera négligée.

4.3.3 Dose externe

Les grains de quartz sont également soumis aux rayonnements provenant de leur environnement immédiat. Cependant, comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 3, l'attaque énergétique des grains de quartz à l'acide fluorhydrique permet d'enlever la couche superficielle des grains, supprimant ainsi la plus grande partie de la couche irradiée par les particules α émises par la matrice. La composante externe de la dose est donc constituée des fractions β et γ , auxquelles s'ajoute la contribution des rayons cosmiques.

4.3.3.1 Spectrométrie gamma à haute résolution

La spectrométrie gamma à haute résolution a été mise en œuvre pour déterminer les concentrations en radionucléides de la matrice (cf. annexe 2) dans laquelle étaient disséminés les grains de quartz. La mesure est réalisée au laboratoire sur un échantillon de sédiment de faible masse (5 à 8 g), séché à 110°C pendant 16 h pour ramener la mesure à un milieu « sec » par convention, broyé à moins de 100 μm et conditionné dans un tube hermétique en PETP (Polyethylene Terephthalate). Ce matériau empêche les pertes de radon ^{222}Rn , élément de période très courte (3,8 j). Un délai de quinze jours est respecté entre la mise en tube et la mesure afin d'assurer l'équilibre radioactif entre ce gaz et ses descendants, étant donné que nous nous intéressons à tous les éléments de la chaîne, y compris les post-radon.

Le détecteur contenant l'échantillon est placé dans une enceinte en plomb ayant une faible activité afin de s'affranchir de la contribution des rayons γ de l'environnement. Les photons γ produits lors de la désintégration des éléments U, Th et K sont détectés par un cristal de germanium, convertis en impulsions électriques, puis traités par une électronique appropriée. Un analyseur sépare les impulsions en fonction de leur amplitude, qui dépend de l'énergie des photons. Le spectre d'émission du rayonnement gamma est ainsi constitué de raies. L'abscisse de chaque raie, qui correspond à une énergie, est caractéristique de l'isotope, tandis que son intensité est proportionnelle à la concentration de cet isotope. La détermination des concentrations des différents radioéléments est réalisée par comparaison des intensités des raies avec celles obtenues pour des standards.

Les raies étudiées en routine sont :

- Pour ^{40}K : 1460,83 keV
- Pour la série de l'uranium : 46,539 keV (^{210}Pb), 63,29 keV (^{234}Th), 186 keV (convolution des raies à 187,715 keV (^{235}U) et à 186,21 keV (^{226}Ra)), 205,31 keV (^{235}U , pour les échantillons très actifs uniquement), 295,207 et 351,925 keV (^{214}Pb), 609,318 keV (^{214}Bi)

- Pour la série du thorium : 238,63 keV (^{212}Pb), 338,4 keV (^{228}Ac), 583,191 keV (^{208}Tl), 911,07 keV (^{228}Ac)

Le spectromètre gamma permet ainsi d'obtenir séparément les teneurs en uranium, thorium et potassium de l'échantillon. Il permet également d'étudier l'état d'équilibre des différents descendants de l'uranium 238, notamment le radium 226 et le plomb 210 descendant du radon 222, ce qui rend possible l'évaluation le degré de fuite de ce dernier. Notons, pour terminer, que ce système exige un refroidissement à l'azote liquide (-196°C) et que cette technique impose des comptages longs (4 à 6 jours), afin de disposer d'une statistique de comptage suffisante.

4.3.3.2 Prise en compte de l'humidité

Les mesures de spectrométrie gamma sont réalisées au laboratoire à partir d'échantillons secs, alors que, dans les conditions de stratigraphie réelles, ces derniers contiennent toujours une proportion non négligeable d'humidité. Cette eau présente dans le sédiment absorbe une partie des radiations ionisantes et, surtout, sa présence a pour effet de diminuer l'activité spécifique du milieu. Ces phénomènes se traduisent par une atténuation des différentes doses (α , β et γ) reçues par les grains de quartz. Une correction est donc indispensable.

La procédure expérimentale permettant de déterminer la teneur relative en eau h dans un échantillon est la suivante : une portion de l'échantillon brut est pesée dans les heures qui suivent le prélèvement, puis elle est mise au four à 110°C jusqu'à séchage complet. Cette portion est ensuite repesée. Par convention, l'eau qui est éliminée à 110°C est appelée eau libre, par opposition à l'eau liée qui part à une température beaucoup plus élevée. h s'obtient alors en faisant le rapport de la masse d'eau libre sur la masse du même échantillon avant séchage.

4.3.3.3 Prise en compte de la différence de composition entre la matrice et le quartz

Dans le cadre de ce travail, la valeur de la dose annuelle à déterminer est celle déposée dans le minéral luminescent, à savoir le quartz. Or, les doses calculables à partir des expressions données précédemment correspondent à la matrice qui, généralement, ne contient qu'une faible proportion de quartz. Il est donc nécessaire de corriger la valeur de la dose par un facteur q tenant compte de la différence de composition entre le quartz et la matrice. Ce facteur q s'obtient à l'aide de la formule suivante :

$$q = \frac{\langle \text{TEL}(\text{quartz}) \rangle}{\langle \text{TEL}(\text{matrice humide}) \rangle}$$

soit :
$$q = \frac{\langle \text{TEL}(\text{SiO}_2) \rangle}{\sum \rho_i \langle \text{TEL}_i \rangle} \quad (4.5)$$

où ρ_i est la teneur en élément majeur i dans l'échantillon (avec $\sum \rho_i = 1$) et le terme $\langle \text{TEL}_i \rangle$ est le transfert d'énergie linéique moyen pour les électrons déposant la dose dans l'élément i considéré. La valeur du TEL varie en fait avec l'énergie de la particule, mais le rapport des TEL pour deux milieux différents en dépend relativement peu.

Les valeurs des $\langle \text{TEL}_i \rangle$ pour les principaux oxydes entrant dans la composition des échantillons ont été calculées par Pilleyre (1991) et sont mentionnées dans le tableau 4.3.

Élément i	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	TiO ₂	MnO	H ₂ O
$\langle \text{TEL}_i \rangle$ (en MeV.g ⁻¹ .cm ⁻²)	1,7112	1,6737	1,5352	1,6582	1,6958	1,6514	1,6117	1,6886	1,5798	1,4906	2,0257

Tableau 4.3 : Valeurs des TEL pour les principaux oxydes entrant dans la composition des échantillons.

La composition en éléments majeurs de nos échantillons, qui a été déterminée par ICP-AES au Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques de Vandoeuvre-lès-Nancy, est donnée en annexe 2.

4.3.3.4 Prise en compte de l'atténuation due au traitement chimique

L'attaque énergétique des grains de quartz à l'acide fluorhydrique supprimant la couche superficielle des grains, la dose annuelle β déterminée à partir des mesures de spectrométrie gamma doit donc être corrigée. Pratiquement, l'épaisseur de quartz dissoute dépend fortement de l'origine des grains, de la concentration de l'acide et de la durée du traitement, et elle est donc difficile à estimer. Selon une étude de Bell (1979) sur des grains de quartz de 100 μm , une attaque d'une heure à HF concentré réduit leur diamètre de 9 μm . Les facteurs d'atténuation calculés par cet auteur sont 0,915 pour la série du thorium et 0,940 pour la série de l'uranium. L'atténuation est négligeable pour le potassium 40. Bien que les calculs de paléodose aient porté sur des granulométries un peu plus élevées dans ce travail, nous retiendrons ces coefficients.

4.3.3.5 Formules corrigées

Compte tenu des facteurs précédemment cités, les formules permettant d'obtenir les débits de dose contribuant à la dose externe des grains de quartz s'expriment comme suit :

Dose β externe :

$$D_{\beta_{ext}} = q \times (1-h) \times \{0,146 \times 0,940 \times \chi_U \times [U] + 0,0273 \times 0,915 \times \chi_{Th} \times [Th] + 0,649 \times \chi_{K_2O} \times [K_2O]\} \quad (4.6)$$

Dose γ externe :

$$D_{\gamma_{ext}} = q \times (1-h) \times \{0,113 \times [U] + 0,0476 \times [Th] + 0,202 \times [K_2O]\} \quad (4.7)$$

dans lesquelles les concentrations en U et Th sont exprimées en ppm, $[K_2O]$ en % et $D_{\beta_{ext}}$ et $D_{\gamma_{ext}}$ en $mGy.an^{-1}$.

La contribution du rayonnement cosmique au débit de dose est évaluée à partir de la formule suivante, proposée par Prescott et Hutton (1988) :

$$D_{cosmique} = 0,21 \times \exp(-0,070 \times x + 0,0005 \times x^2) \quad (4.8)$$

où x , qui correspond au produit de la densité du milieu par la profondeur du prélèvement, est exprimé en $hg.cm^{-2}$ et $D_{cosmique}$ en $mGy.an^{-1}$.

Cette formule est valable au niveau de la mer, pour une latitude géomagnétique de 55° et pour des profondeurs comprises entre 1,5 et $50 hg.cm^{-2}$. Des formules complémentaires permettent de prendre en compte l'altitude et la latitude géomagnétique du site étudié (Prescott et Stephan (1982)) et des profondeurs plus élevées (Prescott et Hutton (1994)).

4.4 Cas des galets de quartz

4.4.1 Caractérisation des galets

La nature pétrographique des galets sélectionnés pour ce travail a été déterminée par Pierre Boivin (Laboratoire Magmas et Volcans), par observation de lames minces. Ces analyses, dont les résultats détaillés sont donnés en annexe 3, ont montré que ces galets étaient des quartz filoniens ou hydrothermaux et qu'ils contenaient parfois des traces de minéraux autres que du quartz (feldspaths, biotite, zircons ...), ce qui leur confère une

certaine inhomogénéité. Des minéraux tels que les feldspaths et zircons sont susceptibles d'introduire de la luminescence parasite et, de plus, les zircons contiennent souvent plusieurs dizaines de ppm d'uranium.

4.4.2 Dose interne

4.4.2.1 Activation neutronique

Les concentrations en radioéléments dans les galets ont été déterminées par activation neutronique, sur la partie centrale de l'échantillon, broyée jusqu'à une granulométrie inférieure à 160 μm . Cette technique très sensible a été mise en œuvre au laboratoire Pierre Süe (Saclay) par Jean-Louis Joron. Elle consiste à rendre radioactifs les éléments d'une substance en les soumettant à un flux de neutrons thermiques ou épithermiques provenant respectivement des réacteurs nucléaires Orphée ou Osiris de Saclay. Les rayons gamma émis par les noyaux fils sont ensuite mesurés par spectrométrie gamma à haute résolution et les teneurs en radioélément déterminées par comparaison avec celles d'étalons de composition connue, irradiés simultanément.

Les teneurs en radionucléides des galets sont données dans le tableau 4.4. Les concentrations en U et Th se sont révélées très faibles (respectivement de l'ordre de 0,05 et 0,1 ppm), tandis que celles en K varient d'un échantillon à l'autre (de quelques dizaines à quelques centaines de ppm).

L'analyse par activation neutronique nécessite une très faible quantité de matière (~100 mg), ce qui constitue un avantage important pour déterminer les teneurs en radioéléments d'échantillons de petite taille, tels que les galets étudiés dans ce travail. Par contre, pour l'évaluation de la dose externe provenant de l'environnement de ces galets ou de celui des grains de quartz (cas étudié précédemment), se pose le problème de la représentativité d'une aliquote de 100 mg par rapport à l'ensemble de la matrice sédimentaire. C'est pourquoi nous avons alors préféré mettre en œuvre la spectrométrie gamma à haute résolution et réaliser des mesures sur quelques grammes de sédiments. En outre, concernant la famille de l'uranium, l'analyse par activation neutronique donne uniquement des informations sur l'élément ^{238}U mais elle ne permet pas d'étudier l'état d'équilibre de ses descendants.

Référence du galet	U (ppm)	Th (ppm)	K (ppm)
C404-1	0,007	0,0087	26
C404-6	0,16	0,14	652
C404-8	0,042	0,16	2152
C404-9	0,054	0,12	495
C404-10	0,068	0,096	564
C404-11	0,053	0,24	1116
C404-12	0,094	0,006	90

Tableau 4.4 : Teneurs en radioéléments des galets étudiés dans ce travail déterminées par activation neutronique. L'erreur totale sur ces données est estimée à $\pm 10\%$ et prend en compte l'erreur statistique de mesure et l'incertitude sur les teneurs en radioéléments des standards utilisés.

4.4.2.2 Détecteurs solides de traces nucléaires

Pour révéler la présence éventuelle de radioéléments émetteurs α dans les galets de quartz et observer leur distribution spatiale, nous avons utilisé un détecteur solide de traces nucléaires. Il s'agit du film LR115 fabriqué par Kodak et constitué d'une couche de nitrocellulose teintée en rouge, de 12 μm d'épaisseur, sur un support inerte de 100 μm en polyester. Une section polie de galet a été placée à son contact. Après quelques mois d'exposition, le film subit une attaque dans un bain de soude à 2,5N, thermostaté à 60°C pendant 2 h. Ce traitement chimique permet la révélation de micro-trous, de 1 à 15 μm de diamètre, situés dans la couche de nitrate de cellulose du détecteur et qui correspondent au passage des particules α . Ces traces sont observables au microscope ou sur un agrandissement photo. Il est aussi possible de scanner le film à l'aide d'un scanner à haute résolution et de dénombrer les traces avec un logiciel approprié.

La révélation des films LR115 a confirmé la faible teneur des galets en radionucléides et a montré que leur répartition était homogène au sein de ces fragments de roche. Ce sont principalement les zircons qui sont responsables de la présence de points chauds sur ces films.

4.4.2.3 Estimation de la dose interne

Compte tenu des dimensions des galets étudiés (Tableau 4.5), l'atténuation des doses α et β internes est négligeable. Un facteur de forme **F** est par contre introduit pour tenir compte du fait que le parcours des γ est bien supérieur aux dimensions des galets et que ces rayonnement ne déposent donc qu'une fraction de leur énergie dans ces échantillons (Aitken, 1985).

Échantillon	Masse (g)	Épaisseur (cm)	Longueur (cm)	Largeur (cm)	Facteur de forme F
C404-1	77	2,5	6	3,8	0,896
C404-6	124	3	6,5	3,8	0,850
C404-8	93	5,5	4	3	0,870
C404-9	68	4,5	3,5	3	0,868
C404-10	15	2,5	4	3,3	0,932
C404-11	42	2,8	2,6	4,5	0,911
C404-12	38	2,5	4	3	0,904

Tableau 4.5 : Caractéristiques des galets permettant le calcul du facteur de forme.

Le débit de dose α interne s'obtient avec la formule (4.4) et les débits de dose β et γ avec les formules suivantes :

Dose β interne :

$$D_{\beta_{int}} = 0,146 \times [U] + 0,0273 \times [Th] + 0,649 \times [K_2O] \quad (4.9)$$

Dose γ interne :

$$D_{\gamma_{int}} = (1 - F) \times \{0,113 \times [U] + 0,0476 \times [Th] + 0,202 \times [K_2O]\} \quad (4.10)$$

La dose annuelle interne totale pour le galet C404-6, par exemple, s'élève à $(0,14 \pm 0,02)$ mGy.an⁻¹. La contribution de la dose annuelle interne à la dose annuelle totale est donc très faible.

4.4.3 Dose externe

Les mesures de luminescence sont réalisées sur le cœur du galet, après élimination par sciage de la partie superficielle (au moins 2 mm) irradiée par les α et β émis par la matrice. La dose externe comprend donc les contributions des γ provenant de la matrice et des cosmiques.

Comme dans le cas des grains de quartz, la dose γ est calculable à partir des concentrations moyennes du milieu en radioéléments. Des corrections de la teneur en humidité du site et de la différence de composition entre le quartz et le sédiment sont nécessaires et s'effectuent respectivement par l'intermédiaire des facteurs **h** et **q** définis précédemment. De plus, un facteur de forme **F** est introduit pour tenir compte de l'atténuation des γ à la traversée du galet. La dose γ externe s'obtient donc avec la formule suivante :

$$D_{\gamma_{ext}} = q \times (1-h) \times F \times \{0,113 \times [U] + 0,0476 \times [Th] + 0,202 \times [K_2O]\} \quad (4.11)$$

dans laquelle les concentrations en U et Th sont exprimées en ppm et $[K_2O]$ en % et $D_{\gamma_{ext}}$ en $mGy \cdot an^{-1}$.

La dose cosmique est évaluée par ailleurs à partir des formules proposées par Prescott et Hutton (1988, 1994) et Prescott et Stephan (1982).

4.5 Détermination *in situ* de la dose annuelle externe gamma et cosmique

4.5.1 Spectrométrie gamma de terrain

La dose annuelle externe gamma peut être déterminée par des mesures de radioactivité réalisées sur le site même du prélèvement de l'échantillon, à l'aide d'un spectromètre de terrain. Cet appareil permet d'enregistrer et d'analyser l'énergie déposée par les rayons γ dans le milieu. Il comporte une sonde cylindrique, reliée par un câble à un analyseur et contenant un scintillateur constitué d'un cristal NaI. La sonde est introduite dans le trou même où a été prélevé l'échantillon à dater, afin de réaliser des mesures dans des conditions aussi proches que possible de celles où ce dernier se trouvait lors de son séjour sur le site. Cette méthode permet d'obtenir en un temps bref (de quelques dizaines de minutes à quelques heures) une estimation de la dose annuelle gamma, et éventuellement de la dose cosmique selon le réglage de l'appareil (N. Mercier, com. pers.).

4.5.2 Dosimètres thermoluminescents

Une méthode alternative à la gammamétrie de terrain permet de déterminer la dose γ externe et la dose cosmique simultanément. Il s'agit de la dosimétrie TL de site, qui présente l'intérêt d'être peu dépendante des conditions d'équilibre radioactif et de tenir compte de l'état d'homogénéité et de la composition du sol. Cette technique ne donne aucune information sur l'état d'équilibre des familles radioactives, mais ceci est sans conséquence sur le résultat. Elle est aisée à mettre en œuvre et ne demande que des forages de faible diamètre (de l'ordre de 2 à 3 cm). Nous décrivons d'abord cette méthode telle qu'elle est mise en œuvre dans la majorité des laboratoires, puis nous détaillons une technique reposant sur l'emploi de milieux naturels de référence qui a été mise au point et adoptée par l'équipe de datation par la luminescence du LPC.

4.5.2.1 Méthode « traditionnelle »

La technique consiste à disposer, à l'emplacement de l'échantillon prélevé, une capsule étanche contenant un matériau thermoluminescent (« phosphore ») qui a auparavant été remis à zéro par un chauffage approprié. A l'issue d'un laps de temps qui peut varier de quelques semaines à un ou deux ans, la capsule est retirée. La TL du phosphore est ensuite lue dans les délais les plus brefs et convertie en unités de dose par l'intermédiaire d'un auto-étalonnage basé sur l'emploi d'une source de rayonnement artificiel calibrée. Connaissant la durée d'exposition, il est alors possible d'en déduire le débit de dose moyen au point de mesure, en $\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$, par exemple. Il faut cependant garder à l'esprit que la dose mesurée ainsi dépendra des conditions de l'expérience, notamment des paramètres suivants :

- la nature du phosphore,
- la nature et l'épaisseur des enveloppes protectrices,
- les proportions des différents radioéléments naturels sur site,
- la nature du milieu et sa teneur en eau,
- la méthode de mesure.

Dans le cadre de la datation par la luminescence, nous cherchons à évaluer la dose annuelle [gamma + cosmiques] déposée dans un grain de quartz. Afin de ne pas comptabiliser la composante β provenant des radioéléments du sédiment, la capsule est généralement faite en métal cuivreux ou ferreux, avec une épaisseur de paroi de l'ordre du millimètre. Mais ceci a aussi pour conséquence un affaiblissement de la composante gamma de faible énergie, dont il faut tenir compte par la suite.

Finalement, la conversion entre la dose recherchée et le résultat brut de la mesure est faisable, moyennant une bonne connaissance de tous les facteurs à prendre en compte, et de leurs effets quantitatifs respectifs.

A l'origine, la technique a été mise en œuvre avec le fluorure de calcium (CaF_2) et le sulfate de calcium (CaSO_4) comme phosphores. Ces milieux, qui sont encore utilisés, doivent être dopés pour augmenter leur sensibilité TL, par exemple au Mn ou au Dy pour CaF_2 , au Dy pour CaSO_4 .

Pour un flux Φ de photons d'énergie donnée, E , l'énergie moyenne déposée dans un élément de volume d'épaisseur dx (en g.cm^{-2}) est :

$$dE = \Phi \cdot E \cdot \mu_a \cdot dx \quad (4.12)$$

où μ_a est le coefficient massique d'absorption dans le milieu considéré (en $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$).

Cette absorption se fait par effet photoélectrique (τ) et par effet Compton (σ_a) :

$$\mu_a(E) = \tau(E) + \sigma_a(E) \quad (4.13)$$

Le rapport ϵ des doses déposées dans le phosphore et dans le milieu par un spectre donné $\Phi(E)$ de rayons gamma serait la suivante, si l'atténuation par la paroi de la capsule était négligeable :

$$\epsilon = \frac{\int \Phi(E) \cdot \mu_a(E)_{\text{phosphore}} \cdot E \cdot dE}{\int \Phi(E) \cdot \mu_a(E)_{\text{milieu}} \cdot E \cdot dE} \quad (4.14)$$

En réalité, pour tenir compte de l'atténuation du spectre par l'enveloppe du dosimètre (épaisseur x , en g.cm^{-2}), la relation s'écrit :

$$\epsilon = \frac{\mu_{a\text{phosphore}} \cdot \int \Phi(E) \cdot e^{-\mu(E) \cdot x} \cdot E \cdot dE}{\int \Phi(E) \cdot \mu_a(E)_{\text{milieu}} \cdot E \cdot dE} \quad (4.15)$$

où $\mu(E)$ est le coefficient d'absorption massique pour l'enveloppe (en $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$). En toute rigueur, il faudrait tenir compte du spectre de rayons gamma secondaires issus d'interactions Compton dans les parois du conteneur mais, en pratique, la différence est inférieure à 1% (Faïn et al., 1985).

Or, non seulement l'atténuation par l'enveloppe est importante (5 à 15 % suivant les cas), mais, de plus, les coefficients d'absorption massique dans le CaSO_4 ($Z = 11,3$) et dans le CaF_2 ($Z = 12,7$) sont différents de ceux du quartz ($Z = 10$). En effet, ils ont un Z moyen (paramètre qui contrôle l'absorption massique) plus élevé. Il en résulte que ϵ est variable et peut être significativement différent de 1. Pour calculer ce terme, il est donc nécessaire de connaître la nature du milieu et le spectre gamma dans ce milieu, ce qui normalement n'est pas le cas. Il faut, en outre, disposer d'un code de calcul approprié. Des coefficients valables pour un sol « moyen » et un spectre « standard » ont été proposés par différents auteurs (Valladas, 1982, Faïn et al., 1985), mais leur usage à un cas particulier est donc entaché d'une incertitude.

Pour diminuer les difficultés, un grand nombre de laboratoires ont adopté l'alumine (Al_2O_3) depuis que ses propriétés de dosimétrie TL (stabilité et sensibilité, notamment) ont été grandement améliorées par la mise au point d'une technique de dopage au carbone, par Akselrod (1990). En effet, l'alumine a un numéro atomique moyen ($Z = 10$) égal à celui du quartz, ce qui permet de minimiser les écarts de réponse à l'irradiation entre ces différents milieux.

Il demeure quand même le problème de l'atténuation par l'enveloppe. Pour le CaSO_4 et le CaF_2 , l'atténuation de la composante gamma de basse énergie est intéressante car c'est précisément pour les basses énergies que la différence de dose absorbée est la plus grande entre le quartz et le phosphore (effet photoélectrique dominant, croissant avec Z). Avec l'alumine, il suffit que seules les particules β soient arrêtées, donc l'enveloppe peut être mince et, partant, la correction d'atténuation des gammas sera minime.

D'autres corrections sont à faire, pour passer de la dose mesurée à la dose annuelle recherchée : une correction d'auto-dose et une correction de fading. La première est relative au fait que certains phosphores contiennent une petite quantité de radioéléments, suffisante pour contribuer un peu à la dose accumulée. La seconde correspond, au contraire, à une certaine perte de mémoire par fading. Les laboratoires habitués à travailler avec un matériau donné connaissent les coefficients à appliquer pour corriger ces deux problèmes (N. Mercier, com. pers.).

Par ailleurs, certains phosphores présentent un signal parasite, non TL, qui peut s'ajouter au signal TL. Ce phénomène est lié à des effets de surface et peut être en grande partie corrigé par un traitement chimique préalable à la mesure, complété par l'usage d'azote très pur lors de la mesure.

Il reste à évoquer une dernière source d'erreur : la conversion de la TL (émission lumineuse) en termes de dose (en Gy). Les techniques adoptées sont toutes apparentées à celles mises en œuvre pour la mesure de la paléodose d'un échantillon à dater et décrites dans le chapitre 3 et sont, de ce fait, sujettes aux mêmes incertitudes. Rappelons que celles-ci sont liées d'une part à l'équivalence supposée entre l'irradiation avec une source naturelle et une source artificielle et d'autre part aux variations de sensibilité d'un phosphore donné avec l'irradiation et le chauffage. Pour ces derniers points, signalons tout de même que, d'une façon générale, les dosimètres TL ont un comportement nettement plus simple que le quartz. C'est en partie dû au fait qu'ils sont utilisés dans un domaine de doses très faibles (de l'ordre de quelques mGy au maximum).

Quand on fait le bilan, on pourrait arriver à la conclusion que la dosimétrie par TL n'est pas une technique très précise. En réalité, si tous les problèmes potentiels sont bien réels, ils sont néanmoins bien contrôlés actuellement, de sorte que cette technique permet de faire de la dosimétrie de terrain avec une incertitude globale qui est généralement de quelques pourcents. Ceci est d'autant plus vrai que l'alumine dopée au carbone ($Al_2O_3: C$) présente, par rapport à ces problèmes, d'excellentes performances (*e.g.*, Soumana et al., 1994, Bøtter-Jensen et al., 1997). Cette incertitude reste, de toutes façons, significativement inférieure à l'incertitude qu'il y a à extrapoler la dose mesurée en quelques mois ou en quelques années à la dose moyenne qui a prévalu pendant toute la durée d'enfouissement d'un échantillon à dater. En outre, du fait de la petite taille des dosimètres, la dosimétrie TL présente, par rapport à la dosimétrie utilisant une sonde gamma (généralement NaI), l'intérêt d'être plus ponctuelle et de prendre en compte les variations saisonnières de la dose γ (dus aux variations d'humidité du milieu) et le rayonnement cosmique.

4.5.2.2 Méthode originale de détermination de la dose gamma et cosmique sans source de calibration artificielle

a) Principe

Dans ce contexte, une technique de dosimétrie TL reposant sur l'emploi de milieux naturels de référence a été mise au point par l'équipe du LPC. Cette technique consiste à traiter et mesurer en même temps des dosimètres disposés dans les sites à étudier et d'autres dosimètres placés en des points de référence pour lesquels le débit de dose est connu avec précision. L'évaluation de la dose reçue se fait par une simple interpolation. Les avantages attendus par rapport à des techniques plus classiques sont les suivants :

- L'utilisation d'une source radioactive calibrée n'est pas nécessaire, ce qui entraîne une économie d'argent et permet d'éviter des difficultés administratives (de plus en plus grandes actuellement).

- L'utilisation de milieux naturels pour la calibration revient à avoir des débits de dose et des spectres comparables, ce qui n'est pas le cas avec une source artificielle.

- Plusieurs des causes d'erreur citées plus haut sont les mêmes pour tous les dosimètres d'une campagne de mesures donnée (auto-dose, fading, TL parasite, méthode de mesure), de telle sorte qu'il n'est pas nécessaire d'en faire l'évaluation : la compensation est automatiquement prise en compte dans une comparaison directe.

Par contre, l'emploi de cette méthode est limité à un secteur géographique proche des points de référence et à des milieux de nature et de radioactivité comparables, ce qui est le cas dans le cadre de notre travail.

b) Description de la méthode

Les points de référence

Les points de référence ont, à l'origine, été choisis dans le but d'étalonner une sonde gamma (NaI) de terrain (Erramli, 1986, Sanzelle et al., 1988) et ils ont servi, par la suite, à différentes expériences de dosimétrie TL (Miallier et al., 1988, Soumana, 1993, Soumana et al., 1994). Les critères de choix étaient les suivants : il fallait des milieux proches, par leur composition, des milieux rencontrés dans le contexte de la datation et dans lesquels le débit de dose, constant, puisse être évalué de différentes façons. A cet effet, des roches saines, macroscopiquement homogènes (à l'échelle de quelques cm) dans un volume suffisant par rapport au parcours des gammas (soit environ 1 m^3), ont été choisies.

Au départ, afin d'introduire la sonde gamma, des forages de 70 mm de diamètre et environ 60 cm de longueur ont été effectués dans des roches en place, présentant une certaine variété de composition (Tableau 4.6) et dispersées dans un rayon de 30 km environ à partir du laboratoire (LPC). Par la suite, deux gros blocs de roche, un trachyandésite (C341, 10,5 tonnes) et un granite (C347, 9,5 tonnes) ont été acquis et déposés à proximité immédiate du laboratoire.

Référence	Localisation	Nature
LAS	Montagne de la Serre	basalte
MAZ	Mazayes	trachybasalte
CEZ	Les Cézeaux Aubière	trachybasalte
GOU	Col des Goules	trachyandésite
MPX	Montpeyroux	arkose
PEP	Pépinière de Royat	granite
LMP	La Montagne Percée	basalte
C 341	Les Cézeaux (bloc de Lemptégy)	trachybasalte
C 347	Les Cézeaux (bloc de Manson)	Granite

Tableau 4.6 : Liste des milieux de référence pour la dosimétrie de la radioactivité naturelle.

Le débit de dose dans ces différentes roches a été évalué de différentes façons (Tableau 4.7) :

- par calcul à partir de leurs teneurs en radioéléments évaluées par différentes méthodes,
- par mesure avec des sondes NaI (étalonnées ailleurs),
- par mesure avec des dosimètres.

Ces mesures ont, en partie, fait l'objet d'une intercomparaison entre différents laboratoires (Faïn et al., 1997). Des mesures complémentaires ont été effectuées principalement avec une sonde NaI étalonnée ailleurs, notamment par N. Mercier (LSCE) et P. Guibert (CRPAA, Université Bordeaux 3).

Référence	[U] (ppm)	[Th] (ppm)	²³⁰ Th/ ²³⁸ U	²²⁶ Ra/ ²³⁰ Th	[K2O] (%)	Cosmiques (μGya^{-1})	D _{ae} (μGya^{-1})
LAS	2,14 ± 0,04	7,57 ± 0,15	1	1	2,33 ± 0,02	120 ± 20	1200 ± 43
LMP	1,6 ± 0,14	5,91 ± 0,09	1	1	0,87 ± 0,03	120 ± 20	767 ± 24
MPX	1,38 ± 0,03	3,61 ± 0,2	1	1	3,08 ± 0,04	110 ± 15	1041 ± 41
MAZ	2,39 ± 0,08	8,58 ± 0,04	1	1,07	2,24 ± 0,03	200 ± 20	1346 ± 54
GOU	3,18 ± 0,12	11,95 ± 0,06	1	1,11	3,13 ± 0,04	110 ± 15	1711 ± 52
C 347	2,84 ± 0,12	4,67 ± 0,1	1	1	4,275 ± 0,1	170 ± 15	1570 ± 40
C 341	1,8 ± 0,05	6,42 ± 0,4	1,1	1	1,65 ± 0,03	170 ± 15	1030 ± 20
CEZ	2,17 ± 0,05	7,58 ± 0,10	1	1	1,91 ± 0,08	170 ± 15	1176 ± 53
PEP	5,3 ± 1,0	19 ± 2	1	1	4,55 ± 0,24	140 ± 20	2645 ± 380

Tableau 4.7 : Teneurs en radioéléments et doses annuelles dans les différents milieux de référence. D_{ae} = dose annuelle [gamma + cosmiques] dans le milieu compilée d'après des mesures in situ et les valeurs calculées d'après les teneurs en radioéléments. Les rapports tels que ²³⁰Th/²³⁸U sont des rapports d'activité. La dose annuelle cosmique est calculée d'après Prescott et Hutton (1994) et a été vérifiée par mesure avec une sonde NaI pour deux sites (C341 et C347, N. Mercier, com. pers.).

Présentation du dosimètre et étalonnage initial

Le phosphore utilisé est l'alumine dopée au carbone (Al₂O₃: C) en poudre (200-315 μm). La remise à zéro est faite par un chauffage au four à 330°C pendant une nuit. La capsule utilisée pour contenir la poudre est un tube en acier inoxydable de 1 mm d'épaisseur de paroi, 8 mm de diamètre extérieur et 9,8 mm de profondeur utile (soit 277 mm³ de volume). Sa fermeture étanche est assurée par une gaine polymère thermo-rétractable qui est scellée sur le

tube à la façon d'une papillote, par chauffage et pincement des extrémités. Enfin, le dosimètre est disposé dans un tube PVC scellé aux deux extrémités de façon étanche par chauffage et pincement, de façon à le protéger complètement et à pouvoir l'insérer facilement dans un sédiment.

Un tube contient environ 490 mg de poudre d'alumine. Comme la paroi est en acier, il se pose la question de savoir si l'équilibre électronique entre les deux milieux est réalisé (à cause des électrons secondaires issus des parois). D'après Murray (1981), cet équilibre est atteint à partir du moment où il y a plus de 100 mg de dosimètre dans le conteneur. Donc, ce ne devrait pas être un problème, d'autant moins que, l'effet étant le même dans tous les dosimètres, il ne devrait pas influencer sur le résultat final d'une méthode strictement comparative.

La première série de mesures a été effectuée sur les sites de référence seuls. Elle avait principalement pour objet de vérifier la linéarité de la TL en fonction des doses annuelles estimées préalablement (Tableau 4.7). Les dosimètres sont restés sur site durant un an exactement.

Les mesures sont effectuées dans les mêmes conditions que les mesures de paléodose sur échantillons de quartz (cf. chapitre 3) avec un filtre bleu (Leitz BG12). L'alumine présente un pic principal à 195°C (Figure 4.1).

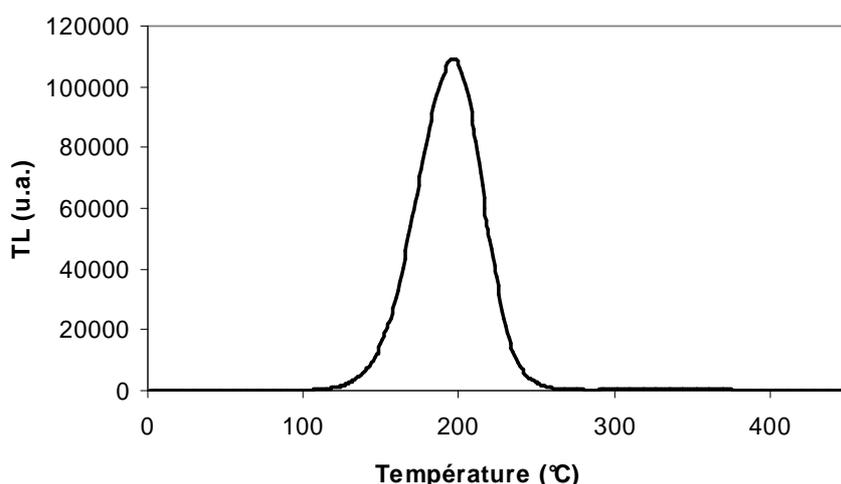


Figure 4.1 : Courbe de thermoluminescence d'une aliquote d'alumine enregistrée au cours d'une montée en température à 5°C/s (filtre bleu Schott RG610).

La figure 4.2 représente l'intensité du pic TL en fonction de la dose d'irradiation annuelle. La courbe est tracée avec les résultats bruts, sans aucune correction.

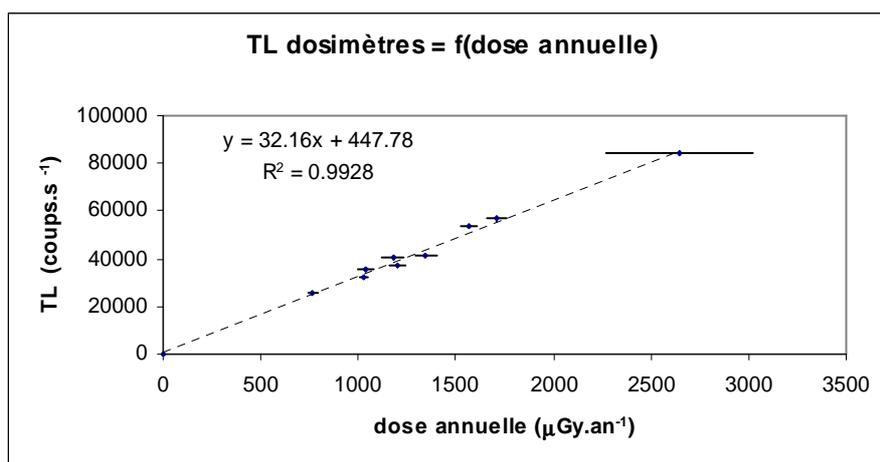


Figure 4.2 : Intensité du pic TL (coups.s⁻¹) en fonction de la dose annuelle dans le milieu (μGy.an⁻¹) pour les sites de référence. Durée d'exposition : un an. (Rq : la droite de régression ne prend pas en compte les barres d'erreur)

L'analyse des résultats montre une bonne corrélation entre le signal TL et la dose annuelle. La droite passe très près de l'origine des axes, ce qui permet de penser que les effets parasites sont faibles ou nuls.

En toute rigueur, pour que les mesures soient comparables, il faudrait les corriger en les divisant par le facteur ϵ (rapport des doses déposées, cf. équation 4.15) qui est susceptible de varier d'un milieu à l'autre. Pour les milieux considérés ici, les variations individuelles de ϵ devraient être minimales car ils ont globalement des teneurs [SiO₂ + Al₂O₃] assez comparables. Mais il faut souligner que pour des milieux très calcaires la différence par rapport à un milieu siliceux pourrait dépasser 5% (Faïn et al., 1985 ; Soumana et al., 1994).

Principe de la méthode.

En pratique, à la série d'échantillons présentée dans le paragraphe précédent était ajouté un dosimètre placé dans un milieu de radioactivité inconnue : Le Fraisse 1 (voir chapitre 5). Le report de l'intensité TL du dosimètre de ce site sur la droite de la figure 4.2 permet d'estimer la dose annuelle dans le milieu : 1,19 mGy.an⁻¹.

Il est évident que, s'il faut, pour toute série de dosimètres placés dans des sites à mesurer, placer et mesurer aussi 9 autres dosimètres de référence, c'est assez lourd (notamment en prenant en compte le trajet à parcourir pour la pose et la récupération, soit environ 120 km). Il serait donc judicieux de pouvoir réduire le nombre de sites témoins par la suite. Trois points de référence, avec une bonne dynamique de doses, devraient convenir.

Les trois points de référence retenus sont les deux blocs de roche situés aux pieds du laboratoire (C341 et C347) et le granite de la pépinière situé aux portes de Clermont (PEP). Ces points ont l'intérêt d'être très faciles d'accès et il se trouve, en outre, que la droite de régression que l'on obtient avec seulement ces trois points est parfaitement identique à la droite moyenne obtenue sur 9 points (Figure 4.3).

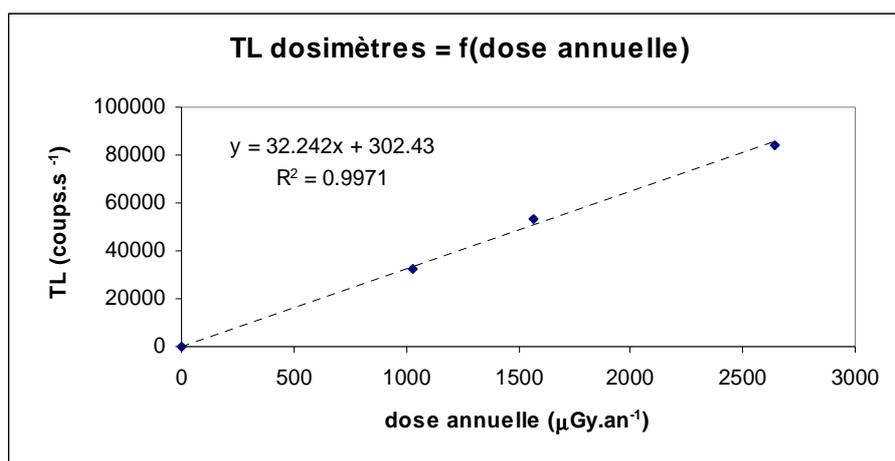


Figure 4.3 : Intensité du pic TL (coups.s^{-1}) en fonction de la dose annuelle ($\mu\text{Gy.an}^{-1}$) pour trois points seulement parmi les neufs de la figure 1.1.

Ainsi, on peut considérer ce groupe de trois points comme représentatif d'une moyenne générale et prédire qu'il donnera donc le même résultat. En effet, en utilisant ces trois points seuls, on trouve, pour le dosimètre du Fraisse1 : $1,19 \text{ mGy.an}^{-1}$

Par la suite, dans le cadre de ce travail, nous avons fait trois campagnes de déposes de dosimètres dans les trois roches de référence, en même temps que dans divers sites à dater. Ces expériences ont permis de vérifier une très bonne reproductibilité : la distribution relative des trois intensités TL reste la même (Tableau 4.8). Elle est évaluée en prenant le signal TL de la pépinière (PEP) comme référence.

Rapport considéré	Série de mesures			
	1	2	3	4
C341/PEP	$0,381 \pm 0,006$	$0,378 \pm 0,011$	$0,382 \pm 0,009$	$0,394 \pm 0,006$
C347/PEP	$0,636 \pm 0,011$	$0,633 \pm 0,025$	$0,629 \pm 0,013$	$0,646 \pm 0,009$

Tableau 4.8 : Rapports des intensités TL pour les points de référence C341 et C347 par rapport à la référence PEP pour 4 séries de mesures distinctes.

c) Discussion

Cette technique d'évaluation de la dose d'irradiation annuelle externe s'avère particulièrement fiable et facile à mettre en œuvre. Elle comprend une incertitude statistique qui dérive essentiellement de la dispersion des mesures de TL dans une série de mesures. Typiquement, avec l'alumine en poudre, on peut espérer un écart type relatif de 1,5 à 2% sur une série de 10 mesures pour un tube donné, ce qui donnera une incertitude statistique du même ordre pour l'évaluation de la dose annuelle recherchée.

L'erreur systématique comprend deux sources : l'étalonnage général et la conversion [dose déposée dans le dosimètre]/[dose déposée dans le milieu]. En ce qui concerne l'étalonnage, il faut d'abord remarquer que, à partir du moment où il a été vérifié que les trois points utiles représentent, d'une façon très reproductible, l'ensemble des points d'étalonnage, l'incertitude sur les débits de dose sur ces trois points ne joue plus. Par exemple, le point PEP qui correspond à un échantillon probablement peu homogène, est à l'origine, affecté d'une incertitude assez grande (Figure 4.2), mais le fait qu'il se trouve sur la droite moyenne montre qu'il est finalement assez juste et, par ailleurs, il suffit de savoir que sa position par rapport aux autres points est reproductible (Tableau 4.8) pour en déduire que c'est un repère fiable. L'incertitude de l'étalonnage peut provisoirement être estimée à $\pm 2\%$.

Il sera nécessaire d'évaluer les coefficients ϵ pour affiner la conversion [dose déposée dans le dosimètre]/[dose déposée dans le milieu]. Cela peut être fait par une modélisation en utilisant un code de calcul tel que GEANT4. Pour l'application à la mesure du débit de dose dans un milieu inconnu, l'idéal serait aussi d'évaluer ϵ . Une composition hypothétique du milieu, notamment de sa teneur en humidité, peut permettre de faire une évaluation approximative, de précision suffisante. Il faut noter que ce problème se pose dans toutes les méthodes de dosimétrie *in situ* par TL.

4.6 Variations possibles de la dose annuelle

La validité de l'équation fondamentale de la datation par luminescence repose, entre autres, sur le postulat selon lequel la dose annuelle n'a pas varié au cours du temps, depuis la remise à zéro des minéraux. Or, le débit de dose naturel peut être modifié en raison de la mobilité de certains radioéléments ou par la variation du taux d'humidité du sol. Il est donc nécessaire de s'entourer du maximum de garanties à cet égard. Même s'il est difficile de quantifier l'impact de ces phénomènes, les expertises des spécialistes du terrain, tels que les

géologues, sont précieuses. Ils sont en effet susceptibles de déceler des indices d'une éventuelle évolution géologique du site de prélèvement de l'échantillon étudié.

- Mobilité des radioéléments

Lors de la détermination de la dose annuelle, l'équilibre séculaire des familles radioactives est supposé réalisé. En d'autres termes, tous les radioéléments composant la série considérée devraient présenter la même activité. Une erreur importante risque d'être commise si cette hypothèse n'est pas vérifiée. La présence d'un écoulement d'eau souterrain, par exemple, peut être à l'origine du départ de radioéléments solubles tels que l'uranium, le radium et le potassium. Le radon ^{222}Rn , élément gazeux, peut également diffuser à travers le sol. La comparaison des activités des différents radioéléments composant une chaîne de désintégration permet de détecter un éventuel déséquilibre au moment de la datation. Il est cependant difficile d'estimer s'il est apparu récemment ou s'il persiste depuis la mise en place du sédiment, par exemple à cause d'un lessivage permanent. Une analyse détaillée des différentes phases du sédiment par la technique dite du « leaching » (Rambaud et al., 2000) peut éventuellement apporter des informations sur la mobilité actuelle des radionucléides.

- Variation du taux d'humidité dans le sol

Par ailleurs, la teneur en humidité déterminée au moment du prélèvement de l'échantillon n'est pas forcément représentative de la teneur moyenne qui a prévalu au cours des siècles passés. L'eau ayant pour effet de diluer les radioéléments, la dose annuelle externe risque donc d'être affectée d'une erreur importante. Il est toutefois possible de déterminer le taux d'humidité maximum, c'est-à-dire sa valeur à saturation de l'échantillon, et en déduire ainsi dans quel intervalle a pu varier la dose externe.

4.7 Incertitudes sur la dose annuelle

Une incertitude est naturellement associée à chacun des paramètres intervenant dans le calcul de la dose annuelle. Les incertitudes que nous avons prises en compte sont les suivantes :

- Les incertitudes sur les teneurs en radioéléments déterminées par spectrométrie gamma à haute résolution comprennent une erreur globale (statistique + systématique) qui varie selon le radioélément considéré et selon son activité dans l'échantillon. Elle est de l'ordre de 2 à 3 % pour ^{226}Ra et ^{232}Th (Courtine, 2007) dans les échantillons actifs. Par contre,

dans la série de l'uranium, les déséquilibres sont obtenus avec une incertitude plus grande, d'environ 10% (D. Miallier, com. pers.), car ils reposent sur la mesure d'activité de radioéléments (^{234}Th , ^{210}Pb , ^{235}U) plus difficile à évaluer. L'erreur associée aux mesures des teneurs en radioéléments par activation neutronique est estimée à $\pm 10\%$; elle comprend l'erreur statistique de comptage et celle (systématique) sur la détermination des teneurs en radioéléments des standards.

- Une incertitude arbitraire de 5% (D. Miallier, com. pers.) sur les facteurs correctifs relatifs à l'attaque acide (l'épaisseur de quartz éliminée par ce traitement est difficile à évaluer) et à la taille des grains (ces derniers ne sont jamais des sphères parfaites et il est, de plus, difficile d'évaluer la répartition granulométrique des grains entre les deux tamis).

- L'incertitude sur la dose annuelle externe déterminée avec les dosimètres TL comprend une erreur statistique liée à la dispersion des mesures TL et une erreur systématique sur la méthode qui a été donnée dans le paragraphe correspondant. L'erreur globale est de 2 à 3%. En fait, la mesure de la dose annuelle externe par cette méthode est souvent précise, mais il se pose le problème de la représentativité du volume du dosimètre par rapport à celle de l'échantillon étudié.

- L'incertitude systématique associée aux doses gamma déterminées avec le spectromètre de terrain est estimée à 5% (N. Mercier, com. pers.).

- Une incertitude arbitraire de 15% (D. Miallier, com. pers.) sur la dose cosmique déterminée à l'aide des formules de Prescott et Hutton (1988, 1994), afin de tenir compte d'une variation possible du rayonnement cosmique au cours du temps, ainsi que de facteurs géométriques concernant le site de prélèvement. La contribution de la dose cosmique à la dose annuelle étant faible par rapport à celles des autres types de rayonnement, la contribution de l'erreur sur la dose cosmique à l'erreur globale sur la dose annuelle sera donc très faible.

Les sources d'incertitude données ci-dessus concernent le calcul du débit de dose actuel. Cependant, la méconnaissance des variations de la teneur en humidité du site par le passé nous amène le plus souvent à proposer un intervalle dans lequel cette dernière, et par suite la dose annuelle, ont pu varier. Cette démarche est précisée dans le paragraphe suivant.

4.8 Exemple pour un site

Dans ce paragraphe est détaillé le calcul de la dose annuelle reçue par des grains de quartz de granulométrie 200-315 μm , extraits d'un échantillon de sol cuit que nous nous

propositions de dater. Il s'agit de l'échantillon C348, prélevé au lieu-dit « le Fraisse » (cf. chapitre 5), environ 20 cm sous une coulée volcanique.

La teneur en humidité de cet échantillon a été évaluée à 3%, donc :

$$h = 0,03$$

La composition de ce sol cuit est donnée dans le tableau 4.9. Elle est typique des échantillons étudiés dans le cadre de ce travail.

SiO ₂ %	Al ₂ O ₃ %	Fe ₂ O ₃ %	MnO %	MgO %	CaO %	Na ₂ O %	K ₂ O %	TiO ₂ %	P ₂ O ₅ %	PF %	Total %
59,98	16,59	7,06	0,1	2,32	3,05	2,13	3,22	1,15	0,34	3,99	99,93

Tableau 4.9 : Composition de l'échantillon en majeurs (PF : perte au feu). Les incertitudes sur les teneurs sont de l'ordre de 1 à 2% pour la majorité des oxydes, excepté pour MnO, MgO, CaO et P₂O₅ (< 10%). La somme des teneurs n'atteint pas 100% : les 0,07% manquants sont dus à des incertitudes expérimentales et/ou à l'absence de mesures de certains éléments. Pour le calcul de q , les teneurs sont normalisées à 100%.

Ces données ont permis de calculer le facteur q :

$$q = 1,0118$$

Sa valeur est proche de l'unité, ce qui implique une faible correction pour passer de la dose annuelle déposée dans la matrice à celle déposée dans les grains de quartz.

Les facteurs d'atténuation χ_i de la dose β externe due à la taille des grains pour la fraction de granulométrie 200-315 μm sont donnés dans le tableau 4.10. Ces coefficients sont calculés pour le diamètre médian entre 200 μm et 315 μm , ce qui suppose, que les grains se répartissent d'une façon régulière entre ces deux limites imposées par les mailles des tamis.

χ_{K2O}	χ_{Th}	χ_U
0,91	0,77	0,83

Tableau 4.10 : Facteurs d'atténuation de la dose β externe pour des grains de granulométrie 200-315 μm .

Les teneurs en radioéléments de ce paléosol sont données dans le tableau 4.11.

K ₂ O (%)	²³² Th (ppm)	²³⁸ U (ppm)	²²⁶ Ra (ppm)	²¹⁰ Pb (ppm)	²²⁶ Ra/ ²³⁸ U	²¹⁰ Pb/ ²²⁶ Ra
3,24 ± 0,03	13,3 ± 0,3	2,80 ± 0,15	3,30 ± 0,15	2,28 ± 0,15	1,18 ± 0,08	0,69 ± 0,05

Tableau 4.11 : Teneurs en radioéléments de l'échantillon et mise en évidence des déséquilibres dans la chaîne de l'uranium 238. Les deux dernières colonnes donnent des rapports d'activité. Pour les descendants de ²³⁸U, soit ²²⁶Ra et ²¹⁰Pb, les teneurs sont exprimées en « équivalent ²³⁸U, à l'équilibre », ce qui permet d'utiliser facilement les tables d'équivalence pour les débits de dose.

Un déséquilibre entre ²²⁶Ra et ²³⁸U a été mis en évidence ainsi qu'une perte de radon. Des mesures de radioactivité faites sur un échantillon lessivé à l'acétate d'ammonium (méthode Rambaud et al., 2000) indiquent que la mobilité du radium est actuellement très réduite, ce qui suggère que le déséquilibre à ce niveau est ancien.

Nous tenons compte des déséquilibres dans le calcul de la dose annuelle en distinguant les contributions des éléments pré et post-Rn de la chaîne de l'uranium 238. Leurs débits de dose spécifiques sont donnés par Adamiec et Aitken (1998). A noter que nous ne mesurons pas le ²³⁰Th, qui n'est accessible que par spectroscopie alpha, de telle sorte que nous ignorons à quel niveau apparaît le déséquilibre que nous voyons sur le ²²⁶Ra. Toutefois, compte tenu des contributions relatives respectives des différentes parties de la chaîne du ²³⁸U, le fait de reporter tout le déséquilibre sur le ²²⁶Ra ne change pratiquement pas les résultats pour les doses β et γ.

Les formules (4.6) et (4.7) permettant de calculer respectivement les doses β et γ externes deviennent alors :

Dose β externe :

$$D_{\beta_{ext}} = q \times (1-h) \times \left\{ 0,940 \times \chi_U \times (0,060 \times [U] + 0,086 \times [Pb]) + 0,0273 \times 0,915 \times \chi_{Th} \times [Th] + 0,649 \times \chi_{K_2O} \times [K_2O] \right\} \quad (4.16)$$

Dose γ externe :

$$D_{\gamma_{ext}} = q \times (1-h) \times \left\{ 0,0044 \times [U] + 0,1086 \times [Pb] + 0,0476 \times [Th] + 0,202 \times [K_2O] \right\} \quad (4.17)$$

dans lesquelles les concentrations en U, Pb et Th sont exprimées en ppm, [K₂O] en % et D_{βext} et D_{γext} en mGy.an⁻¹.

L'application numérique conduit à une dose β externe de $(2,41 \pm 0,10)$ mGy.an⁻¹ et une dose γ externe de $(1,52 \pm 0,02)$ mGy.an⁻¹. Pour ce prélèvement situé sous 3 m de lave trachy-basaltique, à une altitude de 400 m et à une latitude géographique de 45°, la dose cosmique a été évaluée à $(0,13 \pm 0,03)$ mGy.an⁻¹, à partir des formules de Prescott et Hutton (1994). La dose annuelle totale pour les grains de quartz de la fraction 200-315 μ m de cet échantillon est donc de $(4,06 \pm 0,11)$ mGy.an⁻¹.

Cependant, le taux d'humidité pris en compte dans ces calculs n'est probablement pas représentatif de celui qui a prévalu tout au long de l'enfouissement de l'échantillon. La topographie du site a en effet évolué depuis la mise en place de la coulée, comme le montre la figure 4.4. Au cours des premiers millénaires qui ont suivi l'éruption volcanique, un cours d'eau circulait sous la coulée qui avait elle même suivi la paléovallée. Il emportait ou apportait des radioéléments et contribuait ainsi à la modification de la dose annuelle. Par la suite, la coulée a été incisée et l'érosion en a fait disparaître une partie. La date de cet événement est inconnue, mais probablement récente : une érosion post-glaciaire est en effet envisageable. Actuellement, le ruisseau coule en fond de vallée (thalweg) et le taux d'humidité du sol cuit a fortement diminué.

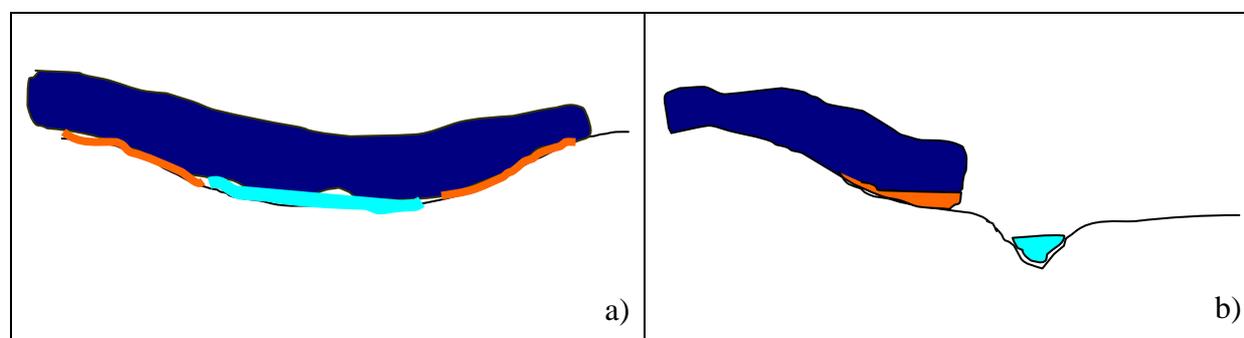


Figure 4.4 : Schéma de l'évolution topographique du site de prélèvement de l'échantillon a) : au moment de la mise en place de la coulée, b) : situation actuelle (légende : bleu foncé : lave, orange : sol cuit, bleu clair : cours d'eau).

L'histoire du sol daté peut donc être schématiquement scindée en deux parties distinctes du point de vue de sa teneur en eau (et de ses conséquences sur le débit de dose) :

- une période pendant laquelle la teneur en eau est restée maximale (de l'ordre de la teneur à saturation, soit environ 30%) et pendant laquelle les causes de déséquilibre (« leaching ») étaient actives,

- puis, une période (incluant l'actuelle) au cours de laquelle le taux d'humidité a fortement baissé et les causes actives de déséquilibre ont presque disparu (à l'exception du départ de radon).

A partir de ces hypothèses, il est possible de donner des limites sur la dose annuelle (Tableau 4.12).

Situation	q	1-h	Dose annuelle (mGy.an ⁻¹)
Humidité nulle	1,0119	1,00	4,19 ± 0,11
Humidité actuelle	1,0118	0,97	4,06 ± 0,11
Humidité égale à 30%	1,0115	0,77	2,97 ± 0,08

Tableau 4.12 : Valeur de la dose annuelle et des paramètres intervenants dans son calcul selon la teneur en humidité. La variation du facteur *q* avec la teneur en humidité est quasi nulle. Par contre, on peut constater l'importance très grande de l'humidité sur la valeur de la dose annuelle.

L'âge supposé de la coulée est d'environ 40 ka. Par ailleurs, l'érosion était beaucoup plus active dans l'Holocène. Ces deux arguments nous laissent supposer que la situation topographique actuelle du gisement correspond à peu près au quart de la vie de la coulée. Il serait donc possible de proposer une teneur en humidité moyenne pour toute la durée de l'enfouissement. Par contre, il est beaucoup plus difficile d'estimer les variations de radioactivité dues au lessivage quand l'eau circulait sous la coulée.

En ce qui concerne le radon, on sait que l'eau favorise son départ. Il est donc vraisemblable que le sédiment en ait toujours perdu. Ceci est corroboré par des analyses de teneur en radon que nous avons faites dans un captage dans un autre secteur géographique, sous la coulée de Marsat, au lieu-dit « Les Grosliers ». En effet, ce captage est situé à une très faible distance d'un prélèvement qui sera référencé C416 dans la suite de ce travail (cf. chapitre 5) et qui est marqué par un fort déséquilibre au niveau du ²¹⁰Pb : l'activité de l'eau en ²²²Rn est située, avec des petites variations temporelles, dans la fourchette 16-18 Bq.l⁻¹ (coll. G. Bertrand, OPGC, UBP).

A l'exception du site des Riaumes qui était assez bien scellé dans un point haut de la coulée, la situation présentée dans ce paragraphe a été rencontrée pour tous ceux étudiés dans ce travail. Nous proposerons donc dans ces cas un intervalle dans lequel l'âge réel de la coulée est supposé être compris.

CHAPITRE 5 :
MESURES ET RÉSULTATS SUR LES SITES RETENUS
LIÉS À LASCHAMP

Avertissements (valables pour ce chapitre et le suivant, sauf mention contraire) :

➤ Pour faire référence aux approches expérimentales sélectionnées pour déterminer la paléodose (cf. chapitre 3), nous avons utilisé les abréviations suivantes :

- TLR MA : exploitation des signaux de TL rouge avec le protocole mixte multiple-aliquot,
- TLB MA : exploitation des signaux de TL bleue avec le protocole mixte multiple-aliquot,
- TLR SAR : exploitation des signaux de TL rouge avec le protocole SAR (single-aliquot regenerative-dose),
- TLB SAR : exploitation des signaux de TL bleue avec le protocole SAR,
- OSL : exploitation des signaux d'OSL avec le protocole SAR.

➤ En TL MA, la luminescence de 10 à 12 aliquotes par dose a été mesurée pour construire les courbes de croissance du signal en fonction de la dose. L'erreur statistique sur ces comptages est donnée à 2 sigma. Pour les échantillons pour lesquels les 2 approches TLR MA et TLB MA ont été testées, les mesures des signaux de TL respectivement dans le rouge et dans le bleu ont été réalisées, pour chacune des doses additives et de régénération, à partir du même lot de quartz.

➤ Pour le protocole SAR, en TL comme en OSL, environ 12 aliquotes de l'échantillon ont été mesurées pour estimer la paléodose.

➤ La paléodose pour les protocoles de TL MA a été calculée en exploitant le signal de TL à la température correspondant au maximum du pic. Pour l'approche TLB SAR, la paléodose retenue est la moyenne des valeurs obtenues sur 10°C de part et d'autre de la température du maximum du pic. En OSL, les 0,3 premières secondes des signaux enregistrés lors de la mise en œuvre du protocole SAR ont été utilisées pour déterminer la paléodose, après soustraction du bruit de fond (ce dernier étant estimé à partir du signal OSL enregistré au cours des dernières secondes de la stimulation).

➤ Quelque soit l'approche utilisée, les paléodoses, les doses annuelles et les âges déduits sont donnés avec une incertitude de 1 sigma.

Dans ce chapitre sont présentés, pour les secteurs géographiques retenus, les résultats des datations obtenus avec les différentes approches expérimentales. Au préalable, nous avons testé ces méthodes sur un échantillon de quartz remis à zéro puis irradié au laboratoire, afin d'apprécier leur efficacité respective à retrouver une dose connue.

5.1 Tests de détermination de paléodoses générées expérimentalement

5.1.1 Mode opératoire

L'efficacité des différents protocoles de mesure des paléodoses que nous comptons mettre en œuvre pour nos échantillons a été testée sur un intervalle de doses assez étendu (40 à 300 Gy), de façon à englober les valeurs de paléodose auxquelles nous pouvions nous attendre pour des échantillons liés à Laschamp ou postérieurs à cet événement.

Nous avons choisi de réaliser ces tests pour trois doses comprises dans cet intervalle : 47,3 Gy, 165,5 Gy et 284 Gy (Bassinot et al., 2006). L'expérience a été réalisée sur l'échantillon de sédiment cuit C397bis prélevé dans le secteur de Volvic. Le quartz de fraction granulométrique 500-600 μm , broyé et tamisé à la granulométrie de 100-200 μm afin de disposer d'une quantité de poudre suffisante, a été remis à zéro par chauffage à 380°C pendant 16 h. La poudre a ensuite été divisée en trois lots, lesquels ont été irradiés respectivement à 47,3 Gy, 165,5 Gy et 284 Gy, avec l'irradiateur gamma du LPC, par D. Miallier (LPC). Ce dernier, cependant, ne nous a pas informés des doses appliquées pour nous permettre de réaliser «en aveugle» l'estimation de la paléodose selon les différentes approches retenues.

5.1.2 Résultats et discussion

Les résultats obtenus avec les différentes approches utilisées sont détaillés dans les paragraphes suivants. Les paléodoses déduites sont données dans le tableau 5.1.

Dose administrée (Gy)	Dose TLR MA (Gy)	Rapport dose TLR MA /dose appliquée	Dose TLB MA (Gy)	Rapport dose TLB MA /dose appliquée	Dose TLB SAR (Gy)	Rapport dose TLB SAR /dose appliquée	Dose OSL SAR (Gy)	Rapport dose OSL SAR /dose appliquée
47,3	48 ± 4	1,01 ± 0,08	42 ± 5	0,89 ± 0,11	44 ± 3	0,93 ± 0,06	40 ± 2	0,85 ± 0,04
165,5	161 ± 18	0,97 ± 0,11	168 ± 23	1,02 ± 0,14	147 ± 6	0,89 ± 0,04	130 ± 7	0,79 ± 0,04
284	290 ± 34	1,02 ± 0,12	274 ± 34	0,96 ± 0,12	260 ± 15	0,92 ± 0,05	199 ± 7	0,70 ± 0,02

Tableau 5.1 : Comparaison des doses mesurées avec différentes approches expérimentales avec les doses réellement administrées.

5.1.2.1 TLR MA

Un préchauffage des aliquotes à 320°C/10s a été réalisé pour éliminer les pics à basse température qui recouvraient partiellement le pic principal. Un léger décalage de ce pic vers les basses températures a été observé à la suite des ajouts de doses (6°C de 0 à 1600 Gy). Ce phénomène est courant en TL rouge (*e.g.*, Miallier et al., 1991). Dans les 3 cas, le glissement des courbes de deuxième lecture selon l'axe des abscisses permettait leur superposition parfaite avec les courbes de première lecture, moyennant respectivement l'application des facteurs s d'échelle 0,98, 0,96 et 1,03 pour les doses 47,3, 165,5 et 284 Gy. La figure 5.1 montre les courbes de TL de première et deuxième lecture obtenues pour l'échantillon dont la paléodose simulée était de 165,5 Gy et la figure 5.2, les courbes de croissance correspondantes. Comme on le voit dans le tableau 5.1, les paléodoses estimées sont compatibles avec les doses appliquées.

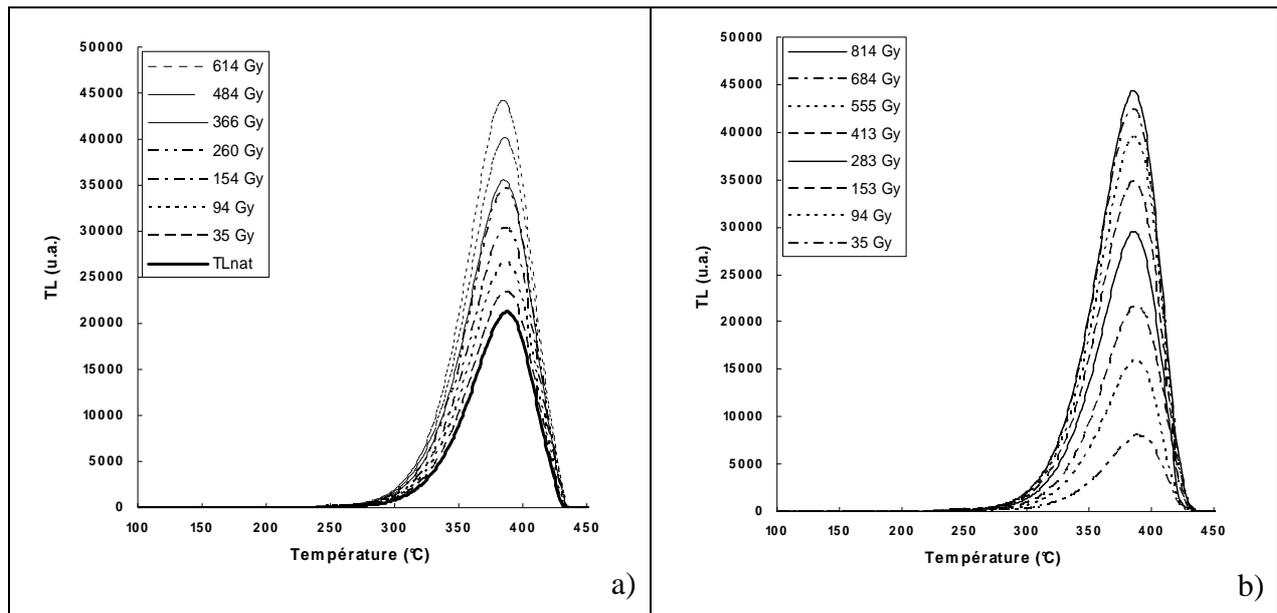


Figure 5.1 : Courbes de TL rouge pour l'échantillon ayant reçu une dose de 165,5 Gy : a) 1^{ère} lecture, b) 2^{ème} lecture.

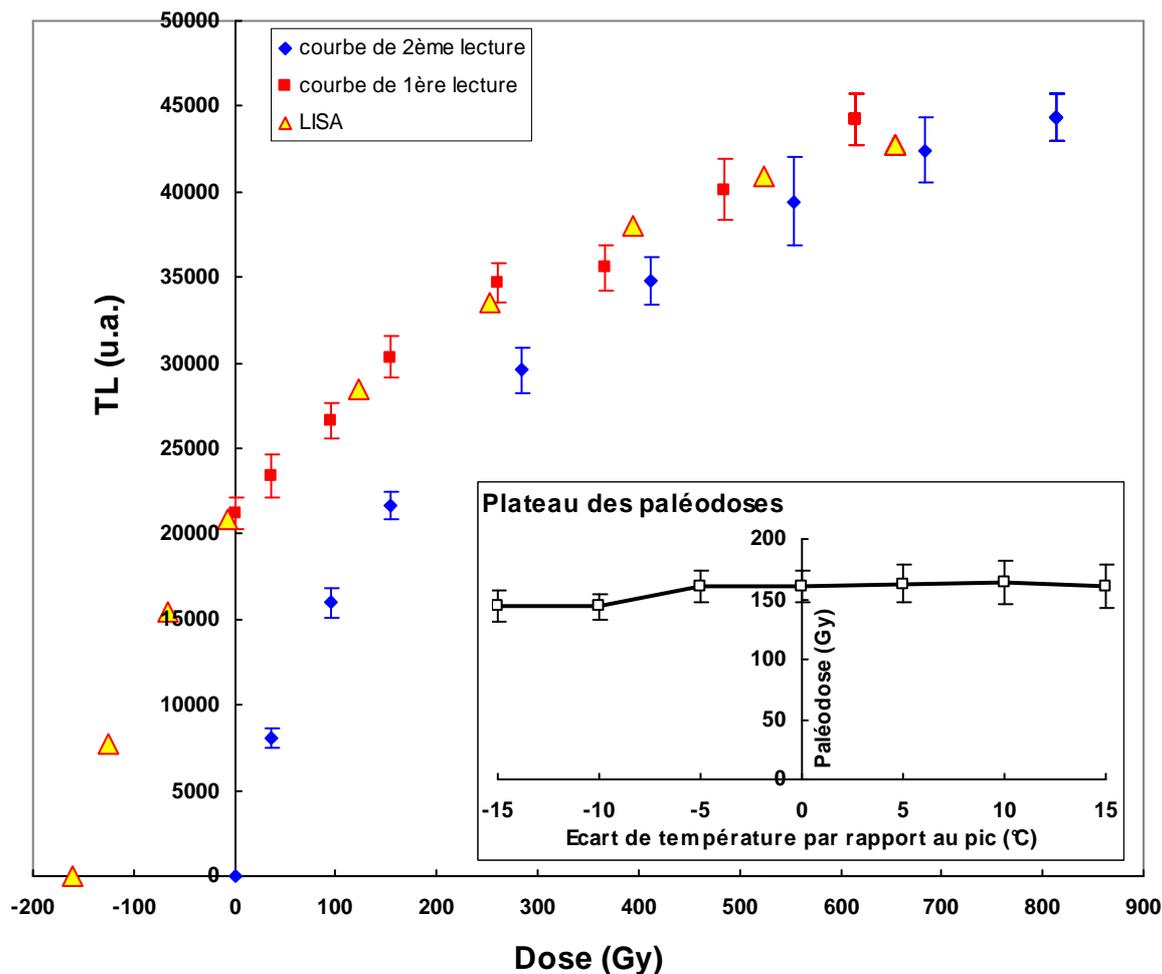


Figure 5.2 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLR MA pour la dose de 165,5 Gy.

5.1.2.2 TLB MA

Un préchauffage des aliquotes à 290°C/10s était nécessaire pour éliminer les pics à basse température. Les facteurs s étaient respectivement 1,02, 0,90 et 1,08 pour les doses 47,3, 165,5 et 284,0 Gy. La superposition des courbes de croissance de première et de deuxième lecture était correcte. La figure 5.3, relative à l'échantillon ayant reçu une paléodose simulée de 165,5 Gy, montre les émissions de TL de première et deuxième lecture obtenues après l'application de doses artificielles croissantes et la figure 5.4, les courbes de croissance correspondantes. Les doses déterminées avec cette approche étaient compatibles avec les doses appliquées (Tableau 5.1).

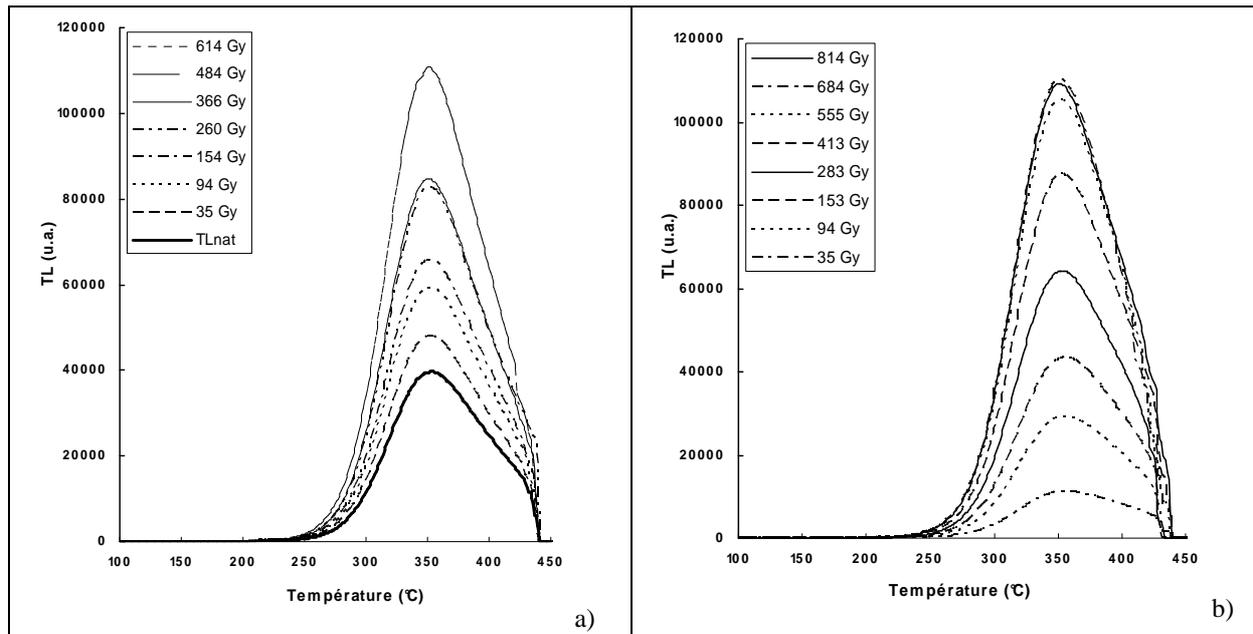


Figure 5.3 : Courbes de TL bleue pour l'échantillon ayant reçu une dose de 165,5 Gy : a) 1^{ère} lecture, b) 2^{ème} lecture.

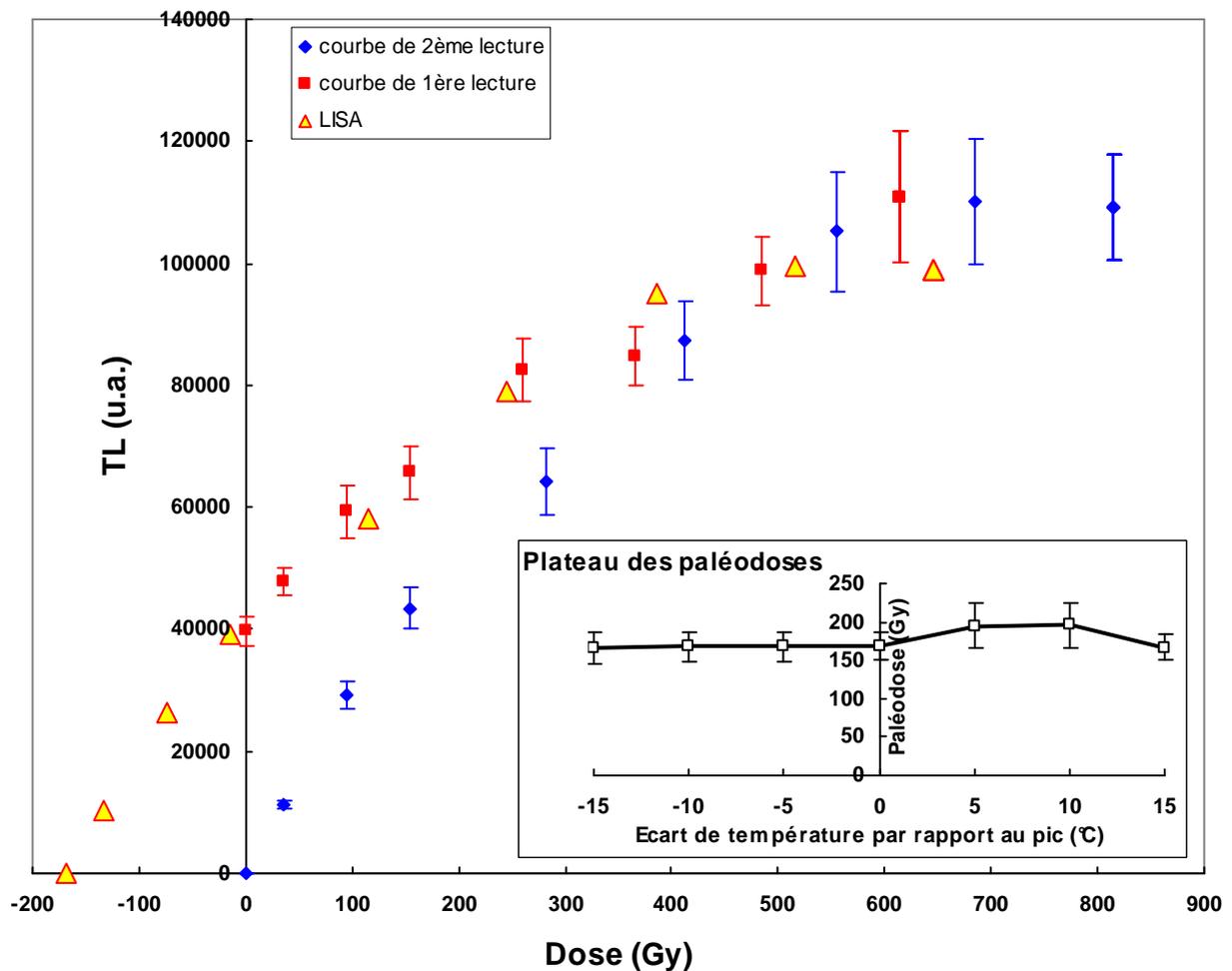


Figure 5.4: Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLB MA pour l'échantillon ayant reçu la dose de 165,5 Gy.

5.1.2.3 TLB SAR

Comme pour l'approche TLB MA, chaque aliquote a été préchauffée à 290°C/10s avant les mesures. Le taux de recyclage moyen était égal à 1,01, 0,99 et 1,01 respectivement pour les doses de 47,3, 165,5 et 284 Gy, ce qui indique une correction efficace des changements de sensibilité. Des plateaux de paléodose satisfaisants ont été obtenus. La figure 5.5 illustre les résultats obtenus pour une des aliquotes de l'échantillon irradié, au préalable, à 165,5 Gy.

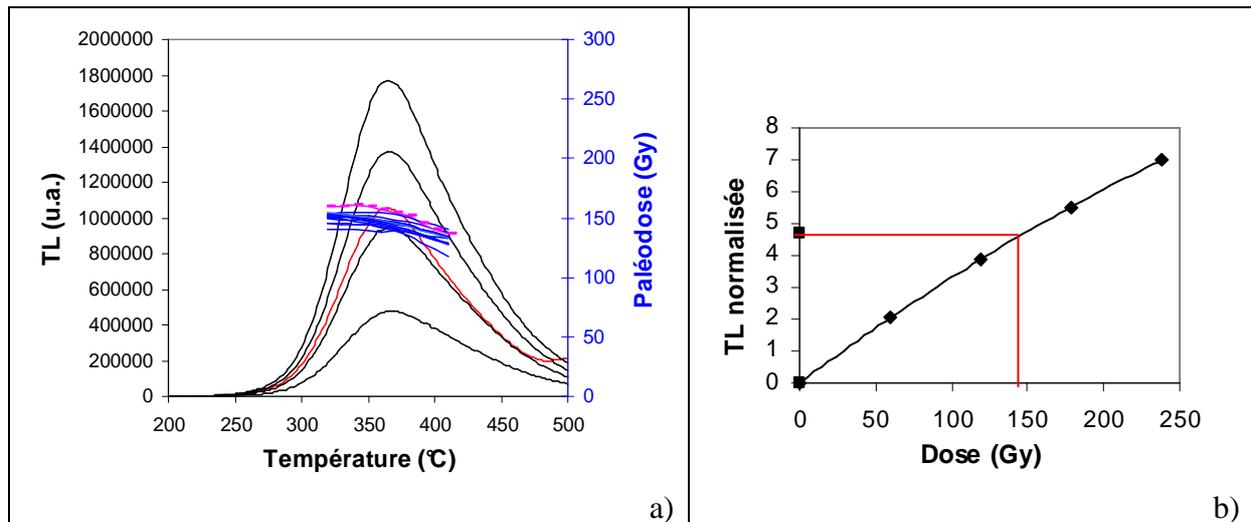


Figure 5.5 : Approche TLB SAR pour la dose de 165,5 Gy : a) courbes de TL bleue obtenues pour une aliquote. Son plateau de paléodoses (pas d'intégration : 10°C) est figuré en rose ; b) courbe de régénération correspondante. Les plateaux de paléodoses des 11 autres aliquotes de la série mesurée sont représentés en bleu en a).

Le protocole SAR sous-estime les doses appliquées d'environ 10% (Tableau 5.1) et ce comportement semble être indépendant de la dose.

Lai et al. (2006) ont également mentionné des difficultés pour retrouver des doses de laboratoire, dans le cas de quartz extraits de loess chinois qui avaient été blanchis avec un simulateur de lumière solaire. Pour ces échantillons, le protocole SAR appliqué au signal de TL rouge conduisait à une surestimation des doses réellement appliquées. Ces auteurs avaient supposé que la surestimation était due à la différence de l'histoire thermique, lors de la mise en œuvre du protocole SAR, entre la dose de laboratoire et les doses de régénération appliquées. Le signal de TL de la dose de laboratoire était en effet mesuré après une préchauffe à 300°C/5s, tandis que la TL des doses régénérées suivantes l'était après que la première mesure de TL (celle de la dose de laboratoire) ait porté la température de l'échantillon à 500°C. Ce chauffage à 500°C aurait diminué sa sensibilité et ce changement

n'aurait pas été corrigé par le signal de la première dose test. Une série de mesures sur des aliquotes des mêmes échantillons chauffés à 500°C avant d'administrer une dose de laboratoire a confirmé cette hypothèse (Lai et al., 2006) : les doses déterminées avec le protocole SAR étaient alors compatibles avec les doses appliquées.

Pour notre étude, nous pouvions supposer que l'histoire thermique de nos échantillons était partiellement responsable du problème rencontré avec le protocole SAR. De fait, notre première dose de laboratoire était ajoutée après une remise à zéro de l'échantillon à 380°C pendant 16 h, alors que les doses suivantes étaient appliquées après que la première mesure de TL ait chauffé l'échantillon à 500°C. Cette mesure pouvait être à l'origine d'une augmentation de sa sensibilité et conduire à une sous-estimation de la paléodose. Cette éventualité a été étudiée. Une masse de 100 mg de l'échantillon de quartz des Riaumes (C397bis, 500-600 µm broyé 100-200 µm) a été remise à zéro par un chauffage à 500°C pendant 45 min, au lieu de 380°C pendant 16 h, puis irradiée à 165 Gy avec l'irradiateur gamma du LPC. La température de 500°C est celle à laquelle l'aliquote de quartz est portée lors de la mesure du signal de TL de la dose de laboratoire et, de plus, les grains ont probablement été chauffés à une température comparable par la coulée de lave (Miallier et al., 2001 ; Chassagne, 2004). Douze aliquotes ont ensuite été mesurées avec le protocole SAR (préchauffe 290°C/10 s). La dose déterminée (144 ± 8 Gy) était compatible avec celle obtenue pour les grains de quartz remis à zéro à 380°C (147 ± 6 Gy). Par conséquent, pour cet échantillon, la sous-estimation de la dose ne peut pas être expliquée exclusivement par un changement de sensibilité au cours de la première mesure de TL.

Nous avons également étudié l'influence possible de la dose test, pour l'échantillon ayant reçu la dose de 165,5 Gy. La dose test appliquée au cours des premières mesures correspondait à 17% de la dose de laboratoire. Nous avons réalisé deux nouvelles séries de mesures, en utilisant, pour l'une, une dose test très faible (5% de la dose de laboratoire) et, pour l'autre, une dose test égale à la dose de laboratoire. Dans chacun des cas (Tableau 5.2), le protocole SAR sous-estimait la dose administrée, notamment lorsque la dose test était égale à la dose appliquée.

Dose test (Gy)	Rapport dose test/dose appliquée	Dose TLB SAR (Gy)	Rapport dose TLB SAR/dose appliquée
8,5	0,05	139 ± 9	$0,84 \pm 0,06$
28,2	0,17	147 ± 5	$0,89 \pm 0,03$
165,7	1	129 ± 6	$0,78 \pm 0,04$

Tableau 5.2 : Influence de la dose test sur la dose mesurée. La dose appliquée était de 165,5 Gy.

Par la suite, nous avons aussi testé le protocole SAR sur la TL rouge (préchauffe 320°C/10s) de l'échantillon ayant reçu la dose de 284 Gy. La dose déduite selon cette approche (277 ± 34 Gy) était compatible avec la dose appliquée. Les approches TLR MA, TLB MA et TLR SAR ne semblant pas présenter de difficultés particulières, les origines de celles rencontrées en TLB SAR semblent donc être liées à l'approche dans sa globalité (c.-à-d. "protocole + domaine spectral considéré") pour cet échantillon.

5.1.2.4 OSL

Les mesures d'OSL (Tableau 5.1) ont conduit à une sous-estimation systématique de la dose appliquée, cette sous-estimation augmentant avec la dose (de 15 à 30%). La figure 5.6.a montre la courbe de croissance obtenue pour une aliquote de l'échantillon irradié à 165,5 Gy. Pour la fraction de quartz ayant reçu la dose de 284 Gy, le signal d'OSL était proche de la saturation (Figure 5.6.b), ce qui suggère une limite d'application du protocole SAR aux échantillons dont la paléodose n'excède pas ~200 Gy. Notons toutefois que nous ne disposons pas d'une statistique vraiment suffisante puisque 3 aliquotes seulement ont été mesurées pour cette dose, par manque d'échantillon.

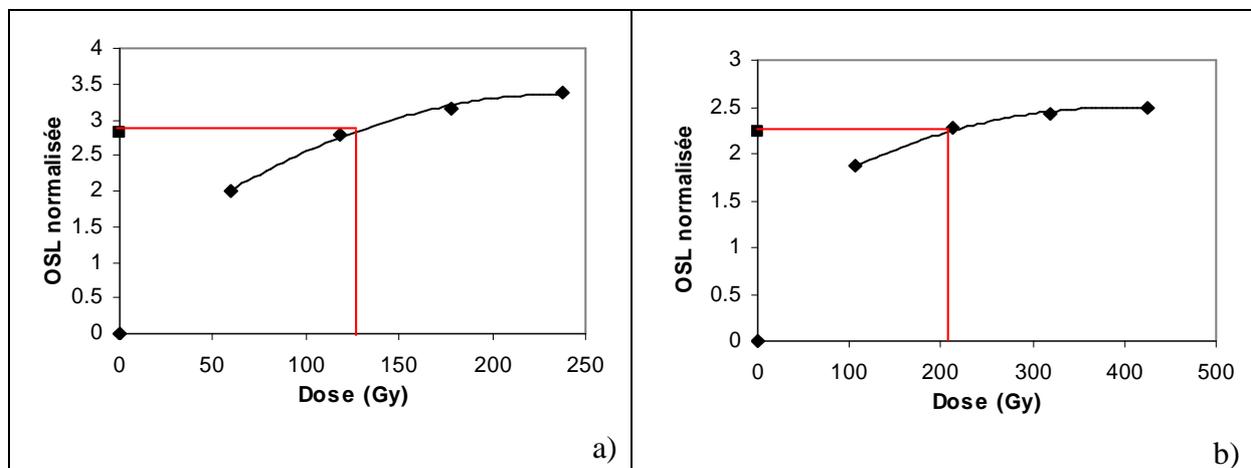


Figure 5.6 : Courbes de croissance obtenue en OSL pour une aliquote irradiée à 165,5 Gy (a) et pour une aliquote irradiée à 284 Gy (b).

Les résultats des tests de récupération (ou transfert thermique) et de recyclage effectués lors des différentes mesures sont donnés dans le tableau 5.3. Ils montrent que le transfert thermique était négligeable et que le protocole SAR corrigeait correctement les changements de sensibilité.

Dose administrée (Gy)	Taux de récupération (%)	Rapport de recyclage
47,3	0,03 ± 0,01	0,99 ± 0,01
165,5	0,04 ± 0,02	0,96 ± 0,02
284	0,16 ± 0,01	0,97 ± 0,01

Tableau 5.3 : Résultats des tests de récupération et de recyclage pour les 3 doses administrées. Une série de 12 aliquotes a été mesurée pour les doses de 47,3 et de 165,5 Gy. Seules 3 aliquotes ont été étudiées pour la dose de 284 Gy.

5.1.3 Conclusion

Les approches TLR MA et TLB MA se sont avérées valides pour déterminer la dose administrée à un échantillon remis à zéro au laboratoire. Ceci constitue naturellement une condition nécessaire mais non suffisante pour la datation. En effet, la sensibilité de l'échantillon naturel qui a été remis à zéro il y a très longtemps a pu varier depuis, par exemple sous l'effet de l'irradiation naturelle (création de pièges et de défauts divers) ou à cause de phénomènes de diffusion très lente des impuretés.

Bien que les résultats obtenus avec les approches TLR MA, TLB MA et TLB SAR soient compatibles entre eux, une sous-estimation systématique de la dose appliquée a été observée en TLB SAR. L'application du protocole SAR en OSL a également conduit à une sous-estimation systématique, mais dans une proportion encore plus importante. Comme nous le verrons dans les paragraphes suivants, nous avons tout de même testé ces méthodes sur des échantillons naturels.

5.2 Secteur de Volvic

5.2.1 Présentation du secteur géographique et échantillonnage

En aval du village de Volvic (Figure 5.7) s'épanchent un ensemble de coulées volcaniques à composition uniforme de trachy-basalte (Boivin et al., 2004). L'origine de ces coulées est inconnue. Il faut certainement la rechercher parmi les volcans du nord de la Chaîne des Puys. En amont de Volvic, ces coulées sont masquées par celles, plus récentes, qui sont issues du Puy de la Nugère et qui fournissent la « lave de Volvic ». L'étude du terrain n'a pas encore permis de savoir s'il y a en réalité une seule coulée avec plusieurs branches ou bien plusieurs coulées superposées péné-contemporaines ou d'âges différents.

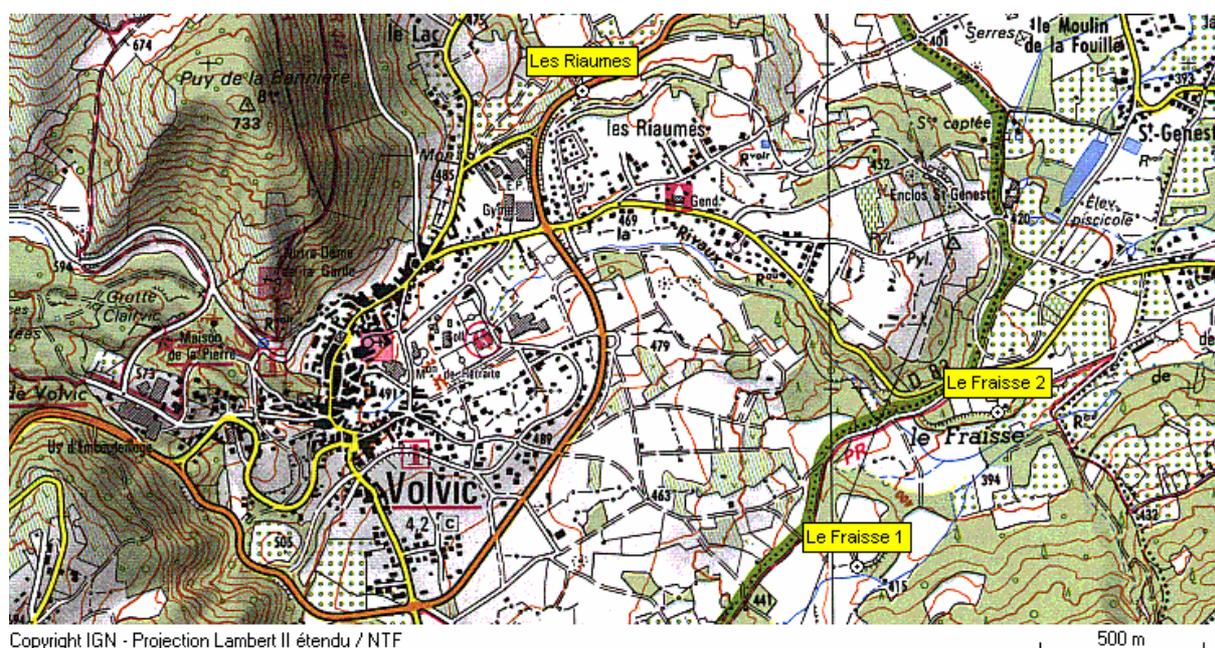


Figure 5.7 : Localisation des affleurements étudiés dans le secteur de Volvic.

La première datation dans ce secteur avait été effectuée par Guérin (1983) par la TL des feldspaths extraits de la lave elle-même. Cet auteur avait obtenu un âge de $63,4 \pm 4,8$ ka. L'échantillonnage provenait d'une petite carrière désaffectée située au bord de la départementale D83.

En 2002, au lieu-dit « le Fraisse » (commune de Malauzat), nous avons retrouvé un affleurement (Figure 5.8) montrant un sédiment cuit sous la coulée. Dans ce travail, ce site

sera nommé « **le Fraisse 1** ». Les premiers résultats d'une datation par TL avec le protocole de multiple-aliquot sur les quartz extraits de ce sédiment (référéncé C348) avaient donné un âge de 40 ka environ (Bassinet et al., 2003). Cette date se trouvait dans la « période Laschamp », ce qui nous a incités à poursuivre les tentatives de datation dans ce secteur, parallèlement à une prise de contact avec Jean-Pierre Valet, chercheur en paléomagnétisme (IPGP). Dans le cadre de ce travail, nous avons ré-échantillonné ce sédiment afin de tester de nouvelles approches expérimentales.



Figure 5.8 : Photographie de l'affleurement de sédiment cuit au « Fraisse 1 ». La sonde du spectromètre de terrain a été introduite dans le trou même où a été prélevé l'échantillon C348 à dater.

La prospection du secteur de Volvic a conduit à l'identification de deux nouveaux affleurements (contact coulée-sédiment) susceptibles de fournir des quartz chauffés :

- **le site du « Fraisse 2 »**, côté sud de l'ensemble de coulées comme Le Fraisse 1.

La situation de cet affleurement par rapport au précédent et la topographie permettent de penser que tous deux concernent la même coulée. L'échantillon de sol cuit prélevé sous la coulée au Fraisse 2 a été référencé C408.

- **le site des « Riaumes »** (Figure 5.9), au nord, dont la coupe a été rafraîchie en 2003 par des travaux routiers sur la départementale D986.

Deux échantillons de sédiment cuit (C396 et C397bis) ont été prélevés indépendamment. Des galets quartzueux C404-i (l'indice i faisant référence à un galet

particulier) chauffés par la coulée ont également été sélectionnés pour une datation. Leur description est donnée en annexe 3.



Figure 5.9 : Photographie de la coupe au lieu-dit « les Riaumes ».

Les coordonnées UTM (WGS 84) des prélèvements effectués dans ce secteur sont données dans le tableau 5.4.

Site	Référence des échantillons	Coordonnées	
Le Fraisse 1	C348	504471	5079158
Le Fraisse 2	C408	504905	5079627
Les Riaumes	C396, C397bis, C404-i	503645	5080629

Tableau 5.4 : Coordonnées UTM des prélèvements effectués dans le secteur de Volvic.

5.2.2 Analyses des sédiments

Sur leur flanc nord, les coulées reposent sur des formations de sables feldspathiques dérivés de roches sédimentaires tertiaires (Carte géologique de la France 1/50000, Clermont Ferrand, BRGM Ed. 1997). Plus précisément, aux Riaumes, le sédiment sous-jacent à la coulée est un grès arkosique à ciment siliceux, observable sur plus de 1 m de puissance. Au voisinage du contact avec la coulée, il est de couleur orange à rouge. Sa couleur s'éclaircit vers le bas, jusqu'à devenir blanche. L'examen à l'œil nu montre que la teneur du milieu en

finest est variable d'un endroit à l'autre, ce qui lui donne une consistance plus ou moins argileuse. Il n'y a pas de traces visibles de pédogénèse au contact avec la coulée.

Les analyses pétrographiques (P. Boivin) montrent que le ciment silteux occupe la moitié du volume de l'échantillon C396. Il est totalement recristallisé, de couleur rouge (goethite ?). Les minéraux (quartz, feldspaths et micas) contenus dans ce grès sont arrondis. L'échantillon C397bis est plus pauvre en matrice silteuse (environ 20 %) et celle-ci paraît rubéfiée. Des photographies des lames minces de ces échantillons sont données par la figure 5.10.

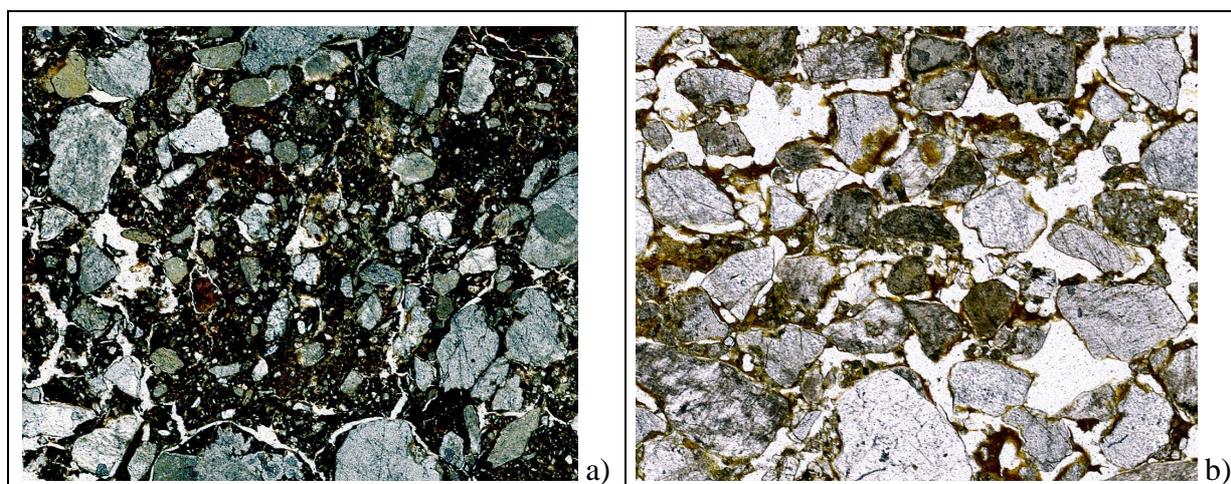


Figure 5.10 : Extraits des photographies de lames minces des échantillons de sédiment cuit des Riaumes : a) C396, b) C397bis (taille des images : 4,82 x 3,95 mm).

Du côté sud (secteur du Fraisse), les formations sous-jacentes à la coulée sont issues d'un remaniement de type alluvial des formations sédimentaires tertiaires. Elles sont plus riches en fines et contiennent des traces de carbonatations. Au Fraisse 1, des fragments osseux de bison (diagnostic : Guadelli, Université Bordeaux 3) ont été recueillis dans ce sédiment lors d'une campagne d'échantillonnage pour la TL.

5.2.3 Site des Riaumes

5.2.3.1 Échantillon C397bis

Pour l'échantillon C397bis, nous avons testé l'ensemble des approches retenues au chapitre 3 pour l'évaluation de la paléodoses. Cependant, par manque de quartz, les mesures de luminescence n'ont pas toutes été réalisées sur la même fraction granulométrique. Nous

présenterons donc d'abord les paléodoses obtenues avec ces différentes méthodes et les éventuelles difficultés rencontrées, puis nous apprécierons la cohérence interne des âges déterminés. Cette démarche sera d'ailleurs valable pour la majorité des échantillons étudiés dans ce travail.

5.2.3.1.1 Détermination de la paléodose

a) TLR MA

Les émissions de TL rouge des grains de quartz de cet échantillon ont été exploitées avec l'approche TLR MA sur différentes fractions granulométriques. Nous avons d'abord effectué des mesures de TL (Figure 5.11) sur la fraction 200-250 μm , après un préchauffage des aliquotes à 260°C/10s. Les courbes de croissance présentaient une forme proche d'une exponentielle saturante, assez souvent rencontrée pour la TL rouge du quartz (Figure 5.12). Le glissement de la courbe de deuxième lecture selon l'axe des abscisses permettait sa superposition parfaite avec celle de première lecture, en appliquant un facteur d'échelle s égal à 0,98. La paléodose a été évaluée à 193 ± 44 Gy.

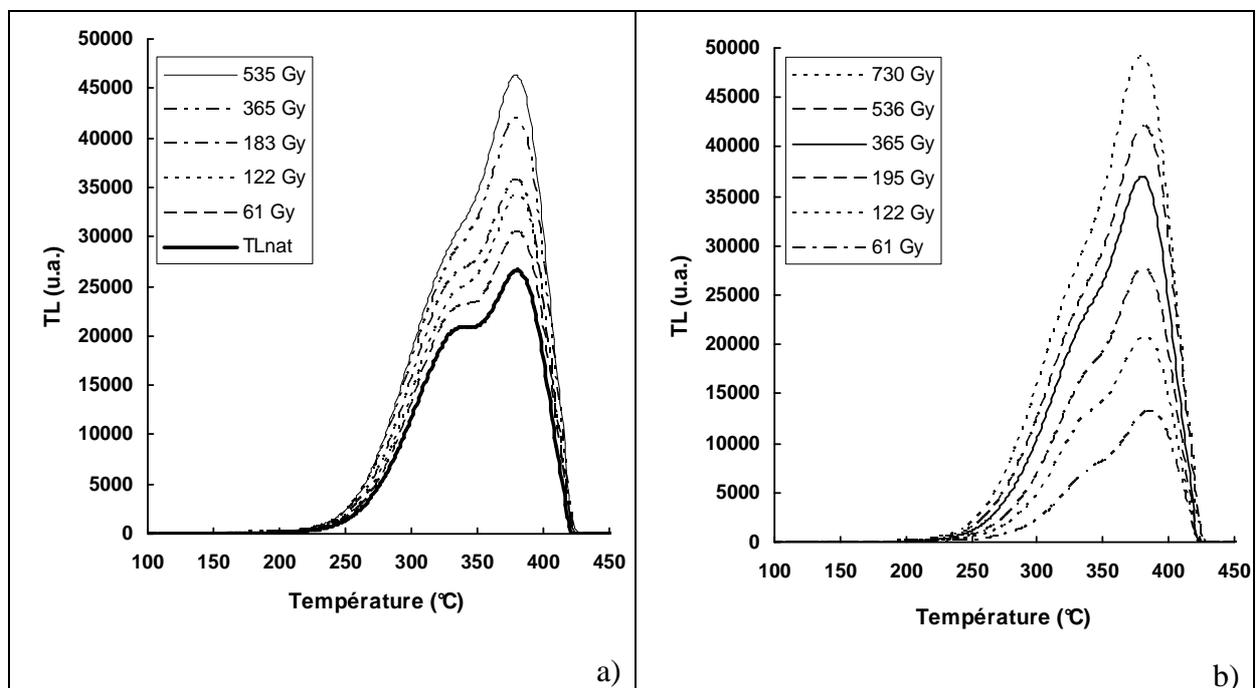


Figure 5.11 : Courbes de TL rouge pour les grains de quartz de granulométrie 200-250 μm de l'échantillon C397bis : a) 1^{ère} lecture, b) 2^{ème} lecture.

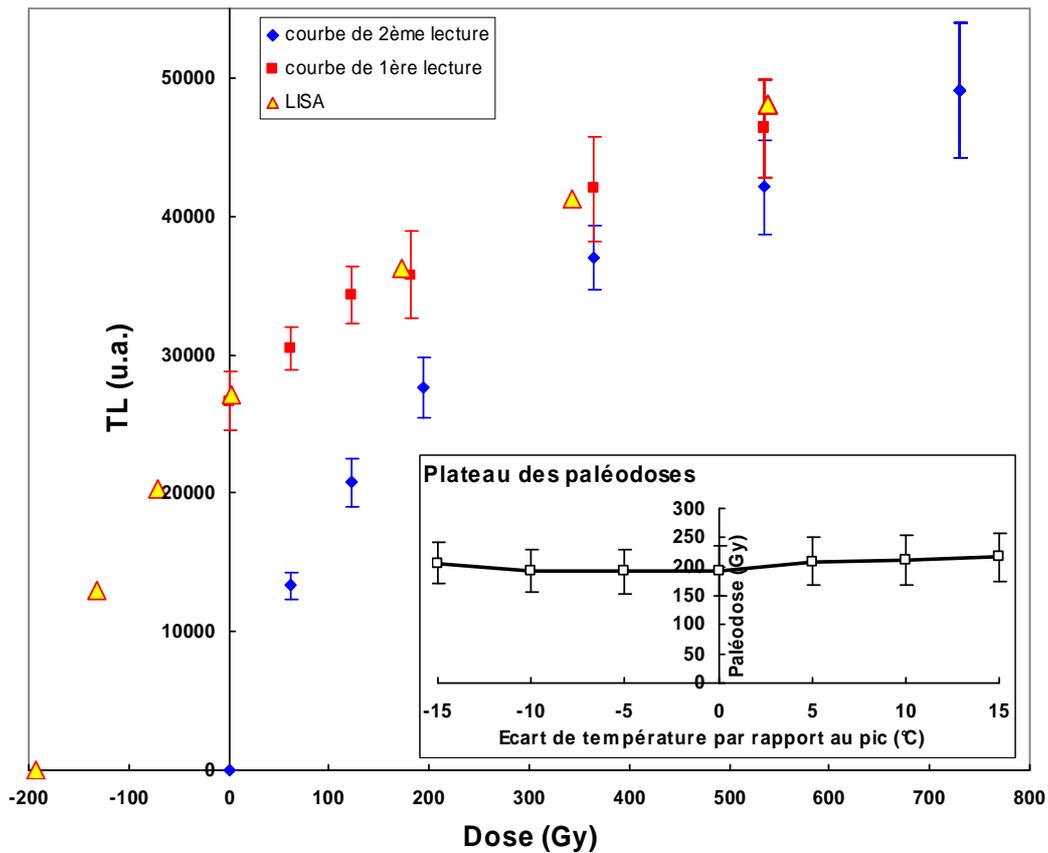


Figure 5.12 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLR MA pour les grains de quartz de granulométrie 200-250 μm de l'échantillon C397bis.

Dans le cadre d'une expérience complémentaire qui sera détaillée au chapitre 6, nous avons également testé l'approche TLR MA sur des grains de quartz de granulométrie 500-600 μm , broyés puis tamisés à 200-315 μm afin de disposer d'une poudre homogène, de même granulométrie que celle présentée au paragraphe précédent. Un préchauffage des aliquotes à 260°C/10s a été effectué avant la mesure de leur TL. La figure 5.13 illustre un problème récurrent dans ce type d'approche : celui des « accidents ». Dans la région N+300 Gy, la courbe de croissance de première lecture s'infléchit, ce qui tendrait à lui donner une forme légèrement sinueuse. Toutefois, compte tenu de la taille de l'incertitude sur l'amplitude de la TL, l'ensemble des points reste compatible avec une courbe plus régulière, de tendance exponentielle saturante, comme celle obtenue avec la granulométrie 200-250 μm . Or l'expérience de nombreuses années de mesure, aussi bien en TL rouge qu'en TL bleue, nous apprend que les deux types de comportement (sinueux ou plus régulier) se rencontrent avec le quartz. Il est donc difficile de trancher. Dans ce cas précis, un accident du même type se

produit également en seconde lecture (Figure 5.13). La paléodose évaluée avec la méthode de glissement LISA s'élève à 229 ± 32 Gy.

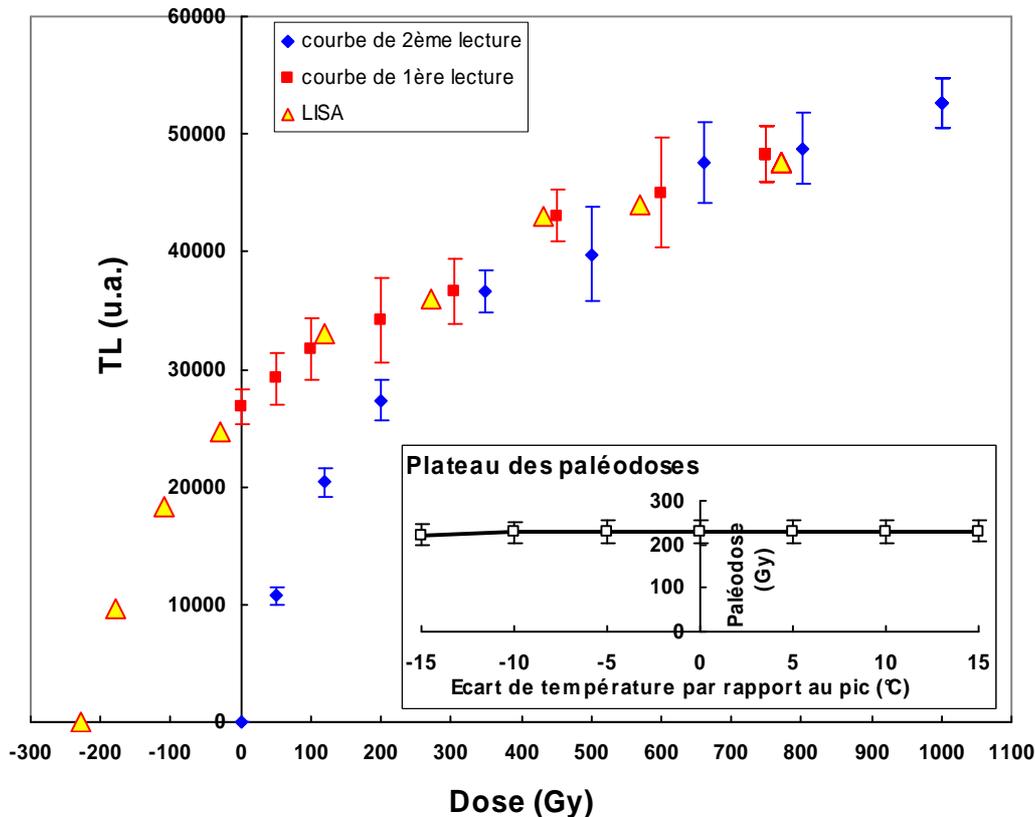


Figure 5.13 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLR MA pour les grains de quartz de granulométrie 500-600 μm broyés à 200-315 μm de l'échantillon C397bis.

Sur la fraction 850-1000 μm , broyée à 200-315 μm , nous avons testé l'approche TLR MA « standard », ainsi que sa variante décrite par Miallier et al. (2007) et qui repose sur l'exploitation du signal de TL résiduel des grains de quartz après un blanchiment à la lumière du jour. Le principe de cette nouvelle approche a été décrit au chapitre 3. Un premier lot de quartz a été divisé en 8 aliquotes qui ont ensuite été irradiées à des doses croissantes (à l'exception de l'une d'entre elles pour permettre la mesure de la TL naturelle) pour la construction des courbes de première lecture. Un second lot a été recuit à 380°C/16h, puis divisé en 8 aliquotes irradiées à des doses croissantes pour la construction des courbes de deuxième lecture. Chacune des aliquotes a été ensuite divisée en deux : une fraction a été stockée à l'abri de la lumière pour la mise en œuvre de la méthode TLR MA standard, l'autre a été exposée au soleil pendant un mois.

Pour l'échantillon non exposé à la lumière, la paléodose a été évaluée à 270 ± 37 Gy avec la méthode LISA. Toutefois, de même que pour la fraction 500-600, la courbe de

première lecture (Figure 5.14) présentait un accident à haute dose (augmentation brusque du signal), mais cette fois-ci dans la région N+600 Gy. Cet accident était par contre absent sur la courbe de deuxième lecture. Ce changement de forme constitue une limite à l'application de la méthode LISA et réduit la confiance accordée à résultat.

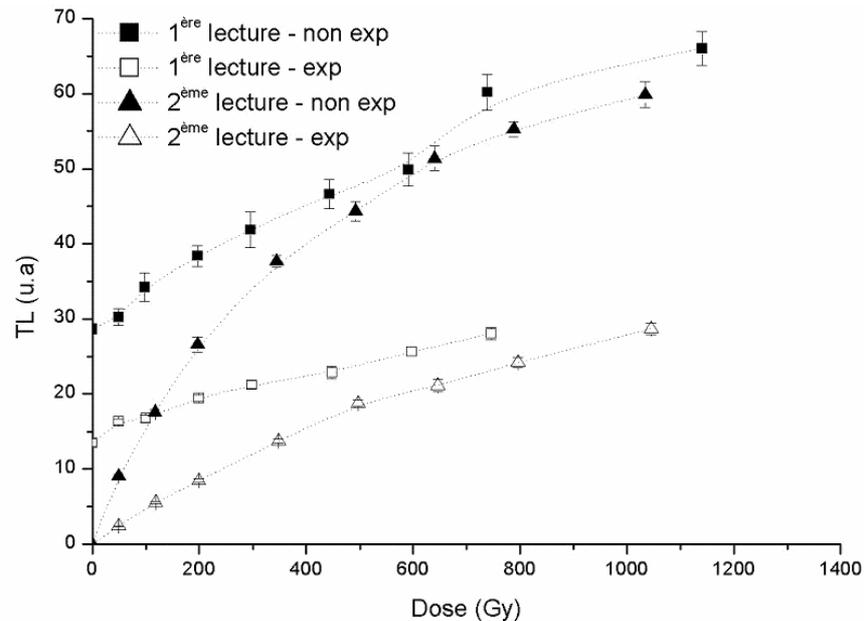


Figure 5.14 : Courbes de croissance obtenues en TL rouge pour les grains de quartz de granulométrie 850-1000 μm broyés à 200-315 μm de l'échantillon C397bis (Légende : non exp : échantillon non exposé à la lumière, exp : échantillon exposé à la lumière).

L'échantillon exposé au soleil présentait des courbes de TL assez similaires à celles de l'échantillon non exposé, mais à un niveau de signal plus faible. La TL rouge résiduelle augmentait significativement avec la dose d'irradiation administrée avant l'exposition au soleil (Figure 5.14).

Le rapport entre les signaux de TL des aliquotes exposées et non exposées à la lumière était pratiquement stable pour les courbes de première lecture, mais augmentait avec la dose pour les courbes de deuxième lecture (Figure 5.15), ce qui indique un changement significatif de forme entre ces deux séries.

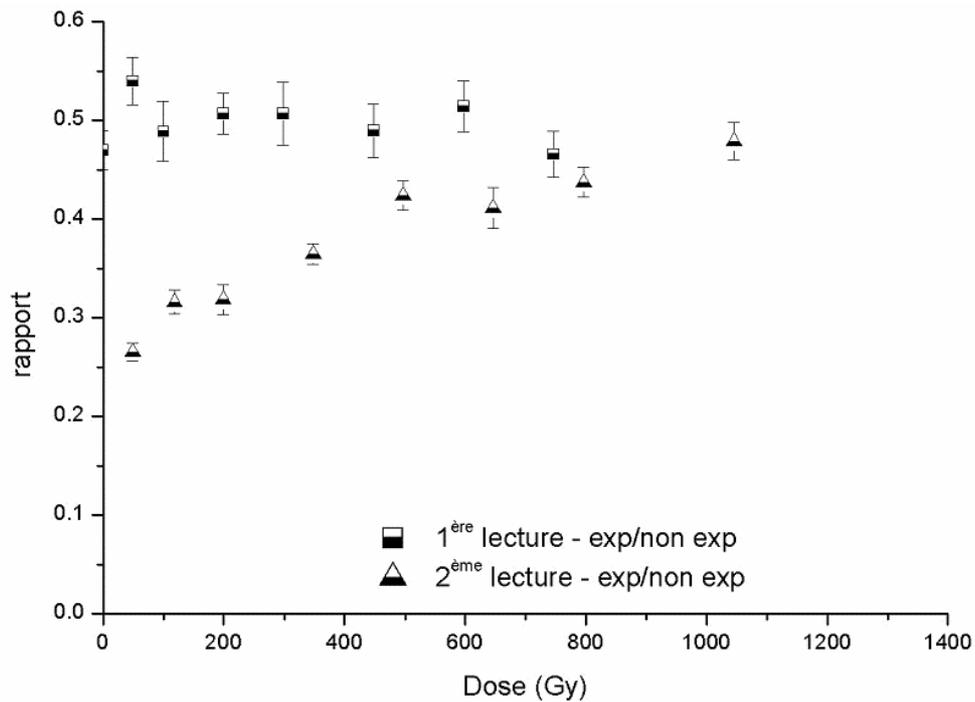


Figure 5.15 : Rapports de l'intensité des signaux de TL rouge des aliquotes exposées et non exposées à la lumière pour l'échantillon C397bis (Légende : non exp : échantillon non exposé à la lumière, exp : échantillon exposé à la lumière).

Pour l'échantillon exposé à la lumière, les courbes de croissance présentaient des différences de forme importantes. Il n'a donc pas été possible de déterminer la paléodose par une technique de glissement.

Contrairement à ce qu'avaient suggéré Westaway et Roberts (2006), la composante non blanchissable de la TL ne croît pas linéairement avec la dose d'irradiation, du moins dans le cas de l'échantillon étudié. L'utilisation de cette composante aurait constitué un moyen potentiel de s'affranchir des difficultés rencontrées pour déterminer la paléodose d'échantillons anciens, dont les courbes de croissance présentent des formes complexes, comme dans le cas de C397bis.

b) TLB MA

Lors de la mise en œuvre de l'approche TLR MA sur les fractions granulométriques 200-250 μm et 500-600 μm , une partie de chaque aliquote non utilisée pour la TL rouge avait été réservée pour tester l'approche TLB MA.

Pour la fraction 200-250 μm , un préchauffage des aliquotes à 250°C/10s a été effectué avant la mesure de TL (Figure 5.16).

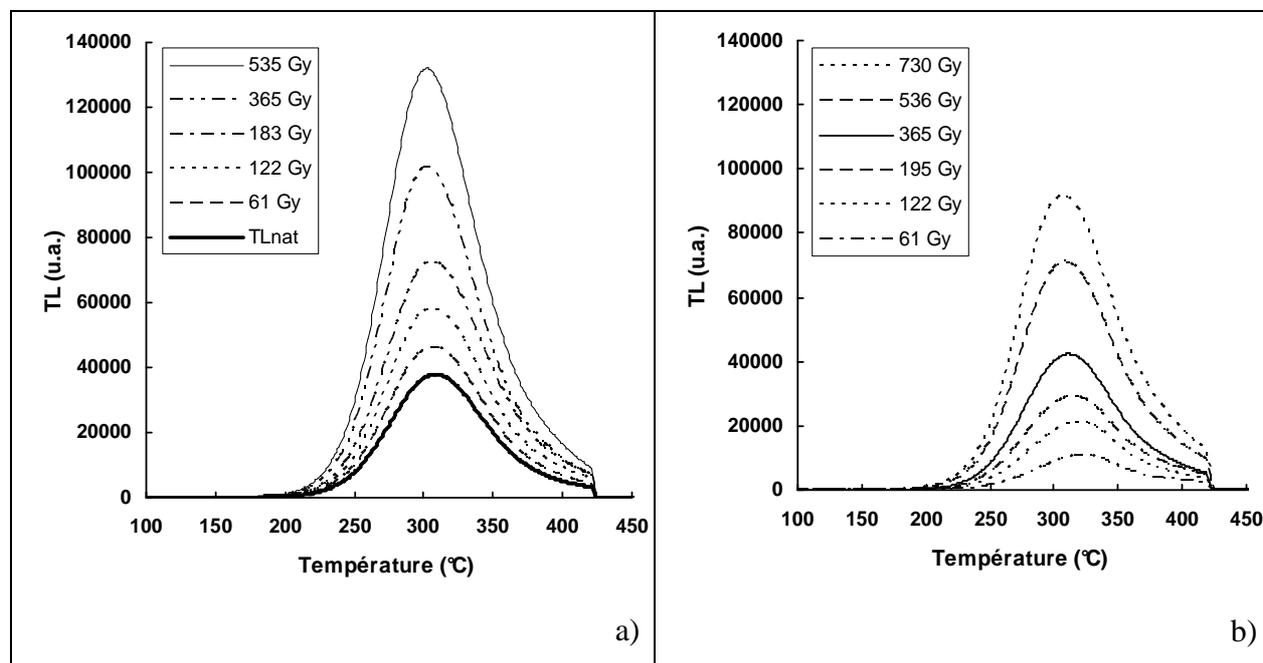


Figure 5.16 : Courbes de TL bleue pour les grains de quartz de granulométrie 200-250 μm de l'échantillon C397bis : a) 1^{ère} lecture, b) 2^{ème} lecture.

Les formes des courbes de première et de deuxième lecture (Figure 5.17) étaient différentes, et toutes deux assez sinueuses, ce qui a exclu l'utilisation de la méthode LISA pour la détermination de la paléodose. Dans ce cas, il sera admis que l'extrapolation linéaire de la courbe additive avec correction d'intercepte donne une valeur réaliste de la paléodose, soit 185 ± 25 Gy.

Pour la fraction 500-600 μm , broyée à 200-315 μm , les mesures de TL ont été réalisées après un préchauffage des aliquotes à 260°C/10s. A la différence de la courbe de deuxième lecture, la courbe de première lecture était très irrégulière (Figure 5.18). La paléodose a été évaluée à 246 ± 48 Gy avec la méthode de glissement LISA, un recouvrement des courbes de croissance ayant tout de même été obtenu après application d'un facteur s égal à 0,84.

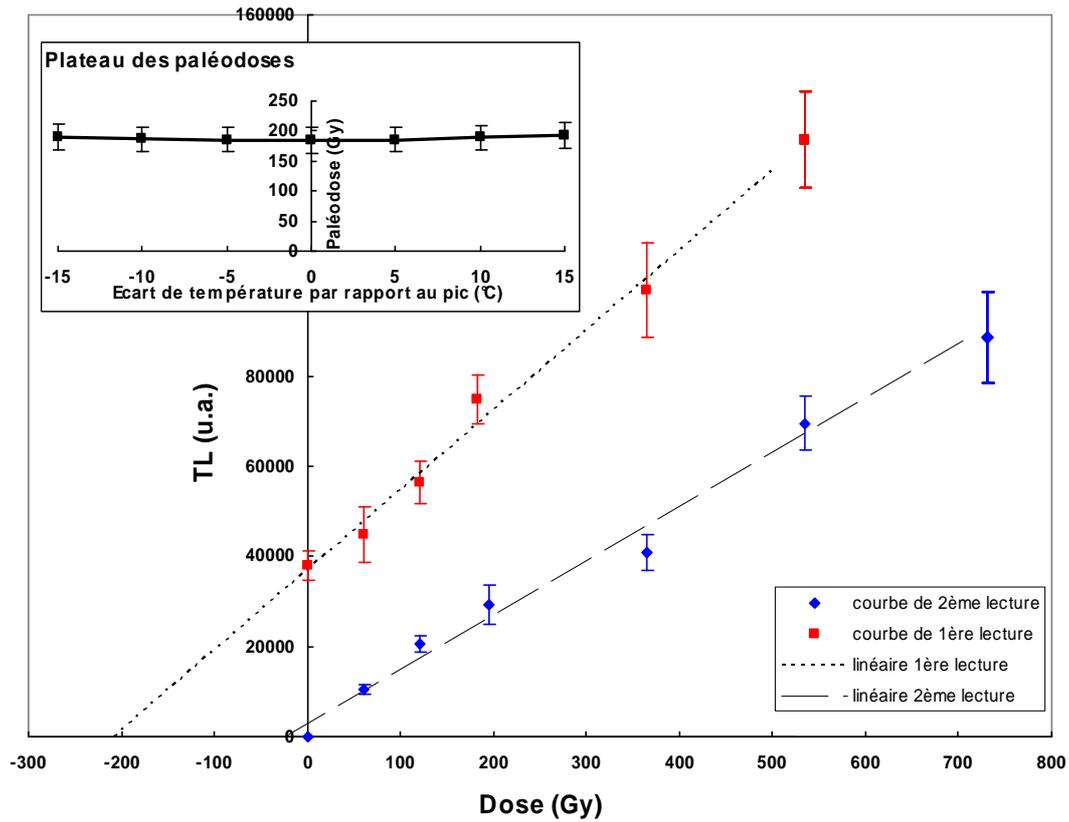


Figure 5.17 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLB MA pour les grains de quartz de granulométrie 200-250 μm de l'échantillon C397bis.

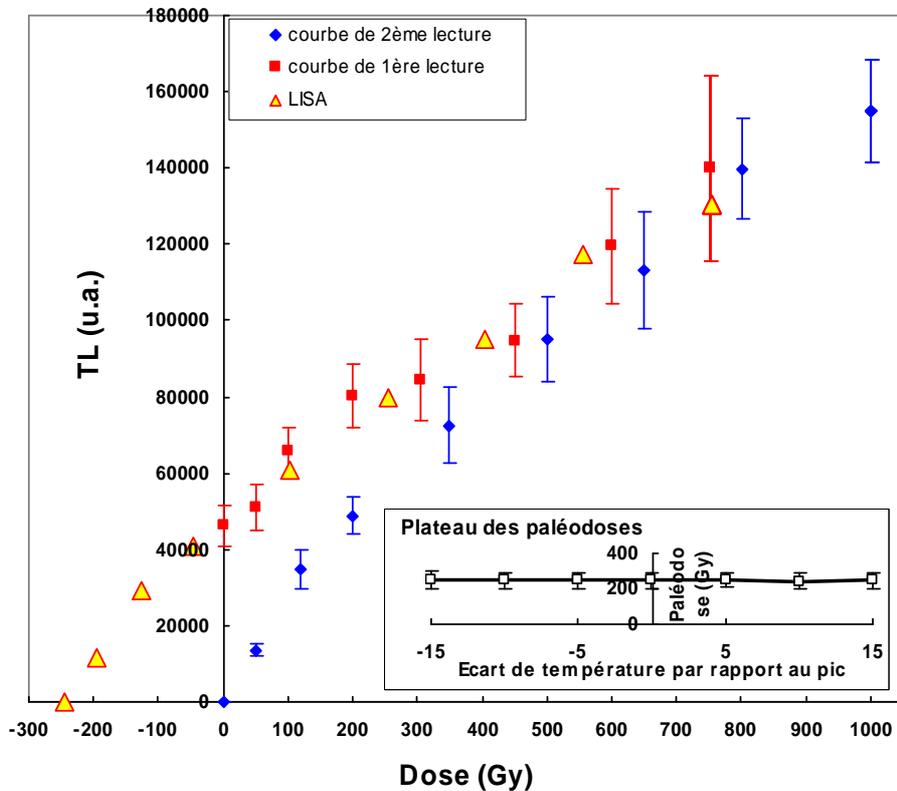


Figure 5.18 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLB MA pour les grains de quartz de granulométrie 500-600 μm broyés à 200-315 μm de l'échantillon C397bis.

c) TLB SAR

Les mesures de TLB SAR ont été réalisées sur la fraction 850-1000 μm broyée à 100-200 μm . Une série de 12 aliquotes a été mesurée pour estimer la paléodose. Une préchauffe à 290°C/10s avant les mesures de TL a été appliquée afin d'éliminer les pics apparaissant à basse température. Les aliquotes présentaient un taux de recyclage correct (égal à 1,03).

L'ensemble des plateaux de paléodoses est représenté sur la figure 5.19.a. Leur forme est assez reproductible, excepté pour une aliquote, mais les résultats sont très dispersés, ce qui traduit l'hétérogénéité importante de ces grains de quartz. La paléodose moyenne a été évaluée à 155 ± 18 Gy.

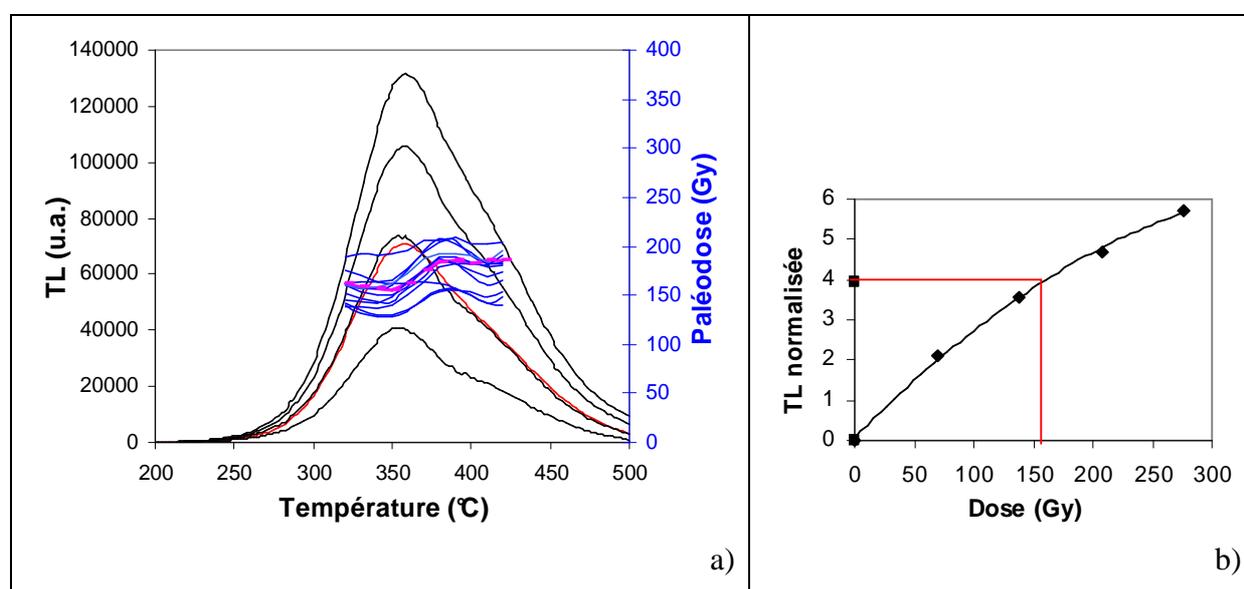


Figure 5.19 : Approche TLB SAR : a) courbes de TL bleue obtenues pour une aliquote de l'échantillon C397bis. Son plateau de paléodoses (pas d'intégration : 10°C) est figuré en rose ; b) courbe de régénération correspondante. Les plateaux de paléodoses des 11 autres aliquotes de la série mesurée sont représentés en bleu en a).

d) OSL

Pour l'approche OSL, nous avons utilisé les grains de quartz de la fraction 150-200 μm . Les signaux de 12 aliquotes ont été mesurés. Le taux de recyclage moyen était égal à 0,99, ce qui indique une correction efficace des changements de sensibilité. Le taux de récupération était inférieur à 1% pour toutes les aliquotes, ce qui suggère l'absence d'un transfert thermique significatif.

La paléodose moyenne a été évaluée à 246 ± 39 Gy. Nous avons observé une dispersion importante des paléodoses (15%). Les quartz ayant été chauffés par la coulée de

lave, l'hypothèse d'un blanchiment hétérogène de leur signal d'OSL pour expliquer cette dispersion semble écartée. La possibilité d'une hétérogénéité de l'échantillon du point de vue de la dosimétrie pourrait également être évoquée. En fait, nos difficultés semblent être directement liées au domaine de dose auquel appartient la paléodose de l'échantillon. En effet, la courbe de croissance du signal d'OSL du quartz sature généralement à environ 300 Gy, ce qui limite l'application de la méthode. Comme le montre la figure 5.20, la courbe de régénération était effectivement à la limite de la saturation pour les quartz extraits de C397bis.

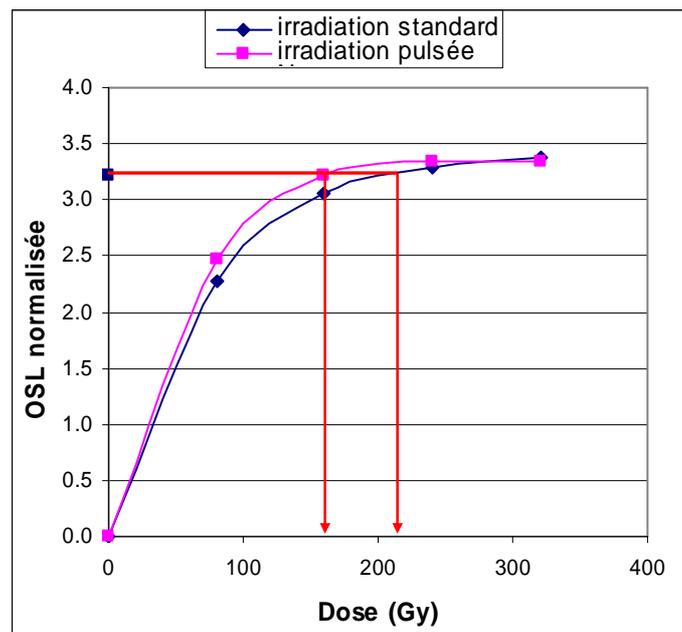


Figure 5.20 : Courbes de croissance obtenues en OSL pour une aliquote de l'échantillon C397bis. Les doses de régénération ont été administrées de manière standard pour l'une (i.e. en une seule exposition à la source de rayonnement artificiel) et par pulses de 10 Gy entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/0s pour l'autre. L'interpolation du signal d'OSL naturel normalisé sur l'une ou l'autre courbe conduit à des valeurs différentes pour la paléodose.

D'après un modèle de la luminescence du quartz proposé par Bailey (2004), la manière habituelle d'administrer des doses au laboratoire (à température ambiante et en une exposition unique à la source de rayonnement artificiel) pourrait conduire à une surestimation de la paléodose et à une dispersion importante des valeurs obtenues pour une série d'aliquotes. Cet effet, qui serait dû à la différence entre le débit de dose naturel et celui des sources de rayonnement utilisées au laboratoire, deviendrait significatif pour des paléodoses supérieures à 40 Gy. Il expliquerait également des situations pour lesquelles le signal naturel corrigé en sensibilité était plus élevé que le niveau de saturation prédit par l'exponentielle

saturante qui passait par les points de régénération. Ce cas, qui a été décrit par exemple par Armitage et al. (2000), excluait toute possibilité de déterminer la paléodose.

Pour remédier à ces problèmes, Bailey (2004) et Bailey et al. (2005) avaient suggéré une modification de la manière d'administrer les doses de régénération. Il s'agissait de les appliquer par pulses de 10 Gy, entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/0s. Nous avons testé cette nouvelle procédure d'irradiation pour nos échantillons. Pour chacune des aliquotes de la série mesurée précédemment, une seconde courbe de régénération a donc été construite de cette manière (Figure 5.20). Pour une même dose de régénération, les signaux d'OSL normalisés étaient plus élevés lors d'une administration de la dose par pulses. Cependant, l'écart entre les points de régénération obtenus se réduisait lorsque la dose de régénération augmentait, jusqu'à devenir pratiquement nul à 300 Gy. L'intérêt de la procédure d'irradiation pulsée est donc limité pour cet échantillon, même si la paléodose déduite (180 ± 23 Gy) est plus faible que celle obtenue avec la procédure d'irradiation standard.

Conjointement, nous avons vérifié que l'ordre de construction des courbes de régénération (*i.e.* en procédant d'abord à des irradiations standards, puis à des irradiations pulsées ou inversement) n'avait pas d'influence sur le résultat final. Pour cela, une seconde série de 12 aliquotes a été mesurée. Une première courbe de régénération a été construite avec des irradiations pulsées, puis une seconde courbe a été obtenue avec des irradiations standards. Les paléodoses déduites, respectivement de 172 ± 28 Gy et 225 ± 51 Gy, étaient compatibles avec celles obtenues, selon les mêmes conditions expérimentales (irradiation pulsée : 180 ± 23 Gy ou standard : 246 ± 39 Gy), lors de la première série de mesures. La dispersion était cependant un peu plus élevée pour la seconde série.

Par contre, nous n'avons pas étudié l'influence de la grandeur de la dose pulsée, ni celle de la température de chauffage entre les pulses, sur les résultats. Des mesures complémentaires seraient nécessaires pour vérifier si les paramètres retenus sont les plus appropriés pour notre échantillon. Cette remarque sera d'ailleurs valable pour tous les échantillons pour lesquels nous avons testé cette nouvelle procédure d'irradiation.

Quoi qu'il en soit, comme les courbes de croissance du signal d'OSL du quartz étaient proches de la saturation, que les doses d'irradiation aient été administrées de manière standard

ou pulsée, les paléodoses obtenues en OSL ne seront pas retenues pour le calcul de l'âge de la coulée.

5.2.3.1.2 Discussion

Un récapitulatif des paléodoses calculées pour l'échantillon C397bis avec les différentes approches mises en œuvre est donné dans le tableau 5.5, ainsi que les âges correspondants.

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
RTL MA	200-250	193 \pm 44	5,75 \pm 0,16	34 \pm 8
RTL MA	500-600 broyée à 200-315	229 \pm 32	5,29 \pm 0,14	43 \pm 6
RTL MA	850-1000 broyée à 200-315	270 \pm 37	4,85 \pm 0,12	56 \pm 8
BTL MA	200-250	185 \pm 25	5,75 \pm 0,16	32 \pm 4
BTL MA	500-600 broyée à 200-315	246 \pm 48	5,29 \pm 0,14	47 \pm 9
BTL SAR	850-1000 broyée à 100-200	155 \pm 18	4,85 \pm 0,12	32 \pm 4
OSL irradiation standard	150-200	246 \pm 39	5,83 \pm 0,17	42 \pm 7
OSL irradiation pulsée	150-200	180 \pm 23	5,83 \pm 0,17	31 \pm 4

Tableau 5.5 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C397bis. Les résultats en grisé ne seront pas retenus pour le calcul de l'âge de la coulée pour les raisons évoquées dans les paragraphes précédents.

De manière générale, les âges obtenus sont assez dispersés et l'incertitude associée à chacun d'eux varie de 12 à 23%.

La paléodose déterminée avec l'approche RTL MA augmente avec la taille des grains étudiés. Pourtant, la tendance inverse serait attendue (ou du moins des paléodoses assez comparables), puisque le débit de dose diminue légèrement lorsque la taille du grain augmente (en raison de l'atténuation du rayonnement β). La même tendance semble être observée en TLB MA. Le broyage des grains produit parfois de la luminescence parasite, mais il s'agit d'un phénomène de surface qui disparaît après un traitement des grains à HF dilué. Nous n'expliquons donc pas cette augmentation de l'âge apparent avec la granulométrie. Ce phénomène n'a d'ailleurs jamais été observé pour les échantillons de quartz étudiés jusqu'à présent par l'équipe du LPC. Des analyses complémentaires seraient nécessaires pour s'assurer que les grains des différentes fractions granulométriques étudiées appartiennent à la même « variété » de quartz. Pourtant, la forme des courbes de croissance paraît très similaire pour les 3 fractions granulométriques étudiées. Des différences seraient *a priori* attendues si les mesures étaient réalisées sur 3 types de quartz différents.

En TLB SAR, les mesures ont également impliqué des grains broyés, mais l'âge associé est comparable à ceux obtenus pour la fraction 200-250 μm en TL MA. Le problème

serait donc lié au protocole mixte multiple-aliquot. Cependant, des mesures complémentaires seraient nécessaires pour l'affirmer. C'est pourquoi l'ensemble des mesures réalisées sur les grains broyés sera exclu pour le calcul de l'âge de la coulée.

En OSL, l'âge obtenu avec la nouvelle procédure d'irradiation est également compatible avec ceux déterminés en TL MA sur la fraction 200-250 μm . Cependant, pour les raisons évoquées précédemment, il ne sera pas retenu pour dater la coulée.

5.2.3.2 Échantillon C396

5.2.3.2.1 Détermination de la paléodose

Les approches TLR MA et OSL ont été testées pour l'échantillon C396. Les comportements observés étaient similaires à ceux de C397bis.

a) TLR MA

Nous avons pratiqué un préchauffage à 260°C/10s sur les aliquotes, avant la mesure de leurs signaux de TL. Comme pour l'échantillon C397bis, les courbes de croissance présentaient une forme classique de la TL rouge (Figure 5.21). La paléodose calculée avec la méthode de glissement LISA était de 231 ± 34 Gy.

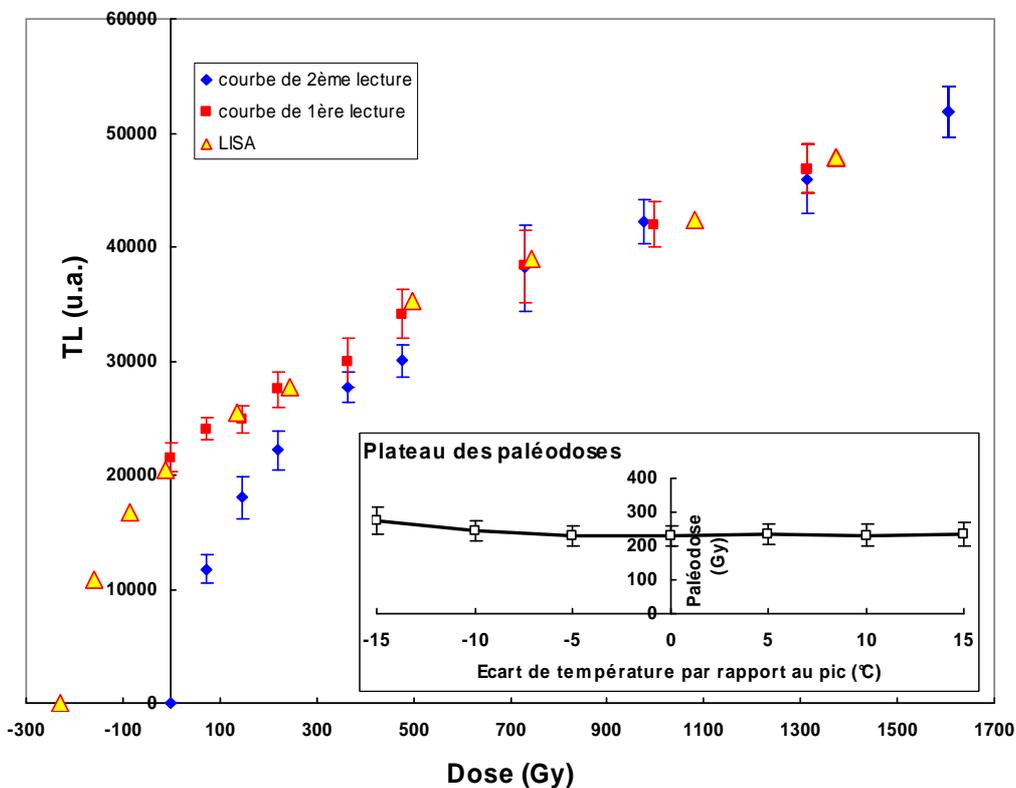


Figure 5.21 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLR MA pour l'échantillon C396.

b) OSL

Une série de 12 aliquotes a été mesurée. De même que pour C397bis, la courbe de régénération était à la limite de la saturation (Figure 5.22). Le taux de recyclage moyen était de 0,98 et le transfert thermique ne dépassait pas 1%. La paléodose déterminée en utilisant la procédure d'irradiation standard était de 279 ± 26 Gy. Nous avons ensuite testé la procédure d'irradiation proposée par Bailey (2004) et Bailey et al. (2005). La paléodose a alors été évaluée à 197 ± 14 Gy, mais la courbe de régénération restait proche de la saturation.. Pour les raisons déjà évoquées pour C397bis, nous ne retiendrons pas ces valeurs pour le calcul de l'âge de la coulée.

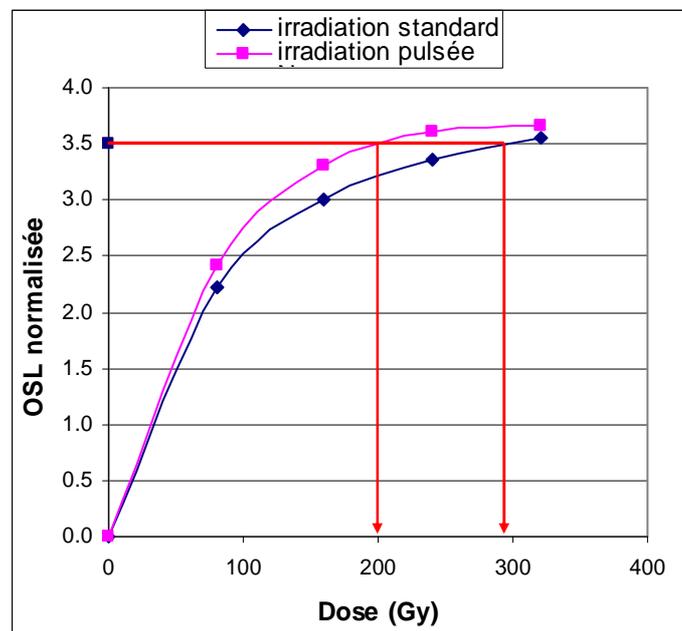


Figure 5.22 : Courbes de croissance obtenues en OSL pour une aliquote de l'échantillon C396. Les doses de régénération ont été administrées de manière standard pour l'une (i.e. en une seule exposition à la source de rayonnement artificiel) et par pulses de 10 Gy entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/0s pour l'autre. L'interpolation du signal d'OSL naturel normalisé sur l'une ou l'autre courbe conduit à des valeurs différentes pour la paléodose.

5.2.3.2.2 Discussion

Un récapitulatif des paléodoses calculées pour l'échantillon C396 est donné dans le tableau 5.6, ainsi que les âges correspondants. Seul le résultat de l'approche TLR MA sera retenu pour le calcul de l'âge de la coulée. Il est compatible avec ceux déterminés en exploitant les signaux de TL des quartz de granulométrie 200-250 μm de C397bis avec le protocole mixte multiple-aliquot.

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
RTL MA	200-315	231 ± 34	$6,46 \pm 0,18$	36 ± 5
OSL irradiation standard	200-250	279 ± 26	$6,59 \pm 0,18$	42 ± 4
OSL irradiation pulsée	200-250	197 ± 14	$6,59 \pm 0,18$	30 ± 2

Tableau 5.6 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C396. Les résultats en grisé ne seront pas retenus pour le calcul de l'âge de la coulée pour les raisons évoquées dans les paragraphes précédents.

5.2.3.3 Galets quartzeux

Les signaux de TL bleue de 7 galets (C404-1, C404-6, C404-8, C404-9, C404-10, C404-11 et C404-12) ont été étudiés avec le protocole mixte multiple-aliquot.

La détermination de la paléodose de certains de ces galets a présenté des difficultés. Pour l'échantillon C404-1, par exemple, nous avons observé un décalage en température entre les courbes de TL de première et de deuxième lecture. Le plateau de paléodoses n'était pas satisfaisant et, de plus, les formes des courbes de croissance différaient selon que l'on se place plutôt à gauche ou à droite du pic. Pour les galets C404-8, C404-9 et C404-11, la situation était également complexe et peu satisfaisante. Pour ces trois échantillons, les courbes de TL de première et de deuxième chauffe présentaient le même profil en fonction de la température (pas de décalage des pics après le recuit à 350°C dans le four), mais les mesures de TL étaient très dispersées. De plus, pour C404-11, les courbes de croissance présentaient des formes différentes. Ces 4 échantillons n'ont donc pas été retenus pour la datation du site.

En revanche, les mesures des galets C404-6 (Figure 5.23), C404-10 et C404-12 nous ont semblé satisfaisantes, mêmes si les mesures de TL des échantillons C414-10 et C404-12 étaient assez dispersées.

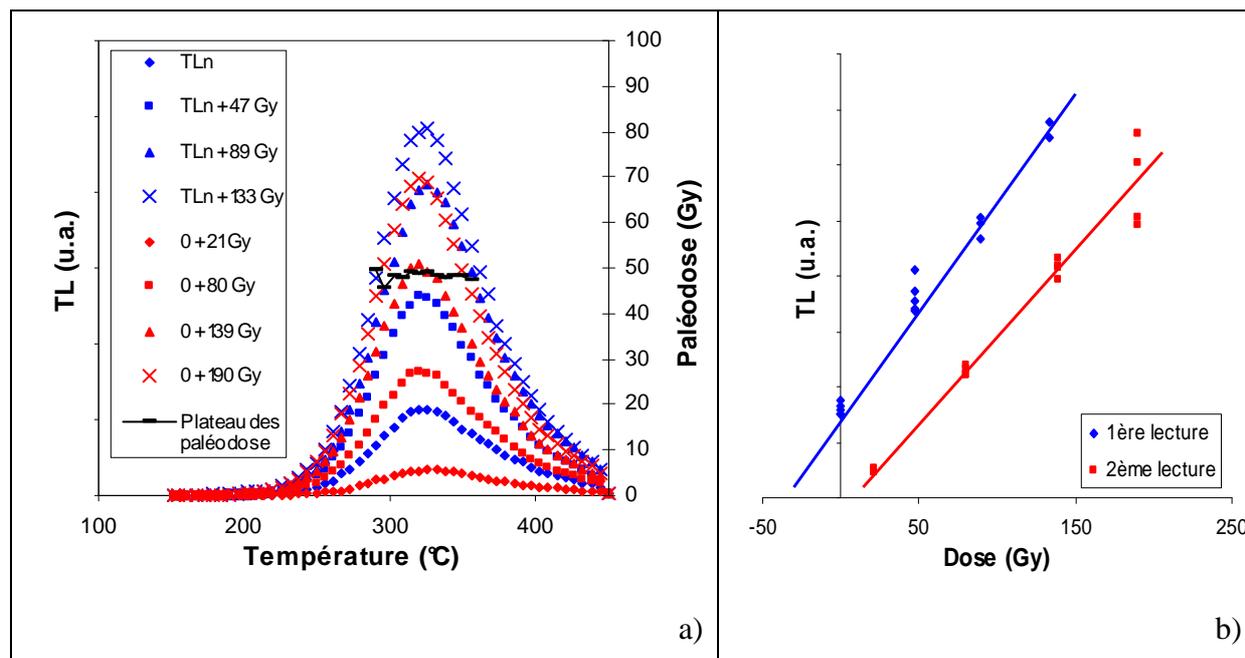


Figure 5.23 : Approche TLB MA pour le galet C404-6 : a) courbes de TL bleue et plateau des paléodoses ; b) courbes de croissance.

Les âges obtenus pour les galets C404-6, C404-10 et C404-12 sont compris entre 30 et 45 ka (Tableau 5.7).

Référence du galet	Paléodose (Gy)	Dose annuelle (mGy.an ⁻¹)	Age (ka)
C404-6	49 ± 2	1,62 ± 0,17	30 ± 4
C404-10	78 ± 7	1,73 ± 0,19	45 ± 7
C404-12	69 ± 10	1,64 ± 0,18	42 ± 8

Tableau 5.7 : Bilan des âges obtenus pour les galets.

5.2.3.4 Bilan général pour le site des Riaumes

Les échantillons C397bis, C396 et C404-i ont tous été chauffés au même moment par la même coulée. Les résultats obtenus par différentes méthodes de luminescence doivent correspondre à un âge unique. Nous avons retenus 6 résultats pour le calcul de ce dernier.

La moyenne pondérée peut être utilisée si les incertitudes sont correctement évaluées, ce qui n'est pas le cas. En pratique, nous avons vu que les paléodoses sont très difficiles à évaluer avec précision. C'est *a fortiori* vrai pour les incertitudes. Aussi, il est plus réaliste de

proposer comme âge moyen pour ce site, la moyenne arithmétique de toutes les mesures, soit 37 ka. L'incertitude estimée à partir de l'écart-type des résultats est de 6 ka. Compte-tenu de la grande variabilité de comportements TL observés, il est préférable de proposer un intervalle plus large dans lequel est compris l'âge probable de la coulée. Ses bornes sont évaluées à partir des âges extrêmes calculés, soit [30-4 ; 45+7]. Ainsi :

Age de la coulée des Riaumes : 37 [26 ; 52] ka

Contrairement à la majorité des autres sites, nous considérons que, aux Riaumes, la radioactivité dans le passé ne devrait pas être significativement différente de celle d'aujourd'hui car le sédiment était scellé sous des points hauts de la coulée. Cette hypothèse, suggérée par les observations de terrain, est confortée par le fait que les échantillons présentent des rapports isotopiques compatibles avec l'équilibre, aux incertitudes de mesure près (cf. annexe 2).

Jean-Pierre Valet et l'équipe du LGMT (Plénier et al., 2007) ont prélevé des échantillons de lave sur cet affleurement, respectivement pour des mesures de paléomagnétisme et pour une datation par la méthode K-Ar. Celle-ci a donné un âge de $41,0 \pm 2,0$ ka à la coulée, valeur qui est bien comprise dans l'intervalle que nous proposons. L'analyse de la lave n'a pas mis en évidence d'anomalies magnétiques.

5.2.4 Site du Fraisse 1

5.2.4.1 Détermination de la paléodose

Lors de la première étude effectuée en 2003 (Bassinot et al, 2003), les approches TLR MA et TLB MA avaient été utilisées pour déterminer la paléodose de grains de quartz de la fraction 200-315 μm extraits de l'échantillon C348. Nous rappelons ces résultats, puis nous les complétons par ceux obtenus en TLB SAR et en OSL sur les quartz de granulométrie 200-250 μm extraits du nouveau prélèvement.

a) TLR MA

Les mesures de TL avaient été effectuées après une préchauffe des aliquotes à 260°C/10s. La détermination de la paléodose (144 ± 17 Gy) avec la méthode de glissement LISA n'avait pas posé de problèmes (Figure 5.24).

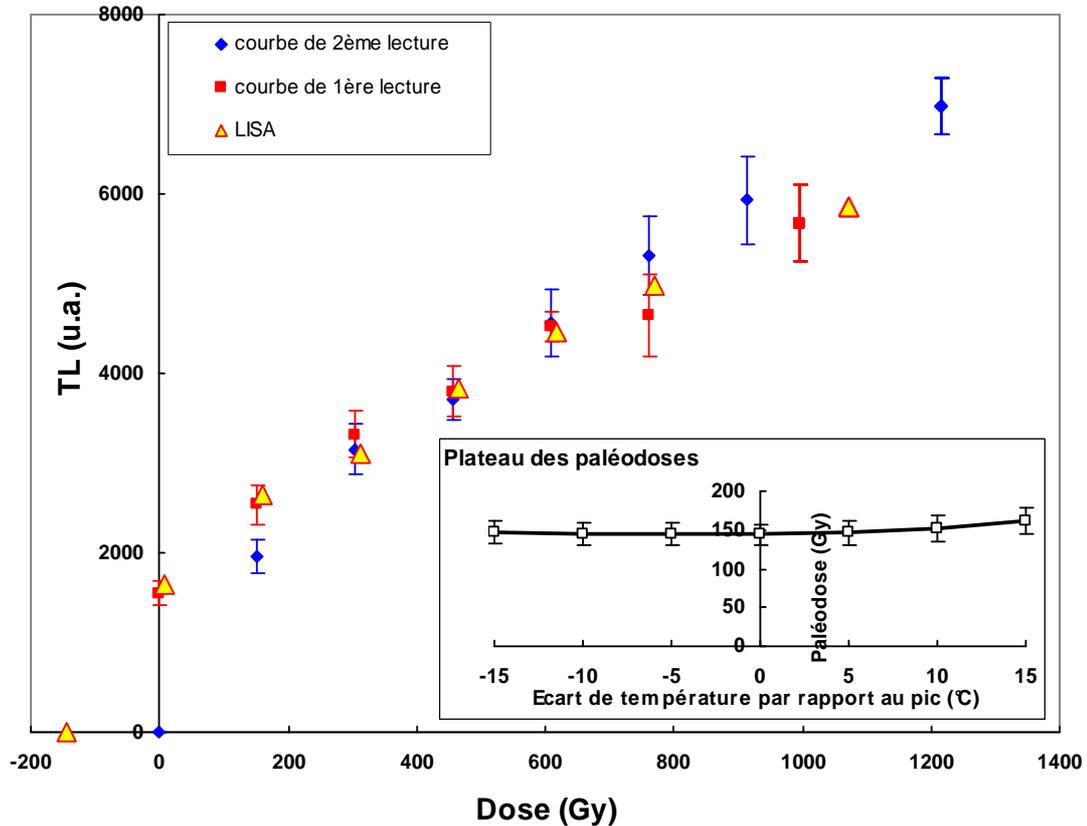


Figure 5.24 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLR MA pour l'échantillon C348.

b) TLB MA

Nous avons effectué une préchauffe des aliquotes à 300°C/10s avant la mesure de leur TL. La courbe de première lecture présentait un accident de croissance à 450 Gy (Figure 5.25). Le recouvrement des courbes de croissance était cependant suffisant et une paléodose de 144 ± 24 Gy avait été calculée avec LISA.

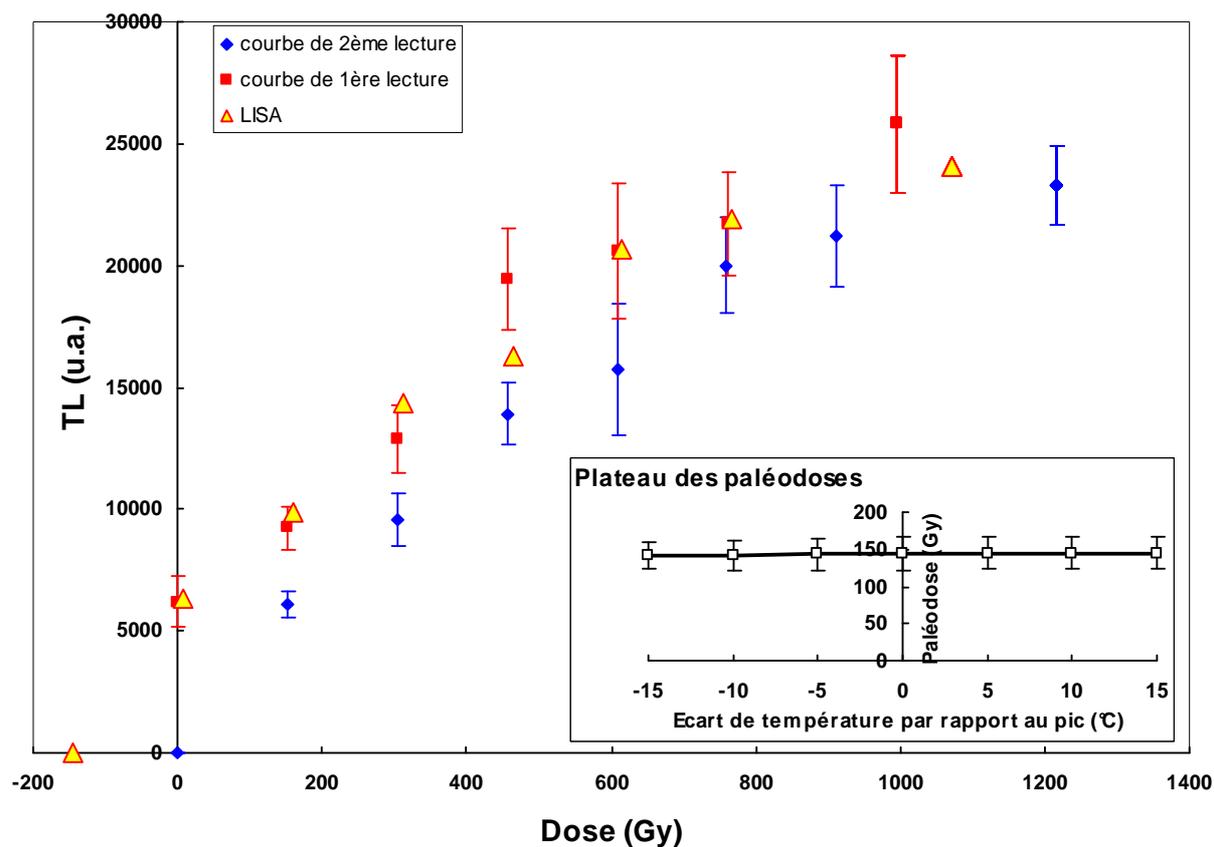


Figure 5.25 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLB MA pour l'échantillon C348.

c) TLB SAR

Avant chaque mesure de TL, les aliquotes étaient préchauffées à 300°C/10s. Le taux de recyclage moyen était de 0,96. Le plateau de paléodoses (Figure 5.26.a) était correct seulement sur le versant gauche du pic principal de TL. Ceci s'explique par le fait que les signaux de pics apparaissant à température plus élevée se superposent sur son versant droit. Cependant, la forme du plateau différait pour 3 des 12 aliquotes mesurées, ce qui traduit une hétérogénéité importante des grains de quartz, comme dans le cas de l'échantillon C397bis. Les mesures correspondantes n'ont pas été retenues pour le calcul de la paléodose moyenne. Celle-ci a été évaluée à 131 ± 17 Gy.

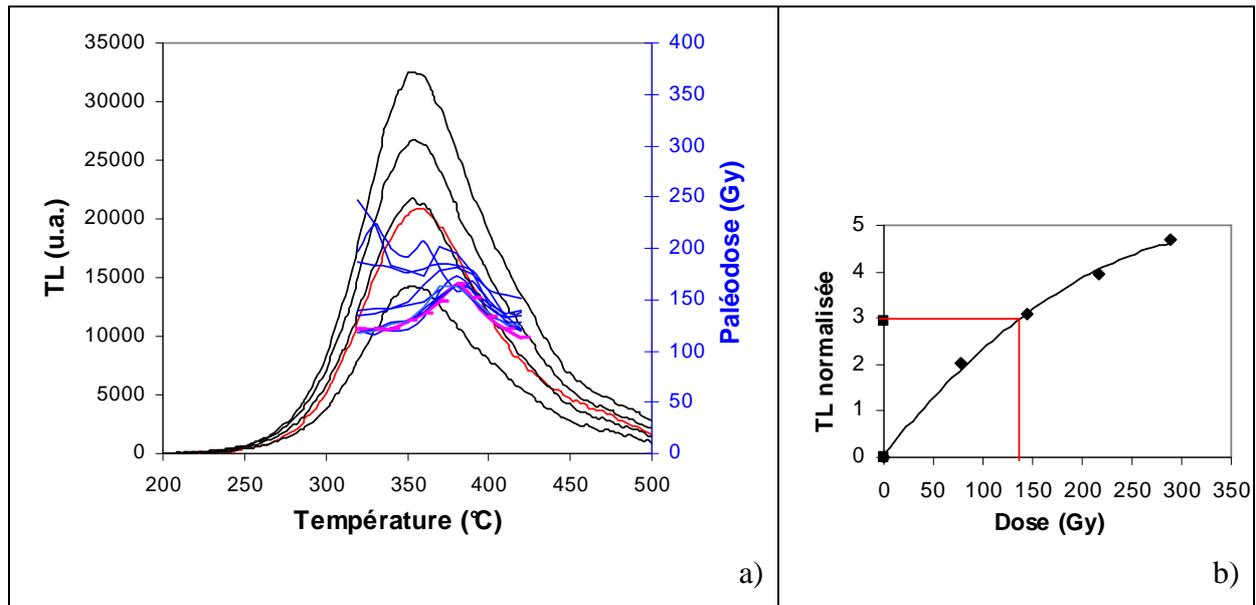


Figure 5.26 : Approche TLB SAR : a) courbes de TL bleue obtenues pour une aliquote de l'échantillon C348. Son plateau de paléodoses (pas d'intégration : 10°C) est figuré en rose ; b) courbe de régénération correspondante. Les plateaux de paléodoses des 11 autres aliquotes de la série mesurée sont représentés en bleu en a).

d) OSL

Les doses de régénération ont été administrées par pulses de 10 Gy entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/10s. Les changements de sensibilité au cours des cycles de régénération semblaient efficacement corrigés, puisque le rapport de recyclage moyen était égal à 1,02. Le taux de récupération était inférieur à 1%, ce qui suggère l'absence d'un transfert thermique significatif.

La paléodose moyenne déduite, 81 ± 12 Gy, était beaucoup plus faible que celle obtenue en TL, que ce soit avec le protocole mixte multiple-aliquot ou avec le protocole SAR, et, de plus, l'erreur associée était importante. Nous avons tenté d'identifier l'origine de cette différence.

La présence de feldspaths non éliminés par les traitements chimiques aurait pu éventuellement expliquer la dispersion des mesures. Nous avons donc cherché à apprécier la qualité de la séparation des minéraux en effectuant un test simple basé sur la propriété suivante : les quartz, comme nous l'avons précisé au chapitre 2, n'émettent pas de signal lors d'une stimulation optique dans le domaine de l'infrarouge, à la différence des feldspaths. Après les mesures permettant la construction de la courbe de régénération corrigée en sensibilité, une mesure est réalisée sans ajout préalable de dose pour le test de récupération, puis la mesure d'une dose de régénération est répétée pour le test de recyclage. Nous avons

ajouté une nouvelle fois cette dose de régénération, puis les minéraux de l'aliquote ont été soumis à une stimulation infrarouge à 50°C pendant 25s, suivie d'une stimulation OSL dans le bleu. Le signal émis lors de cette dernière stimulation est alors supposé provenir majoritairement des quartz. Si le rapport entre ce signal et celui mesuré pour la dose de régénération précédente est proche de 1, cela signifie que l'aliquote ne comporte pratiquement que des quartz. Ce test a en fait été réalisé pour tous les échantillons étudiés dans ce travail. Pour C348, le rapport moyen valait 0,97 et nous en avons conclu que la séparation des minéraux avait été efficace.

Au cours de l'étude préliminaire réalisée en 2003, la mesure des signaux d'OSL de quelques aliquotes avait révélé que la courbe de croissance des signaux de régénération saturait. Ce comportement n'a pas été observé pour les quartz extraits du nouveau prélèvement, comme le montre la figure 5.27. Le sédiment prélevé étant très homogène, nous excluons l'hypothèse d'une différence importante de débit de dose pour les deux prélèvements. Nous attribuons les phénomènes observés (sous-estimation de la paléodose et dispersion des mesures) à une exposition accidentelle de l'échantillon à la lumière, malgré les précautions prises lors de son prélèvement et de son traitement au laboratoire. Les résultats de l'approche OSL ne seront donc pas retenus pour le calcul de l'âge de la coulée.

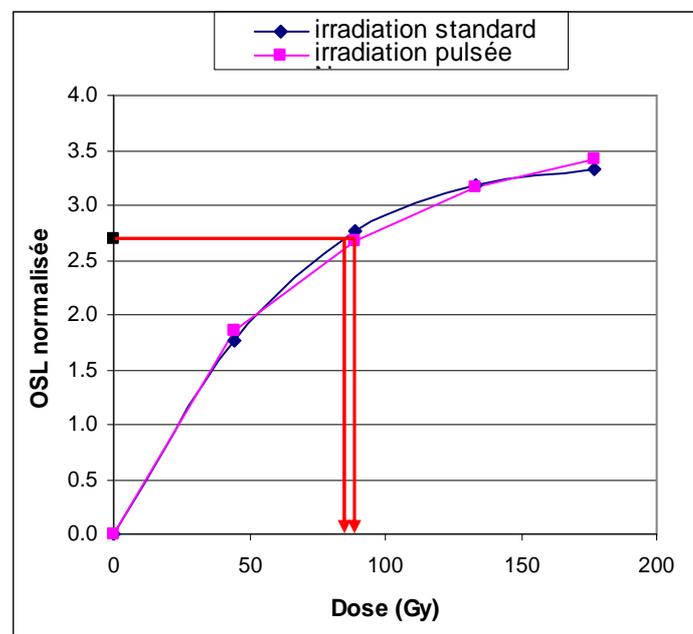


Figure 5.27 : Courbes de croissance obtenues en OSL pour une aliquote de l'échantillon C348. Les doses de régénération ont été administrées par pulses de 10 Gy entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/0s pour l'une et de manière standard (i.e. en une seule exposition à la source de rayonnement artificiel) pour l'autre. L'interpolation du signal d'OSL naturel normalisé sur l'une ou l'autre courbe conduit à des paléodoses très peu différentes.

Notons que pour chacune des aliquotes mesurées au cours de ce travail, une seconde courbe de croissance a été construite en administrant les doses de régénération de manière standard (*i.e.* au cours d'une exposition unique à la source de rayonnement). Elle s'est avérée pratiquement indiscernable de la courbe construite en procédant à des irradiations pulsées (Figure 5.27) et par conséquent la paléodose moyenne, évaluée à 88 ± 17 Gy, était comparable à celle déterminée précédemment. Pourtant, d'après Bailey (2004) et Bailey et al. (2005), des différences sont visibles dès que la paléodose atteint 40 Gy. L'intérêt de la nouvelle procédure d'irradiation serait donc limité pour certains échantillons.

5.2.4.2 Discussion

Pour les raisons évoquées précédemment, nous retiendrons les résultats obtenus avec les approches TLR MA, TLB MA et TLB SAR pour la détermination de l'âge de cette coulée. Les 3 valeurs (Tableau 5.8) sont compatibles. Pour les raisons déjà données pour le site des Riaumes, il est préférable de calculer la moyenne arithmétique de ces valeurs et de lui associer un intervalle dans lequel est compris l'âge probable de la coulée, soit [31 ; 47] ka.

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
RTL MA	200-315	144 ± 17	$3,61 \pm 0,11$	40 ± 5
BTL MA	200-315	144 ± 24	$3,61 \pm 0,11$	40 ± 7
BTL SAR	200-250	131 ± 17	$3,64 \pm 0,11$	36 ± 5
OSL irradiation standard	200-250	88 ± 17	$3,64 \pm 0,11$	24 ± 5
OSL irradiation pulsée	200-250	81 ± 12	$3,64 \pm 0,11$	22 ± 3

Tableau 5.8 : Bilan des âges obtenus pour l'échantillon C348. Les résultats en grisé ne seront pas retenus pour le calcul de l'âge de la coulée pour les raisons évoquées dans les paragraphes précédents.

Le taux d'humidité était de 4% au moment du prélèvement de l'échantillon, mais la topographie du site suggère que ce taux a probablement été plus élevé à certaines périodes dans le passé (quand la coulée était encore en fond de thalweg et non encore démantelée par l'érosion). Nous considérerons que 4 % est une valeur minimale (le sédiment s'assèche aujourd'hui à l'affleurement) et 30% une valeur maximale (valeur supposée à saturation en eau). L'âge maximal de la coulée serait donc de 53 ± 7 ka. Ainsi :

Age de la coulée du Fraisse 1 = 39 [31 ; 60] ka

5.2.5 Site du Fraise2

5.2.5.1 Détermination de la paléodose

a) TLR MA

Les mesures de TL, réalisées après un préchauffage à 320°C/10s, étaient peu dispersées. La courbe de première lecture présente un changement de forme à 150 Gy. Ce phénomène n'est pas observé en deuxième lecture. Le glissement de cette courbe selon l'axe des abscisses a néanmoins permis sa superposition avec la courbe de première lecture (Figure 5.28). L'approche TLR MA a conduit à une paléodose de 148 ± 17 Gy avec la méthode LISA.

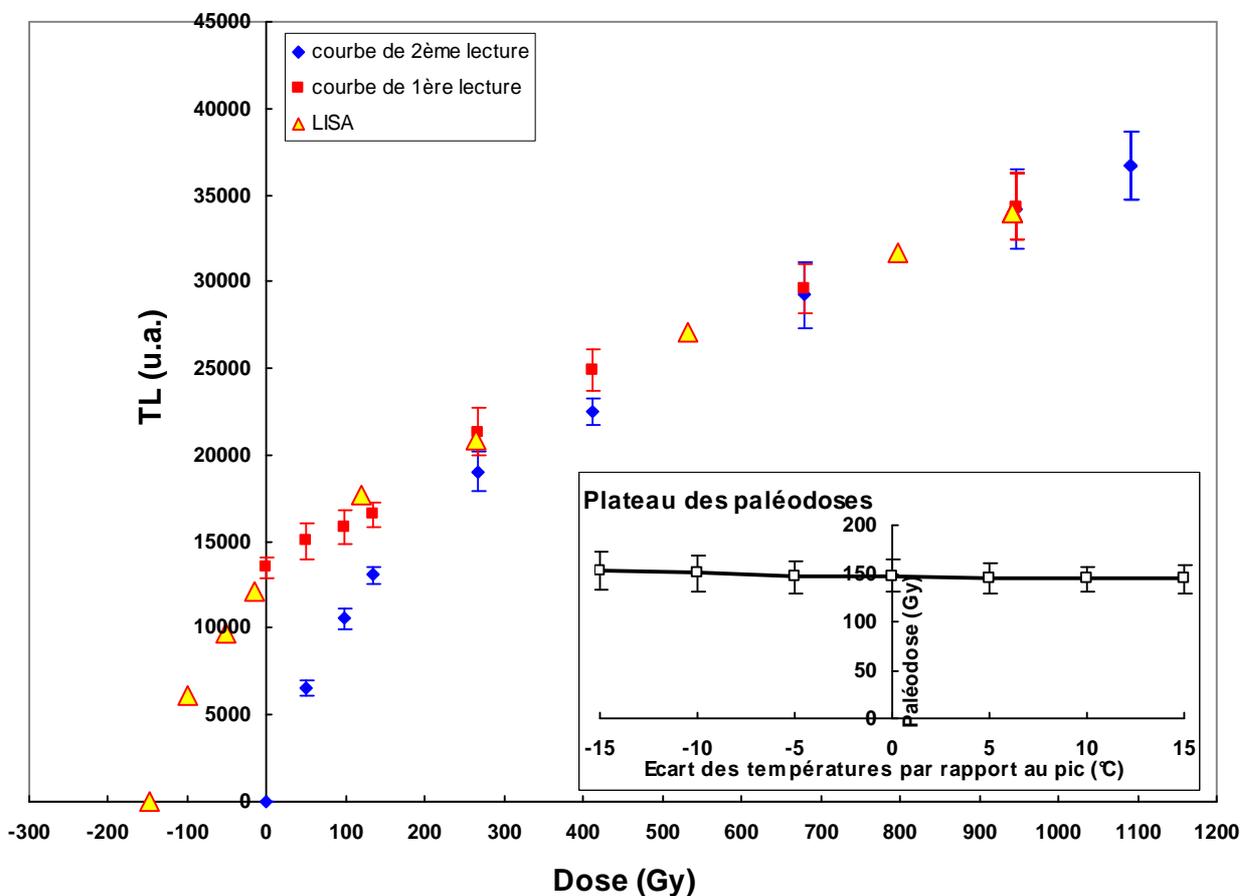


Figure 5.28 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLR MA pour l'échantillon C408.

b) TLB MA

Les mesures de TL, réalisées après une préchauffe à 230°C/10s, étaient peu dispersées. La croissance des courbes de première et de deuxième lecture était linéaire. Après glissement de cette dernière selon l'axe des abscisses et l'application d'un facteur s égal à 1,13, elles se

superposaient parfaitement (Figure 5.29). Cette méthode a donné une paléodose de 167 ± 18 Gy. L'utilisation d'une méthode linéaire avec correction d'intercepte conduit au même résultat (172 ± 17 Gy) et, dans les deux cas, le plateau des paléodoses est très satisfaisant.

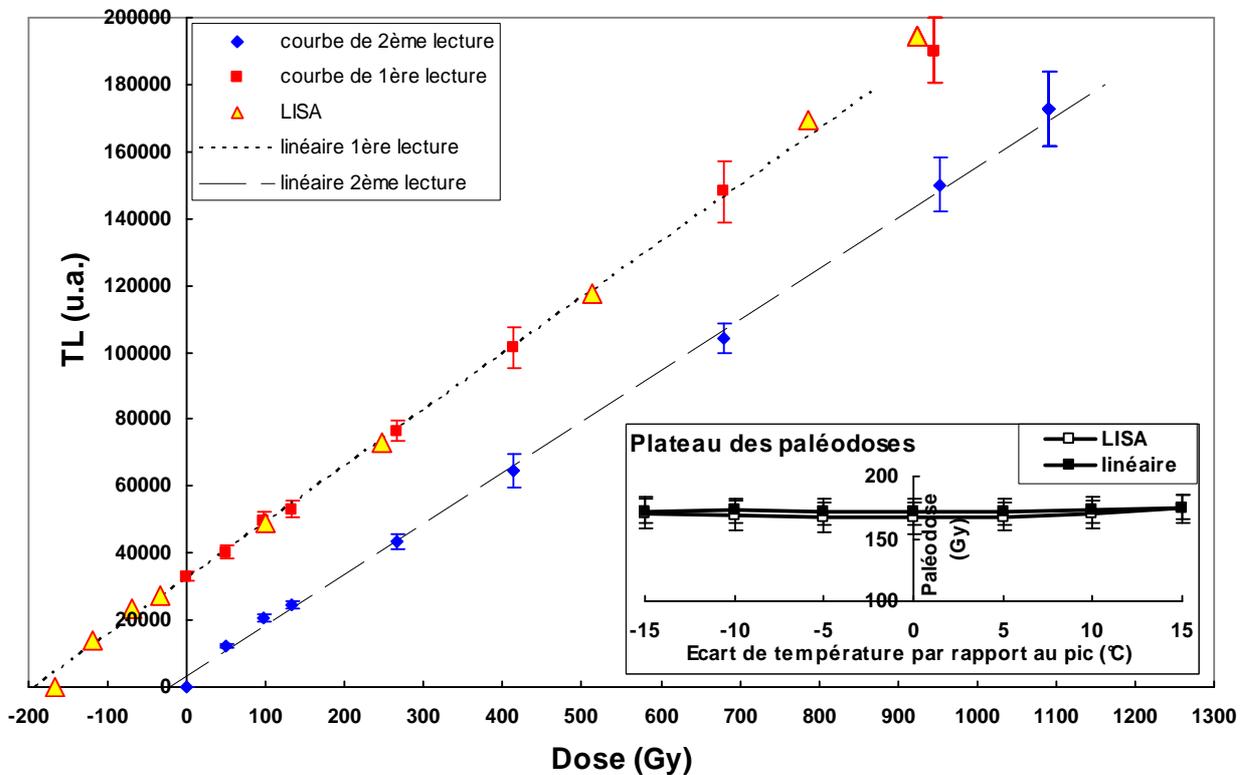


Figure 5.29 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLB MA pour l'échantillon C408.

c) TLB SAR

Nous avons mesuré les signaux de TL de 10 aliquotes de quartz de la fraction granulométrique 200-315 μm de l'échantillon C408. Le taux de recyclage moyen était de 1,05. Le test du plateau des paléodoses n'était pas vérifié pour le pic principal (Figure 5.30.a) et les résultats étaient assez dispersés. La paléodose moyenne était de 184 ± 15 Gy.

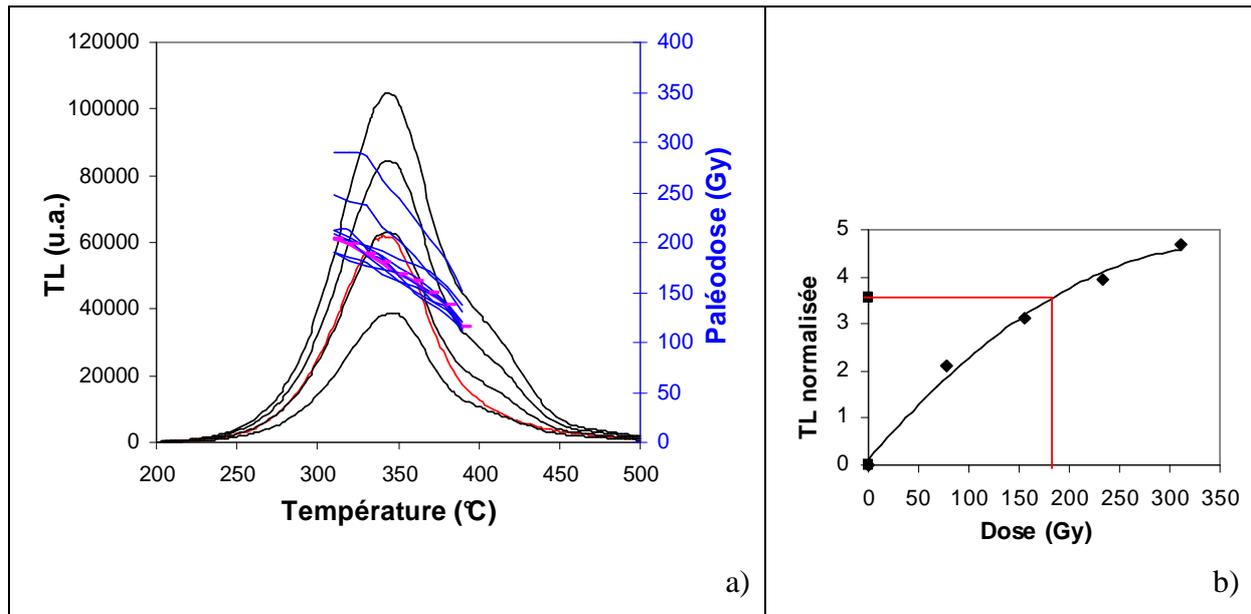


Figure 5.30 : Approche TLB SAR : a) courbes de TL bleue obtenues pour une aliquote de l'échantillon C408. Son plateau de paléodoses (pas d'intégration : 10°C) est figuré en rose ; b) courbe de régénération correspondante. Les plateaux de paléodoses des 9 autres aliquotes de la série mesurée sont représentés en bleu en a).

d) OSL

Nous avons mesuré les signaux d'OSL de 12 aliquotes de la fraction granulométrique 200-315 μm de l'échantillon C408. Les doses de régénération ont d'abord été administrées par pulses de 10 Gy entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/10s. Le rapport de recyclage moyen était égal à 0,98. Nous n'avons pas observé de transfert thermique significatif, le signal de récupération représentant moins de 1% du signal naturel corrigé. La paléodose moyenne a été évaluée à 136 ± 11 Gy.

Nous avons ensuite construit une seconde courbe de régénération (Figure 5.31) en procédant à des irradiations de manière standard. La paléodose moyenne était de 175 ± 14 Gy. Nous avons donc vérifié que cette méthode conduisait à une paléodose significativement plus élevée que celle déterminée avec la procédure proposée par Bailey (2004) et Bailey et al. (2005), mais la dispersion des mesures était comparable. Pour le calcul de l'âge de la coulée, nous retiendrons donc la paléodose déterminée avec la nouvelle procédure d'irradiation

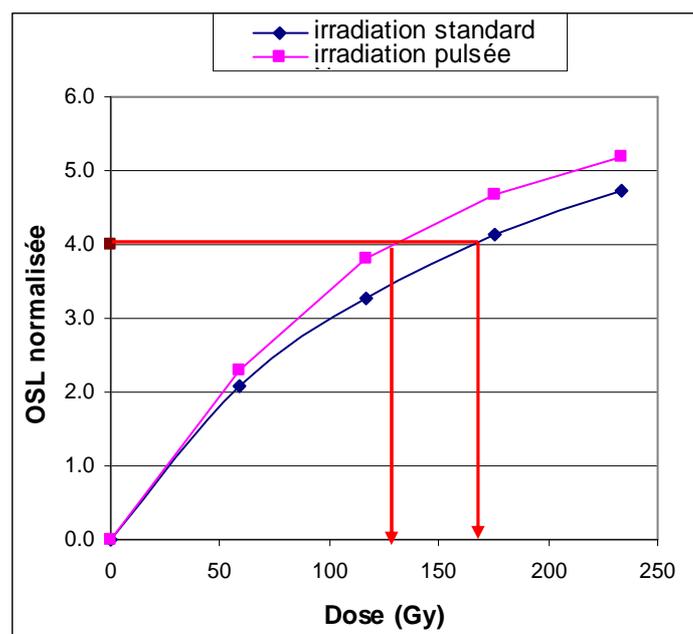


Figure 5.31 : Courbes de croissance obtenues en OSL pour une aliquote de l'échantillon C408. Les doses de régénération ont été administrées par pulses de 10 Gy entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/0s pour l'une et de manière standard (i.e. en une seule exposition à la source de rayonnement artificiel) pour l'autre. L'interpolation du signal d'OSL naturel normalisé sur cette dernière conduit à une surestimation de la paléodose.

5.2.5.2 Discussion

Le bilan des âges obtenus avec les différentes approches est donné dans le tableau 5.9. En adoptant le même point de vue que pour les autres sites, nous choisissons de faire une moyenne simple pour donner l'âge du site du Fraisse 2 et de lui associer un intervalle dans lequel est compris l'âge probable de la coulée. Les âges minimal et maximal de la coulée sont calculés respectivement pour des teneurs en humidité nulle et à saturation (valeur supposée : 30%), pour tenir compte de la méconnaissance de la teneur en humidité dans ce sédiment par le passé. Ainsi :

Age de la coulée du Fraisse 2 : 43 [29 ; 68] ka

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
RTL MA	200-315	148 \pm 20	3,69 \pm 0,11	40 \pm 6
BTL MA	200-315	167 \pm 18	3,69 \pm 0,11	45 \pm 5
BTL SAR	200-315	184 \pm 15	3,69 \pm 0,11	50 \pm 4
OSL irradiation standard	200-315	175 \pm 14	3,69 \pm 0,11	47 \pm 4
OSL irradiation pulsée	200-315	136 \pm 11	3,69 \pm 0,11	37 \pm 3

Tableau 5.9 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C408. Le résultat en grisé ne sera pas retenu pour le calcul de l'âge de la coulée pour les raisons évoquées dans les paragraphes précédents.

5.2.6 Bilan général pour les coulées en aval de Volvic

Les coulées des Riaumes, du Fraisse 1 et du Fraisse 2 appartiennent à la fenêtre temporelle de l'excursion de Laschamp. Cependant, l'incertitude sur les résultats est très importante et ne permet pas de conclure si l'ensemble des Riaumes et celui du Fraisse sont de même âge. La nature de la lave et les observations de terrain ne permettent pas d'avancer qu'une coulée est distincte de l'autre en nature ou en âge. Bien que le site des Riaumes (460m) soit plus élevé que le Fraisse (410m), l'altitude n'est pas un critère : les deux coulées reposent sur un sédiment argilo-sableux dans lequel on ne décèle aucune trace d'une coulée plus ancienne qui pourrait suggérer une chronologie relative. Les lignes de contours reportées sur la dernière édition de la carte volcanologique (Boivin et al., 2004) suggèrent des superpositions de coulées à partir de considérations topographiques, mais nous ne les avons pas observées concrètement sur le terrain. Soit, donc, il y a un ensemble de coulées d'âges voisins ou identiques qui se sont épanchées sur un territoire présentant des déclivités dans différentes directions ; soit il y a localement un empilement de coulées. Cette dernière hypothèse expliquerait l'âge plus ancien ($63,4 \pm 4,8$ ka) obtenu par Guérin (1983).

5.3 Secteur de Royat

5.3.1 Présentation du secteur géographique et échantillonnage

Dans la vallée de Royat (Figure 5.32) se sont épanchées plusieurs coulées volcaniques dont il reste aujourd'hui, au niveau de l'agglomération, deux ensembles de coulées superposées, séparés l'un de l'autre par un torrent, la Tiretaine. A l'origine, elles devaient combler entièrement la vallée, puis elles ont été incisées de façon érosive par les eaux torrentielles. Il est actuellement impossible de déterminer l'ordre stratigraphique initial des coulées.

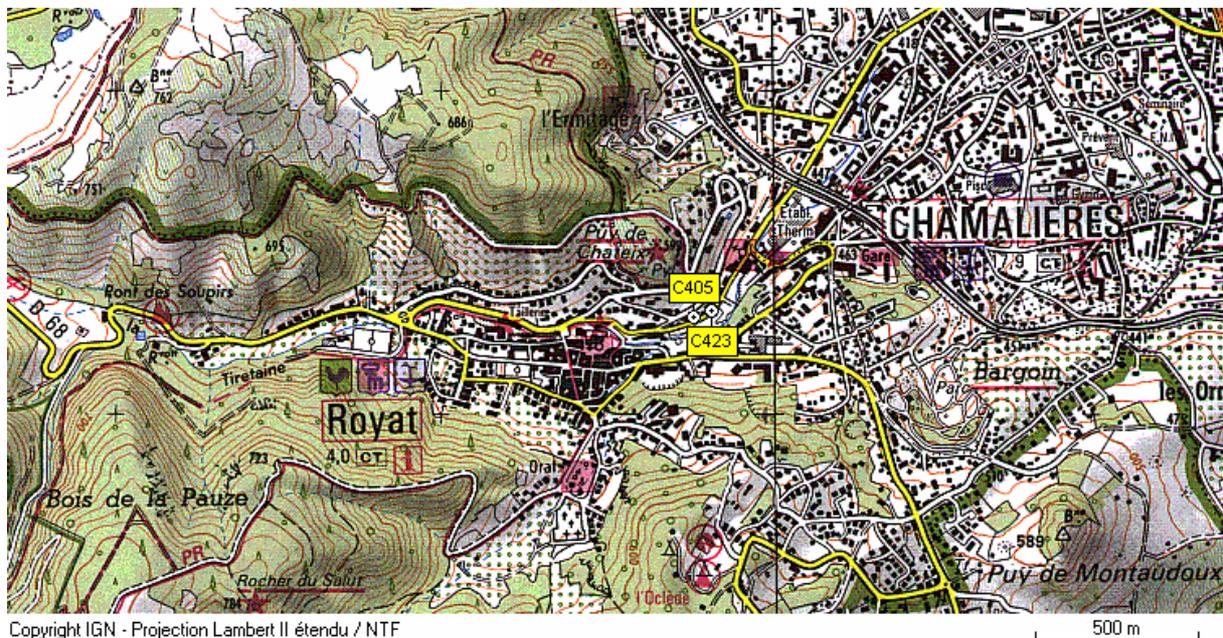


Figure 5.32 : Secteur de Royat.

Dans le secteur étudié ici, au niveau du parking de la Grotte des Laveuses, nous distinguons plusieurs coulées qui ont toutes la même nature trachy-basaltique, avec des compositions chimiques presque identiques (cf. annexe 2), de sorte que seules leurs situations respectives permettent de les distinguer les unes des autres.

Du côté sud se présente une puissante coulée prismée (échantillon de lave C423G) qui semble issue du volcan de Grave Noire (âgé d'environ 60 ka, d'après De Goër et al., 1993). Elle n'a pas été étudiée ici et il n'est pas possible de la raccorder stratigraphiquement aux autres coulées.

Du côté nord, sont observables plusieurs coulées venues depuis l'ouest par la vallée de la Tiretaine et dont l'origine commune est attribuée au Petit Puy de Dôme, volcan complexe, antérieur au Puy de Dôme (donc plus ancien que 11 ka environ : Boivin et al., 2004). La coulée la plus haute (échantillon de lave C405L) se situe au dessus de la route (Avenue de la Vallée). Elle est visible dans une coupe verticale due en partie à l'érosion et en partie aux travaux de voirie. Son épaisseur est de 3 à 5 m environ. Elle semble affectée d'un pendage vers l'intérieur de la vallée. Elle repose sur un sédiment sableux rouge qui a été échantillonné (C405) en vue de sa datation. La coulée suivante (échantillon de lave C423L) est visible au dessous de la route, dans la paroi nord du parking. Son épaisseur est de l'ordre de 2 à 4 m. Elle n'est pas observable dans sa totalité, étant partiellement cachée par des maçonneries. Son rapport stratigraphique à la coulée précédente n'est pas visible. Elle se situe à une altitude nettement plus basse (une dizaine de mètres) et, dans le cas où il s'agirait de la même coulée, cela s'expliquerait par une forte pente de la paléo-vallée. Un élément suggère cependant qu'il pourrait s'agir d'une coulée différente : elle repose sur des sédiments assez différents. Deux unités sont observables, à partir du contact avec la coulée : une cendre volcanique d'aspect altéré, qui n'a pas été analysée et le sédiment C423 qui a été échantillonné pour une tentative de datation. Sous ce sédiment apparaît le toit d'une coulée volcanique plus ancienne (échantillon de lave C518), de même nature que les précédentes. La couche de sédiment C423 entre les coulées a une épaisseur de l'ordre de 50 cm à l'endroit où elle a été échantillonnée (entrée est du parking). Dans un autre affleurement, situé 35 m plus à l'ouest, sur le flanc nord du parking, elle est quasi inexistante.

Les premières datations relatives à ces coulées ont été fournies par Huxtable et al. (1978). Elles ont été réalisées par la TL bleue des « grains fins » et ont donné, en moyenne $29 \pm 2,6$ ka pour C405 et $25,2 \pm 1,2$ ka pour C423. En 1983, G. Guérin a daté certaines de ces coulées, en amont de Royat, par la TL des feldspaths extraits de la lave elle-même. Il a obtenu des âges de $43,5 \pm 4,1$ ka et $40,6 \pm 3,1$ ka. Il n'est pas possible de savoir à quelles coulées ces âges se rapportent au niveau de Royat. En 1985, l'équipe de datation du LPC a obtenu un âge de 37 ± 7 ka (Raynal et al., 1985) par la TL bleue du quartz sur des colluvions sableuses cuites par une coulée à 600 m en amont du site étudié ici (Boulevard de la Taillerie).

En résumé, en l'état actuel, il n'est pas possible de préciser la chronologie relative de cet ensemble de coulées. Toutefois l'ordre de grandeur des âges déjà obtenus et le fait que certaines d'entre elles présentent un magnétisme rémanent légèrement anormal (cf chapitre 1)

conduit à faire l'hypothèse qu'elles se situent dans la période de Laschamp au sens large, soit entre 35 et 45 ka environ.

Les coordonnées UTM (WGS 84) des prélèvements de sédiment effectués dans ce secteur sont données dans le tableau 5.10.

Site	Référence des échantillons	Coordonnées	
Royat route	C405	504172	5068010
Royat parking	C423	504224	5068027

Tableau 5.10 : Coordonnées UTM des prélèvements de sédiment effectués dans le secteur de Royat.

5.3.2 Analyses des sédiments

Le sédiment rouge C405 a la consistance d'un sable grossier. L'analyse de celui-ci en lame mince (P. Boivin) est la suivante : il s'agit d'un grauwacke rubéfié à texture très poreuse, pauvre en fines (Figure 5.33). Il contient les éléments ci-après :

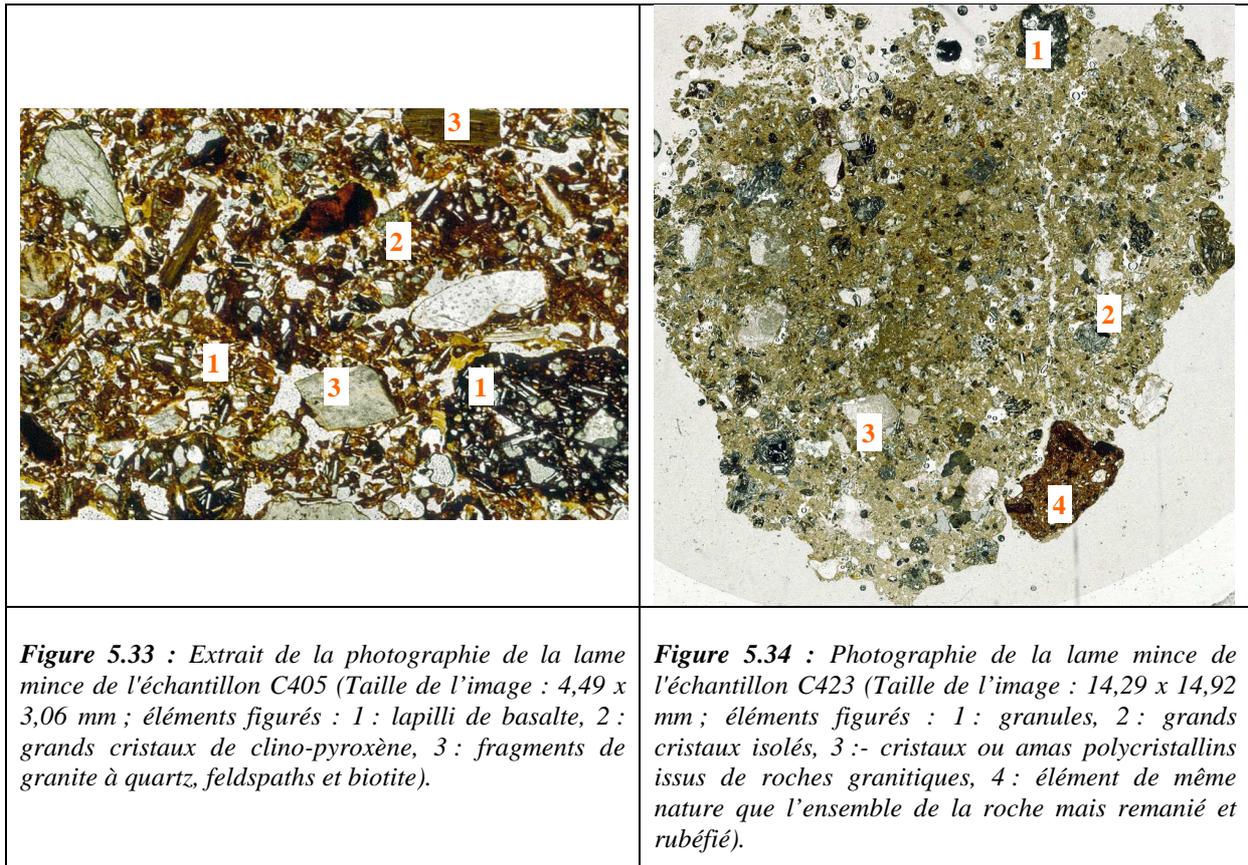
- des lapilli de basalte, vésiculés, à mésostase vitreuse (rouge orangée à noire), avec olivine, clino-pyroxène et plagioclase,
- des grands cristaux de clino-pyroxène vert, nombreux, à cuticule vitreuse,
- des fragments de granite à quartz, feldspaths et biotite.

La matrice fine est collée aux grains (au moment de la cuisson ?) et remplit leurs vacuoles, ménageant ainsi une porosité très importante partiellement remplie d'un ciment brun-orangé clair, fibro-radié, biréfringent (zéolite ?).

La description pétrographique (P. Boivin) du sédiment C423 (Figure 5.34) a montré qu'il s'agissait d'un grauwacke riche en éléments fins et comprenant des granules plus ou moins arrondis de lave variées :

- un basalte à olivine, clino-pyroxène, plagioclase, opaques et verre incolore,
- un basalte à olivine, cristallites de plagioclase, verre brun à jaune abondant,
- un trachy-basalte à clino-pyroxène, plagioclase, opaques...

Le sédiment montre aussi des grands cristaux isolés, gainés de verre brun de clino-pyroxène vert et d'olivine, des cristaux ou amas poly-cristallins issus de roches granitiques, des grains de quartz, feldspath et biotite et, enfin, un élément de même nature que l'ensemble de la roche mais remanié et rubéfié. La matrice, fine et abondante, contient les mêmes éléments, plus fins, avec des phyllo-silicates et des hydroxydes issus de l'altération.



5.3.3 Échantillon C423

Nous avons effectué une tentative de datation en TLR MA sur les grains de quartz de granulométrie 200-315 μm extraits de ce prélèvement. Les mesures de TL, réalisées sans préchauffage, se sont révélées difficiles à exploiter. Il serait donc nécessaire de préparer un nouvel échantillon et d'effectuer de nouvelles mesures.

5.3.4 Échantillon C405

Pour l'échantillon C405, nous avons testé les approches TLR MA, TLB MA et OS� sur les grains de quartz de la fraction granulométrique 200-315 μm .

5.3.4.1 Détermination de la paléodosé

a) TLR MA

Les mesures de TL ont été réalisées sans préchauffe. Un accident de croissance a été observé pour la courbe de première lecture à N+100 Gy (Figure 5.35). Le recouvrement de la

courbe de deuxième lecture avec la précédente était limitée. Le plateau des paléodoses était cependant correct et la paléodose calculée avec la méthode LISA était de 130 ± 14 Gy.

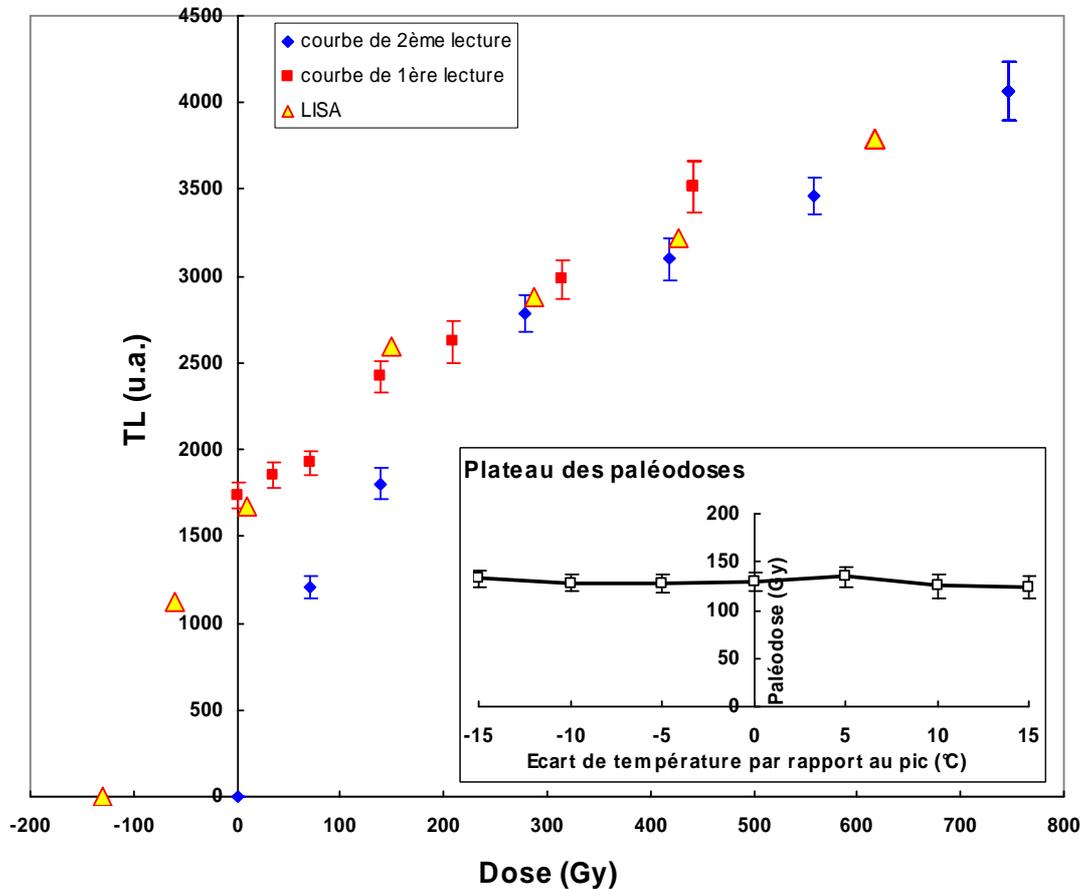


Figure 5.35 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLR MA pour l'échantillon C405.

b) TLB MA

Nous n'avons pas préchauffé les aliquotes avant de mesurer leurs signaux de TL. Les courbes de croissance de première et de deuxième lecture étaient pratiquement linéaires (Figure 5.36). La paléodose a été évaluée à 123 ± 13 Gy avec la méthode LISA et à 132 ± 13 Gy avec une méthode linéaire avec correction d'intercepte. Le plateau des paléodoses étant meilleur avec la méthode linéaire, nous retiendrons cette dernière valeur pour le calcul de l'âge correspondant.

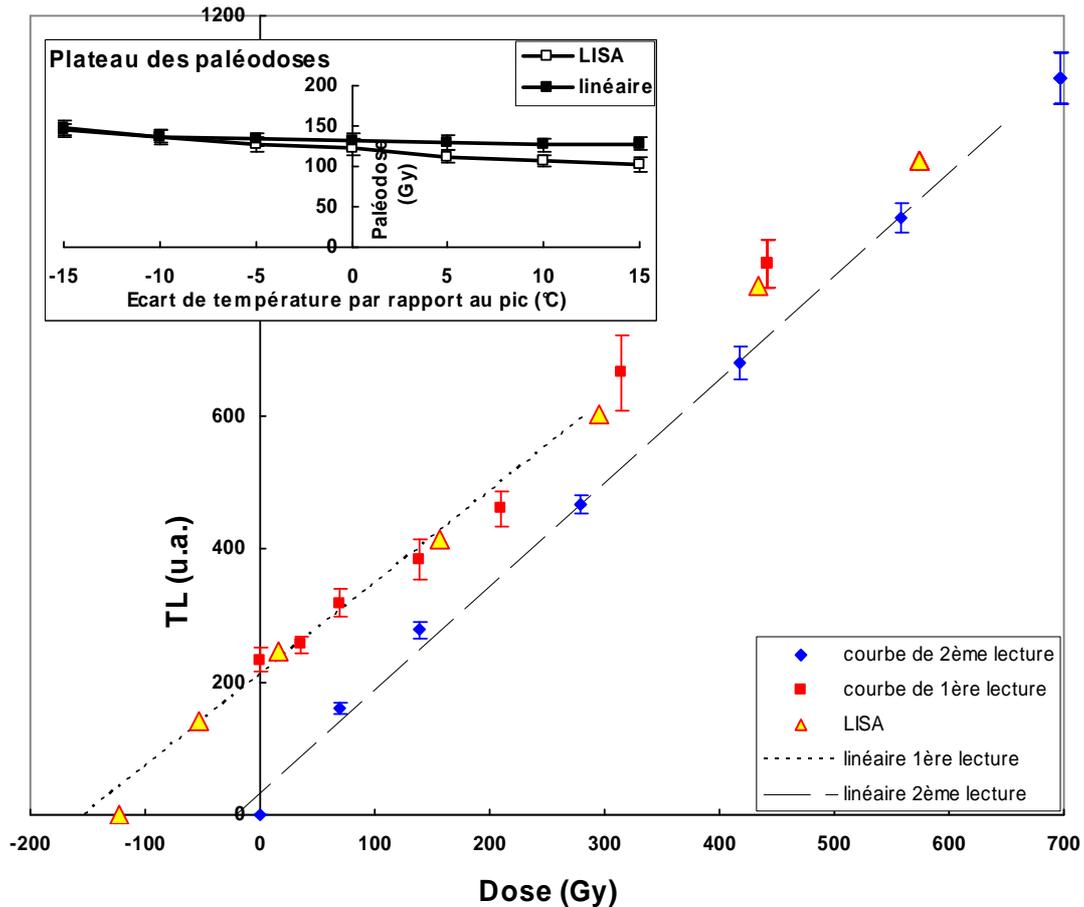


Figure 5.36 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLB MA pour l'échantillon C405.

c) OSL

Les signaux d'OSL de 12 aliquotes ont été mesurés. Nous avons construit les courbes de régénération en administrant les doses de manière pulsée. Le transfert thermique était négligeable, mais le test de recyclage n'était pas vérifié, le taux de recyclage moyen étant de 2,2. Pour cette raison, nous ne retiendrons pas les résultats de cette approche pour le calcul de l'âge de la coulée.

5.3.4.2 Discussion

Les âges calculés à partir des résultats obtenus par différentes approches sont donnés dans le tableau 5.11. L'âge moyen est de 38 ± 4 ka.

De même que pour les sites du Fraisse 1 et du Fraisse 2, nous donnons des âges minimal et maximal pour tenir compte de la méconnaissance de la teneur en humidité dans ce

sédiment par le passé. Ces âges sont calculés respectivement pour des teneurs en humidité nulle et à saturation (valeur supposée : 30%) : 31 ± 3 et 45 ± 5 ka. Ainsi :

Age de la coulée de Royat : 38 [28 – 50] ka.

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
RTL MA	200-315	130 ± 14	$3,47 \pm 0,10$	38 ± 4
BTL MA	200-315	132 ± 13	$3,47 \pm 0,10$	38 ± 4

Tableau 5.11 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C405.

L'équipe du LGMT a réalisé une datation de la lave par la méthode K-Ar (Plénier et al., 2007). Elle a donné un âge de $32,9 \pm 1,0$ ka à cette coulée. Des mesures de paléomagnétisme ont confirmé l'enregistrement de directions anormales du champ magnétique (par rapport à celles de l'époque actuelle) par la lave de cet affleurement et sa relation avec l'événement de Laschamp (Plénier et al., 2007).

5.4 Secteur de Blanzat

5.4.1 Présentation du secteur géographique et échantillonnage

Le village de Blanzat (Figure 5.37) repose en partie sur l'extrémité d'une coulée volcanique basaltique qui s'est épanchée en Limagne au débouché d'une vallée entaillant le plateau des Dômes (Boivin et al., 2004). A cette coulée est associée une seconde coulée, parallèle, de nature identique, qui arrive de la même direction et qui s'en sépare sur deux kilomètres en fin de parcours. L'origine de ces deux coulées - qui n'en formaient peut-être qu'une seule à l'origine - est inconnue. En amont, elles sont complètement recouvertes par un ensemble de coulées volcaniques de trachy-basalte qui masquent leur rattachement à l'un des volcans basaltiques du nord de la chaîne des Puys.

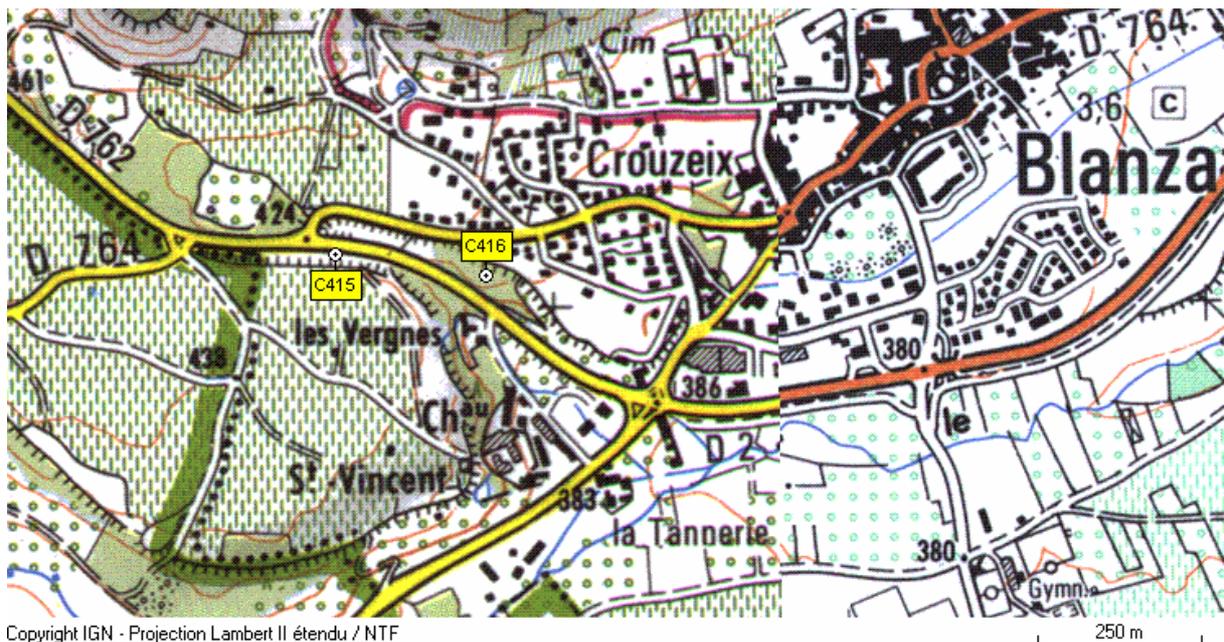


Figure 5.37 : Secteur de Blanzat.

La coulée nord, sous Blanzat, a fait l'objet d'une datation par la TL des feldspaths par G. Guérin en 1983. Il a obtenu un âge de $37,8 \pm 3,8$ ka au quartier de Crouzeix. En 2004, à l'occasion de travaux de voirie au long de la D762, une coupe de terrain montrant le contact entre la coulée sud et le substratum sédimentaire est apparue. Ce dernier a été échantillonné (C415) en vue d'une datation par luminescence. A cette occasion, des prospections sur le

flanc de la coulée nord ont été menées et ont conduit à la découverte d'un affleurement où était également visible le substratum. Nous avons prélevé l'échantillon de sédiment C416 pour sa datation. Les échantillons C415 et C416 sont de même nature. Ce sont des sédiments argileux rubéfiés au contact de la coulée. Ils n'étaient pas indurés et étaient fortement imprégnés d'humidité au moment des prélèvements.

Les coordonnées UTM (WGS 84) des prélèvements effectués dans ce secteur sont données dans le tableau 5.12.

Site	Référence des échantillons	Coordonnées	
Blanzat route	C415	505119	5074779
Blanzat bois	C416	505348	5074745

Tableau 5.12 : Coordonnées UTM des prélèvements effectués dans le secteur de Blanzat.

Lors des traitements en vue de l'extraction de grains de quartz, l'échantillon C415 s'est avéré assez pauvre en minéraux et il n'a pas été possible d'entreprendre une datation. Seules les propriétés des signaux de luminescence des quartz de l'échantillon C416 ont donc été étudiées.

5.4.2 Échantillon C416

5.4.2.1 Détermination de la paléodose

a) TLR MA

Les mesures de TL ont été réalisées sur les grains de quartz de granulométrie 200-250 μm , après un préchauffage des aliquotes à 250°C/10s. Les courbes de première et deuxième lecture (Figure 5.38) se superposaient, après application d'un facteur s égal à 0,92 et la paléodose déterminée avec la méthode LISA était de 65 ± 6 Gy. Nous considérerons cependant qu'elle représente une valeur minimale pour la paléodose, la croissance de la courbe de première lecture semblant supralinéaire aux basses doses (inférieures à N+150 Gy).

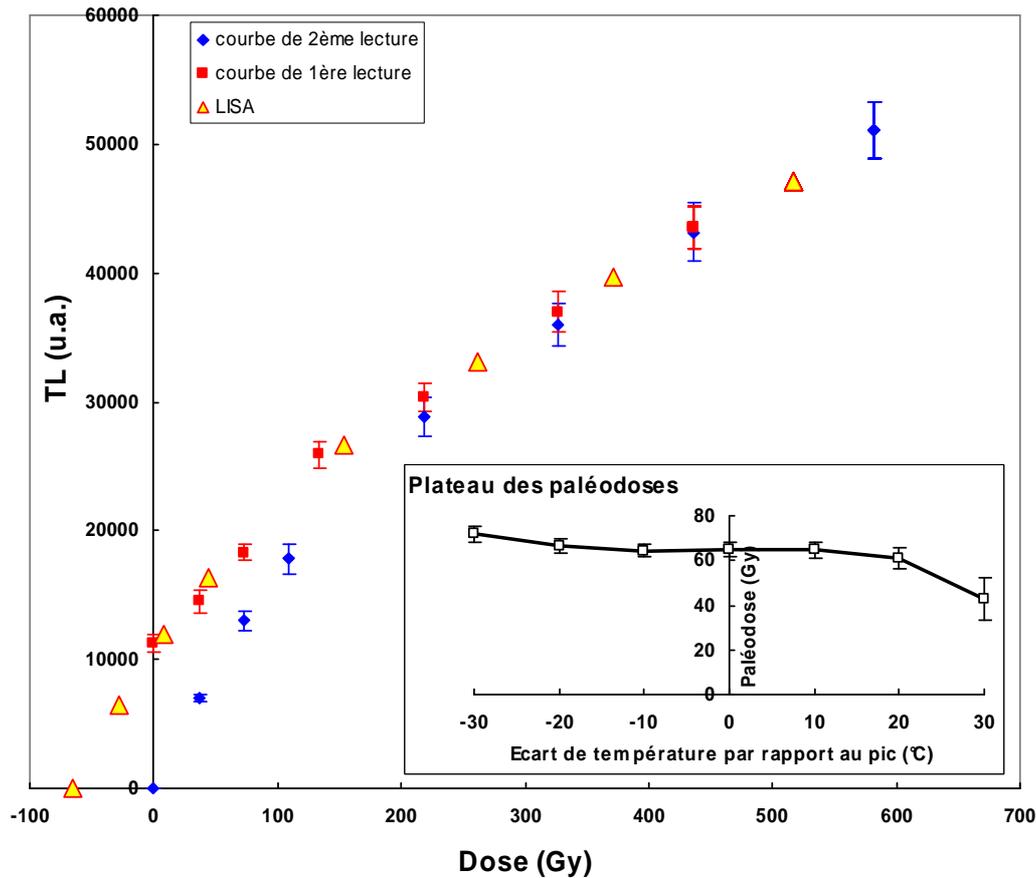


Figure 5.38 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLR MA pour l'échantillon C416.

b) TLB MA

Les mesures de TL, très reproductibles, ont également été réalisées sur la fraction 200-250 μm , après un préchauffage des aliquotes à 250°C/10s. La courbe de première lecture (Figure 5.39) présentait, à la différence de celle de deuxième lecture, un comportement supralinéaire. Un changement de sensibilité ($s = 0,7$) plus important que pour les sites présentés jusqu'ici a été observé pour la deuxième lecture. Le plateau des paléodoses est correct et la paléodose a été estimée avec cette approche à 154 ± 16 Gy. Toutefois, vu la forme inhabituelle des courbes de croissance, que nous avons du mal à exploiter, cette donnée sera considérée comme une valeur maximale pour la paléodose.

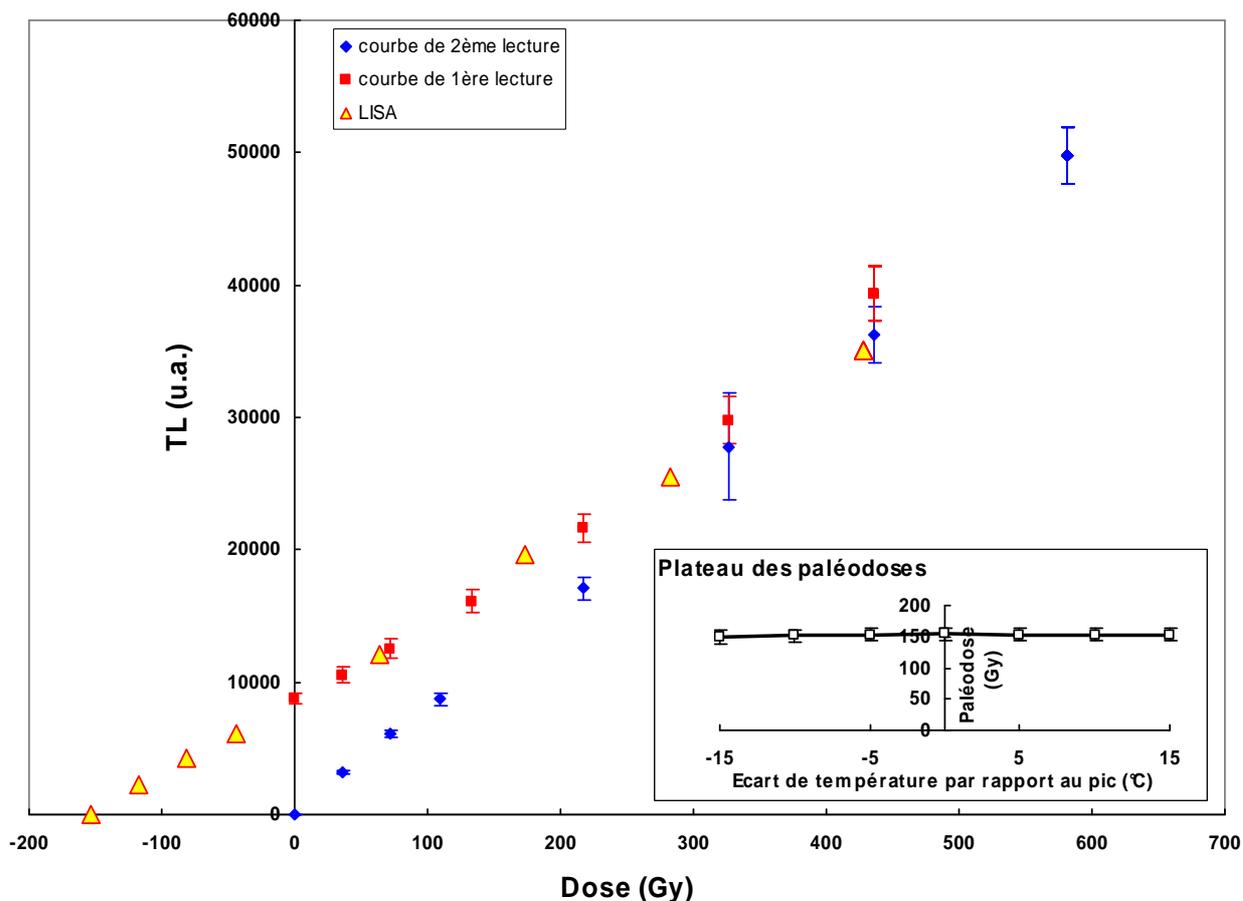


Figure 5.39 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLB MA pour l'échantillon C416.

c) OSL

Nous avons mesuré les signaux d'OSL de 12 aliquotes de grains de quartz de la fraction granulométrique 250-315 μm . La courbe de croissance a d'abord été construite en administrant les doses de régénération de manière standard (Figure 5.40). Le transfert thermique était inférieur à 1% et le taux de recyclage moyen de 0,98. La paléodose moyenne a été évaluée à 93 ± 19 Gy.

Une seconde courbe de régénération a ensuite été construite, pour chacune des aliquotes de la série, en procédant à des irradiations pulsées. La paléodose moyenne était alors de 85 ± 13 Gy. Nous avons donc une nouvelle fois vérifié que la procédure d'irradiation proposée par Bailey (2004) et Bailey et al. (2005) conduisait à une paléodose plus faible que celle obtenue avec des irradiations standards. Pour ce domaine de dose, les valeurs moyennes obtenues dans les deux cas étaient cependant peu différentes.

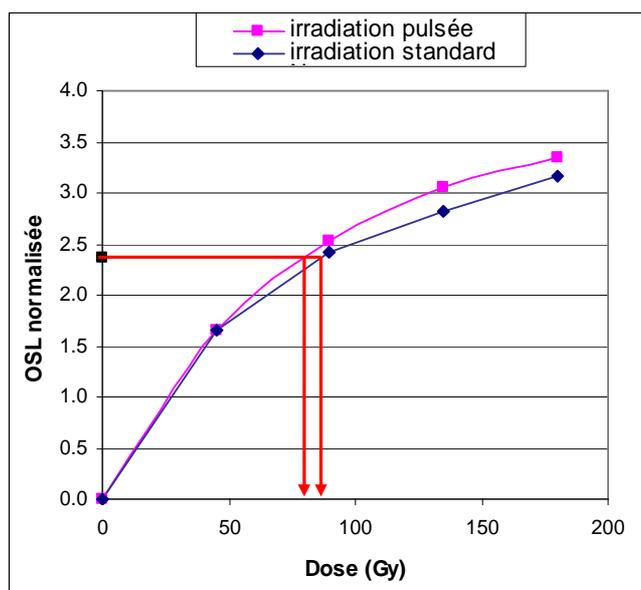


Figure 5.40 : Courbes de croissance obtenues en OSL pour une aliquote de l'échantillon C416. Les doses de régénération ont été administrées par pulses de 10 Gy entrecoupées d'une chauffe de l'aliquote à 240°C/0s pour l'une et de manière standard (i.e. en une seule exposition à la source de rayonnement artificiel) pour l'autre. L'interpolation du signal d'OSL naturel normalisé sur l'une ou l'autre courbe conduit à des paléodoses très peu différentes.

5.4.2.2 Discussion

Les âges déterminés avec les différentes approches sont donnés dans le tableau 5.13. Les paléodoses déterminées avec les approches TLR MA et TLB MA constituant respectivement des valeurs minimale et maximale, il n'est pas possible de déterminer un âge moyen pour ce site. Nous donnons donc un intervalle dans lequel l'âge réel est supposé être compris, soit [18 – 52] ka. L'âge obtenu avec l'approche OSL est compris dans cet intervalle, que les doses d'irradiation aient été administrées de manière standard ou pulsée.

Comme dans le cas des sites du Fraisse 1 et du Fraisse 2, nous donnons donc des âges minimal et maximal pour tenir compte de la méconnaissance de la teneur en humidité par le passé, calculés respectivement pour des teneurs en humidité nulle et à saturation (valeur supposée : 30%) : 15 ± 2 ka et 52 ± 6 ka. **Ainsi, l'âge de la coulée est supposé compris dans l'intervalle [13 – 58] ka.**

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
RTL MA	200-250	65 ± 6	$3,28 \pm 0,11$	20 ± 2
BTL MA	200-250	154 ± 16	$3,28 \pm 0,11$	47 ± 5
OSL irradiation standard	250-315	93 ± 19	$3,24 \pm 0,11$	29 ± 6
OSL irradiation pulsée	250-315	85 ± 13	$3,24 \pm 0,11$	26 ± 4

Tableau 5.13 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C416.

5.5 Secteur d'Aydat

5.5.1 Présentation du secteur géographique et échantillonnage

Dans le secteur d'Aydat, nous avons prélevé deux échantillons (C413 et C428) de retombées à caractère phréatomagmatique sur une coupe située près du cimetière de cette commune, au lieu-dit « Veyreras » (Figure 5.41). Ces prélèvements se sont révélés insuffisamment riches en quartz pour entreprendre une datation. Pour ce secteur, nous nous sommes donc focalisés sur un niveau de sédiment quartzeux (C410) présent sous la coulée du Puy de Charmont, au bord du Lac d'Aydat, au lieu-dit « Sauteyras » (Figure 5.42). En 1983, Guérin s'était intéressé à cet affleurement et avait obtenu un âge de $29,9 \pm 2,6$ ka par la TL des plagioclases extraits de la lave.

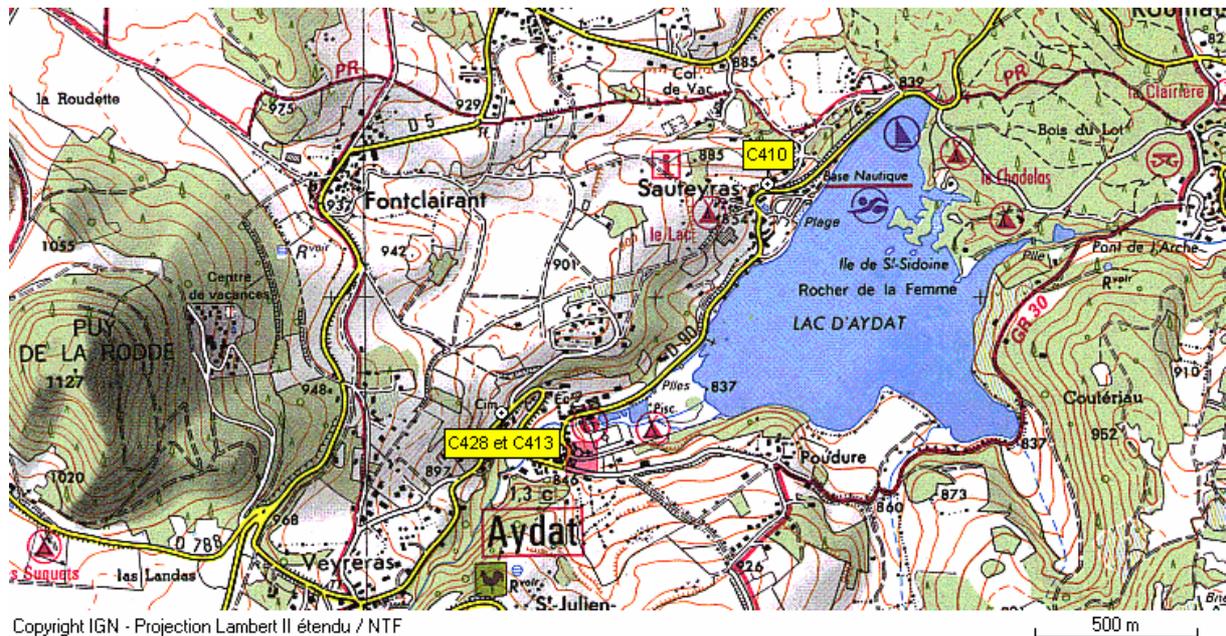


Figure 5.41 : Secteur d'Aydat.

Le sédiment C410 n'a pas été analysé. Un examen rapide, à la loupe binoculaire, de la fraction 500-1000 μ m montre une composition très largement dominée (> 95%) par des fragments anguleux quartzo- feldspathiques de socle. Les grains sont plus ou moins enrobés d'un enduit qui donne à l'ensemble une légère coloration brun-rouge. Le reste est composé de scories noires et d'esquilles d'aspect vitreux, tous ces éléments paraissant très frais et non roulés. Le mode de mise en place est inconnu, mais le caractère anguleux des grains et la présence d'éléments volcaniques fragiles qui ne sont ni altérés ni roulés suggèrent que ce

sédiment pourrait être issu directement du déboufrage de la cheminée volcanique du Puy de Charmont.

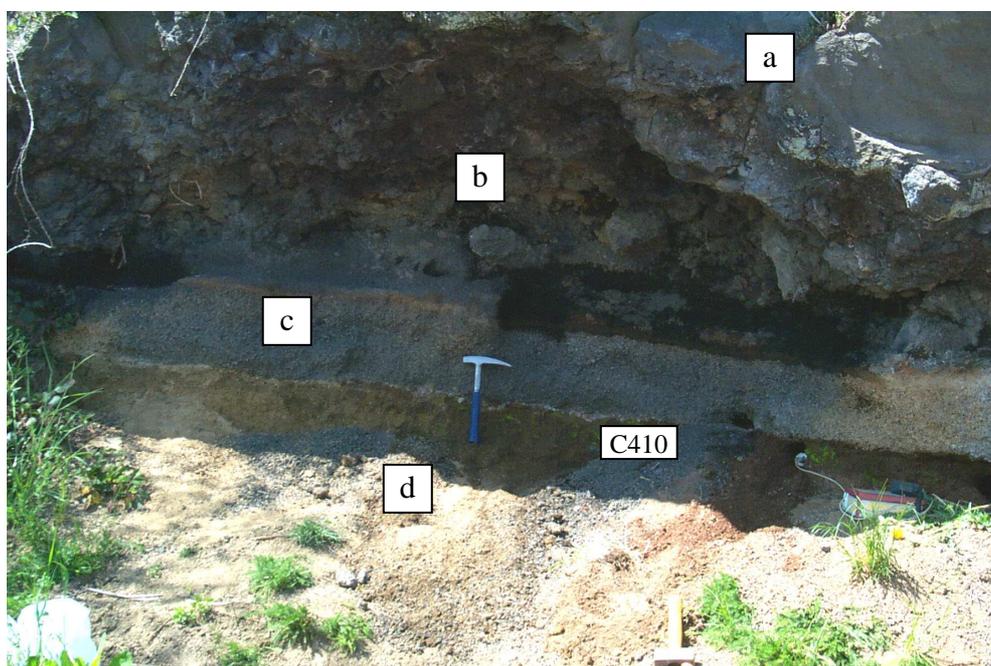


Figure 5.42 : Photographie de la coupe de la coulée du Puy de Charmont à Aydat (a : lave massive, b : scories de base, c : lapillis de saupoudrage, d : arène granitique).

Les coordonnées UTM (WGS 84) des prélèvements effectués dans ce secteur sont données dans le tableau 5.14.

Site	Référence des échantillons	Coordonnées	
Veyreras	C413 et C428	497822	5056418
Sauteyras	C410	498647	5057121

Tableau 5.14 : Coordonnées UTM des prélèvements effectués dans le secteur d'Aydat.

5.5.2 Échantillon C410

5.5.2.1 Détermination de la paléodose

a) TLR MA

Les grains de quartz de l'échantillon C410 ne présentaient pas d'émission de TL dans le rouge. Son absence est probablement liée à la composition du minéral (absence d'impuretés correspondantes) ou à un chauffage insuffisant pour activer cette émission.

b) TLB MA

Les mesures de TL ont été réalisées sur la fraction 200-315 μm , après un préchauffage à 300°C/10s. Le déplacement de la courbe de régénération selon l'axe des abscisses a permis sa superposition avec la courbe de première lecture après application d'un facteur s égal à 0,78. Une paléodose de 81 ± 9 Gy a été obtenue (Figure 5.43).

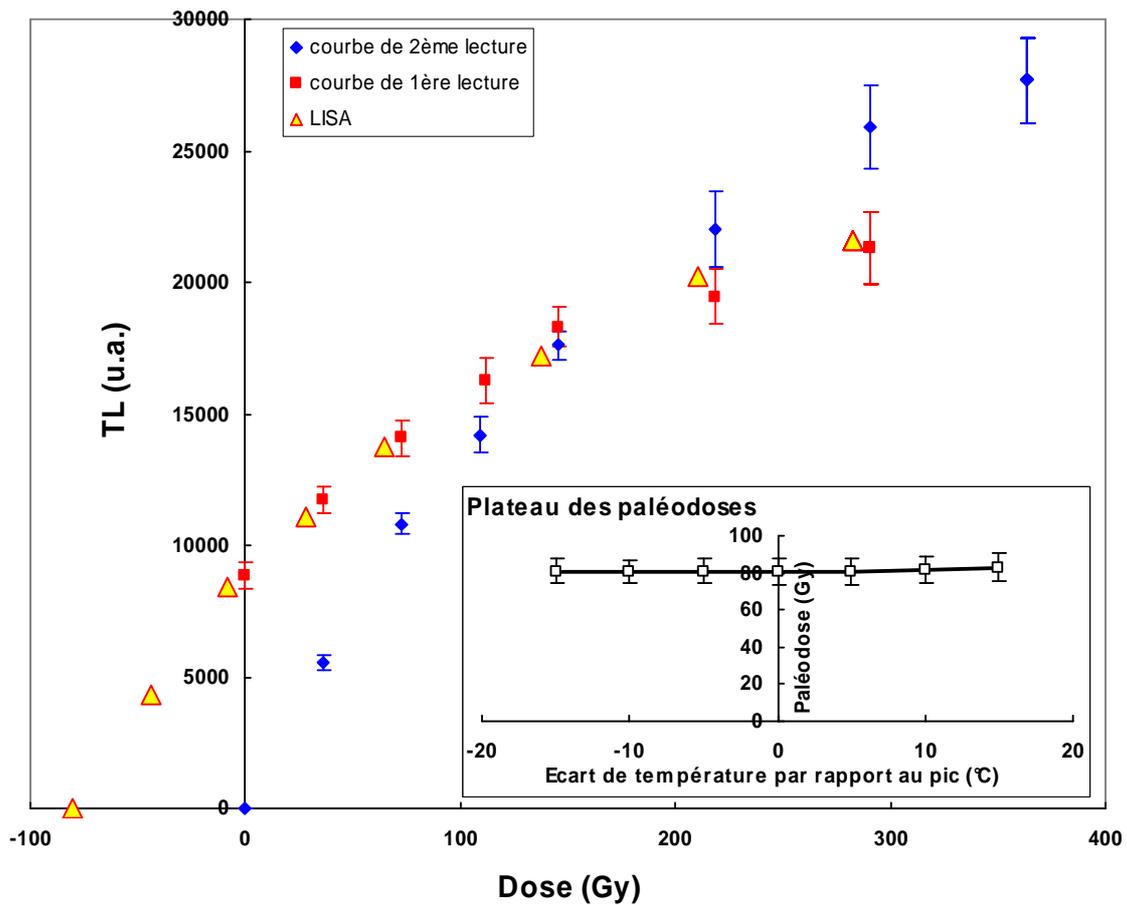


Figure 5.43 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses en TLB MA de l'échantillon C410.

c) OSL

La mesure de 12 aliquotes de quartz de granulométrie 150-200 μm a conduit à une paléodose de 47 ± 39 Gy. La dispersion des valeurs s'explique par la présence de feldspaths, le traitement chimique utilisé classiquement n'ayant apparemment pas permis de les éliminer complètement. L'approche OSL ne sera donc pas retenue pour le calcul de l'âge.

5.5.2.2 Discussion

Pour la coulée du Puy de Charmont à Aydat, nous retenons l'âge obtenu avec l'approche TLB MA pour les raisons données précédemment. Il est de 28 ± 3 ka (Tableau 5.15). Comme dans le cas des sites du Fraisse 1, du Fraisse 2 et de Royat, il est possible que la teneur moyenne en humidité actuelle dans ce sédiment ne soit pas représentative de celle qui a prévalu par le passé. Nous proposons donc un âge minimal et un âge maximal, calculés respectivement pour des teneurs en humidité nulle et à saturation (valeur supposée : 30%), soit respectivement 26 ± 3 ka et 37 ± 4 ka. Ainsi :

Age de la coulée à Aydat : 28 [23 – 41] ka.

Cet âge est compatible avec celui déterminé par G. Guérin (1983) par la TL des plagioclases extraits de la lave elle-même ($29,9 \pm 2,6$ ka).

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
TLB MA	200-315	81 ± 9	$2,88 \pm 0,08$	28 ± 3
OSL	150-200	47 ± 39	$2,93 \pm 0,09$	16 ± 13

Tableau 5.15 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C410. Le résultat de l'approche OSL est donné pour information, mais il ne sera pas retenu pour les raisons évoquées précédemment.

L'équipe du LGMT a prélevé un échantillon de la lave de cet affleurement. Une datation par la méthode K-Ar a donné un âge de $20,1 \pm 1,2$ ka (Plénier et al., 2007), incompatible avec les âges TL (à 2 sigma). Des mesures de paléomagnétisme sur cette lave réalisées à l'IPGP (Plénier et al., 2007) n'ont pas mis en évidence d'anomalies magnétiques.

5.6 Synthèse des résultats

Dans ce travail, nous avons étudié les signaux de luminescence de grains de quartz extraits de 7 échantillons de sédiment et de plusieurs galets de quartz chauffés lors de la mise en place de coulées volcaniques. Le bilan de ces datations est donné dans la figure 5.44.

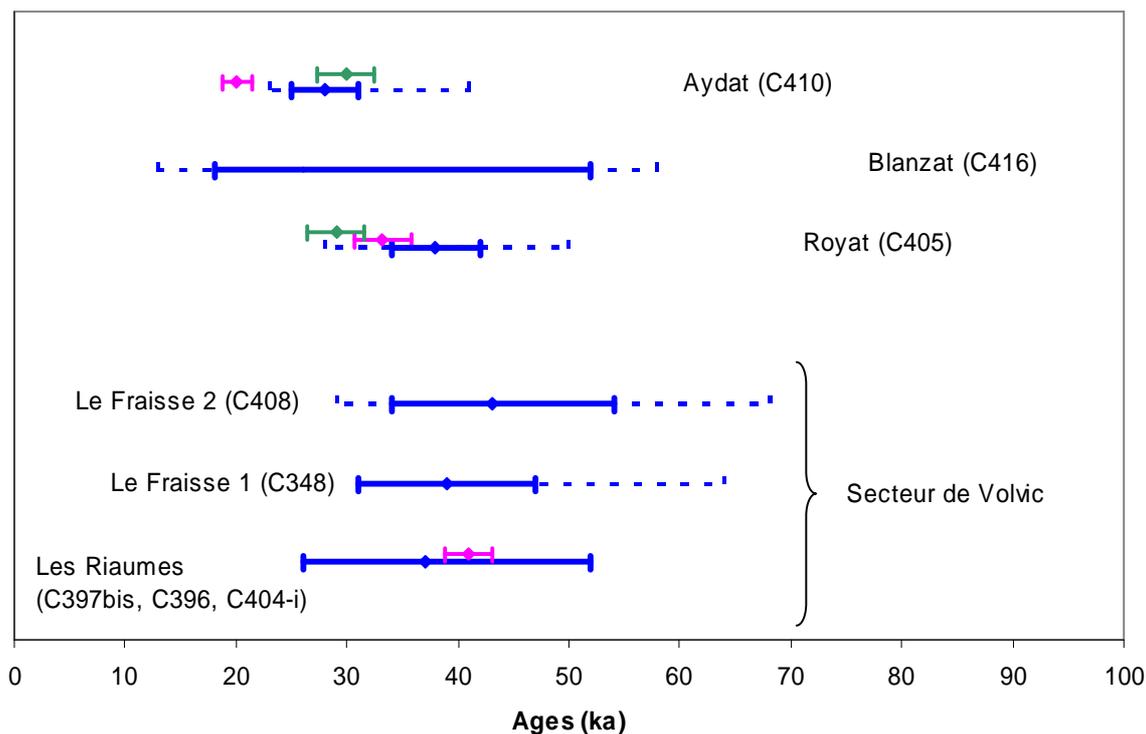


Figure 5.44 : Bilan des datations pour les sites liés à Laschamp. Les données en bleu correspondent aux âges déterminés dans ce travail par les méthodes de la luminescence (elles ont été obtenues en faisant la moyenne arithmétique des datations retenues et le raisonnement effectué pour déterminer l'intervalle de temps proposé a été précisé au cas par cas dans les paragraphes précédents). L'influence de l'humidité sur l'âge est précisée en pointillés. Les données en rose sont les âges (erreur donnée à 1 sigma) déterminés par la méthode K-Ar par l'équipe du LGMT. Les données chronologiques existantes avant le début de ce travail sont représentées en vert (Aydat : Guérin, 1983 ; Royat : Huxtable, 1978).

La multiplication des approches pour estimer les paléodoses reçues par les grains de quartz et l'intercomparaison des résultats ont révélé une dispersion importante, ce qui a conduit à proposer, pour chaque site, un intervalle de temps assez large (en bleu sur la figure 5.44) dans lequel est compris l'âge probable de l'échantillon. Selon les sites, cet intervalle s'étend sur quelques millénaires (cas de Royat et d'Aydat) pour atteindre une dizaine de millénaires ou plus (cas du Fraisse, des Riaumes et de Blanzat). La prise en compte des

variations possibles de la teneur en eau des sédiments au cours du temps a conduit à accroître l'incertitude sur la dose d'irradiation annuelle, et donc à augmenter l'intervalle de temps probable (en pointillés) pour chaque site.

De manière générale, les résultats de la luminescence des quartz sont en accord avec les âges obtenus par ailleurs, que ce soit par la méthode K-Ar (en rose) ou la thermoluminescence d'autres minéraux (en vert ; Huxtable, 1978, Guérin, 1983), mais les incertitudes sur la datation de quartz restent beaucoup trop larges pour permettre d'affiner la chronologie de l'excursion de Laschamp. Les méthodes de la luminescence nous ont cependant permis d'identifier des candidats potentiels à l'étiquette Laschamp dans le secteur de Volvic.

CHAPITRE 6 :
ÉTUDES ET RECHERCHES SUR LES
COMPORTEMENTS OBSERVÉS

6.1 Introduction

Des difficultés importantes ont été rencontrées lors de la détermination de la paléodose des quartz chauffés par des coulées de lave attribuées à la période de Laschamp. Pour tenter de déterminer l'origine de ces difficultés, nous avons testé nos protocoles expérimentaux sur des sites âgés de moins de 30000 ans, à Saint-Saturnin, à Terre Noire et à Neschers. Les échantillons prélevés présentaient l'intérêt d'être homogènes et riches en quartz et, pour les deux premiers sites, nous disposions d'âges déterminés de manière indépendante par ^{14}C . Par ailleurs, des études spécifiques (contrôle de fading, influence du débit de dose, changements de sensibilité dus aux recuits, ...) ont été entreprises dans l'objectif de mieux comprendre les phénomènes observés. Les résultats de ces expériences sont présentés dans les paragraphes qui suivent.

6.2 Tests sur les échantillons naturels récents

6.2.1 Saint-Saturnin

6.2.1.1 Présentation du site et échantillonnage

Les Puys de La Vache et Lassolas comptent parmi les volcans les plus récents de la Chaîne des Puys. Leur éruption a fait l'objet de plusieurs datations directes ou indirectes. La première, réalisée par la méthode du ^{14}C sur du bois carbonisé par la coulée prélevé au niveau du château de Saint-Saturnin (Pelletier, 1959), a donné un âge de 7650 ± 350 ans BP, soit 8650 ± 850 ans en années réelles.

De nouvelles datations par radiocarbone et thermoluminescence (Tableau 6.1), effectuées quelques années plus tard au même endroit, ont donné des résultats compatibles avec la première mesure ^{14}C .

Age	Méthode	Matériau	Références
8650 ± 850 (7650 ± 350 BP)	^{14}C	bois carbonisé (chêne) sous coulée	Sa-90 Pelletier et al. (1959)
8120 ± 140 (7255 ± 80 BP)	^{14}C	bois carbonisé	Ly-6432/6243 (1994) Cf. Boivin et al., (2004)
8100 ± 800	TL	sédiment cuit (quartz et grains fins)	Huxtable et al. (1978)
9130 ± 720	TL (rouge)	quartz (sédiment cuit)	Montret et al. (1992)
8820 ± 870	TL	plagioclases (de la lave)	Guérin (1983)

Tableau 6.1 : Récapitulatif des datations des Puys de La Vache et Lassolas effectuées sous le château de Saint-Saturnin.

Des datations plus dispersées ont été obtenues sur d'autres sites en relation avec ce couple de volcans (Tableau 6.2). Notons toutefois que les datations réalisées sur les paléosols sont à prendre avec précaution. En effet, l'activité d'un sol peut continuer après son recouvrement par des produits volcaniques (coulée ou cendres volcaniques).

Age	Méthode	Matériau	Lieu	Références
8925 ± 425 ⁽¹⁾ (7970 ± 125 BP)	¹⁴ C	tourbe encadrant des cendres volcaniques	Narse d'Ampoix	MBN-328 Juvigné et Gewalt (1987)
9150 ± 550	TL	plagioclases (de la lave)	La Batrande	Guérin (1983)
8100 ± 300 BP ⁽²⁾	¹⁴ C	paléosol brun	Cheire de Mercoeur	Gif-1497 Brousse et al. (1969)
6000 ± 150 BP ⁽³⁾	¹⁴ C	paléosol	Puy de la Toupe	Gif-1375 Brousse et al. (1969)

Tableau 6.2 : Récapitulatif des datations des Puy de La Vache et Lassolas.

⁽¹⁾ âge moyen de la tourbe encadrant le téphra

⁽²⁾ ce sont Juvigné et Gewalt (1987) qui attribuent le niveau daté (paléosol brun sous des cendres basaltiques noires) à La Vache ; les auteurs ne le font pas.

⁽³⁾ mesure sur la matière organique résiduelle après élimination des acides humiques, dans un paléosol sous des téphras attribués à La Vache.

Nos mesures de luminescence ont été réalisées sur un échantillon de sol cuit par la coulée volcanique (Figure 6.1), à l'aplomb du château de Saint-Saturnin (altitude : 516 m). Les coordonnées UTM (WGS 84) de ce site sont (507183 ; 5056010).

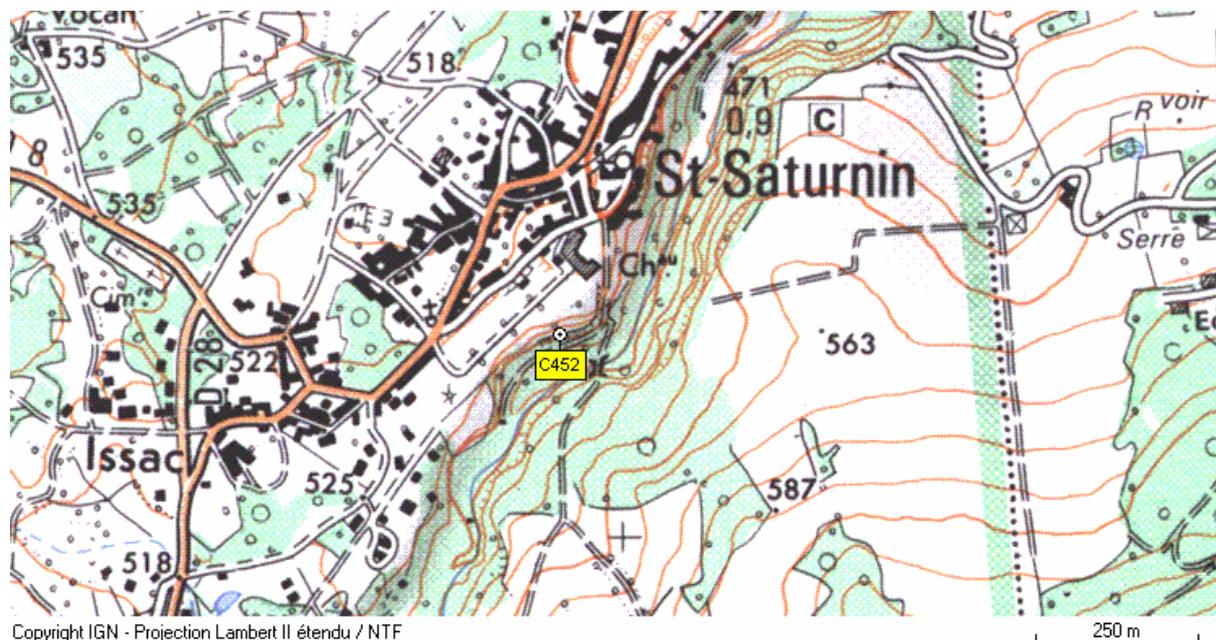


Figure 6.1 : Secteur de Saint-Saturnin.

L'épaisseur approximative de la coulée à ce niveau est de 10 m. Notre prélèvement, référencé C452, a été effectué à une distance d'environ 50 cm sous la coulée (Figure 6.2). La teneur en eau du sol était très faible (~ 4%).

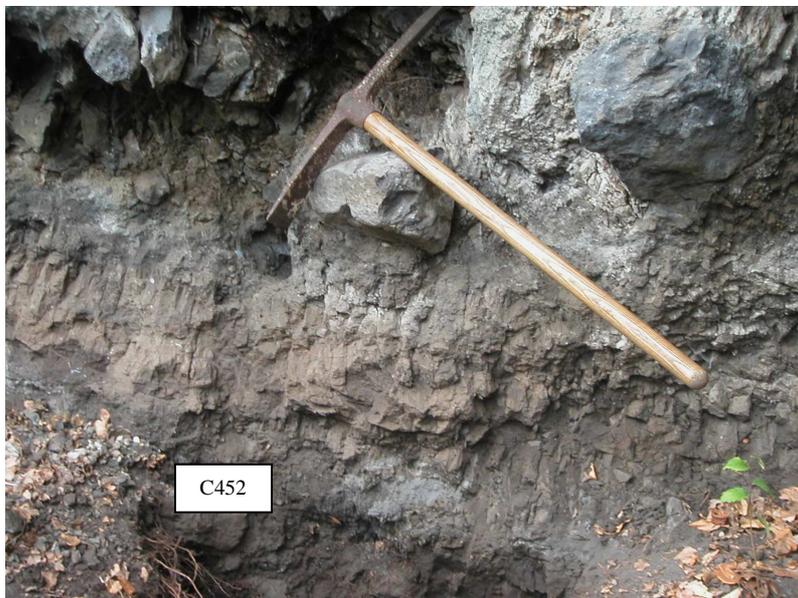


Figure 6.2 : Photographie de la coupe de la coulée de la Vache et Lassolas, sous le château de Saint-Saturnin. La base de la coulée apparaît en blocs gris. L'échantillon de charbon de bois C452-C a été prélevé au niveau de la pointe de la pioche, dans le sol prismé par la cuisson.

Un échantillon de charbon de bois, référencé C452-C, a également été prélevé dans ce sol et a donné lieu à une nouvelle datation par ^{14}C . Le traitement chimique et la préparation des cibles de graphite ont été réalisés au LSCE et les mesures par le Professeur L. Keith Fifield à l'Australian National University à Canberra en Australie. La datation (ANNUA-31427, GifA 50023) a conduit à un âge de 7860 ± 190 ans BP. Ce résultat est en accord avec les datations obtenues sur ce site par la même méthode. La calibration conduit à l'intervalle 7400-6400 BC (95,4 % de niveau de confiance). La distribution est assez uniforme, ce qui permet de proposer un âge calendaire de 8900 ± 500 ans.

La moyenne arithmétique des âges ^{14}C (excepté les datations réalisées sur les paléosols) et TL est de 8700 ± 400 ans. La moyenne pondérée est de 8310 ± 120 ans. D'après Boivin et al. (2004), l'analyse du contexte pollinique dans lequel se trouvent généralement les cendres de La Vache et Lassolas (Juvigné et al., 1996) suggère que l'éruption s'est produite au moment de l'apogée du noisetier, soit il y a un peu plus de 8400 ans. Ces différentes données permettent d'avancer que l'éruption a donc très probablement eu lieu entre 8400 et 8700 ans, ce qui en fait un événement bien déterminé chronologiquement.

6.2.1.2 Analyse du sol cuit

L'observation d'une lame mince de C452 (Figure 6.3) par Pierre Boivin a révélé qu'il s'agissait d'un matériel silto-gréseux, constitué de cendres volcaniques trachy-basaltiques pédogénisées avec une composante phréatomagmatique. La lave comporte de nombreux cristaux isolés de feldspaths, de clinopyroxènes verts et d'amphiboles, tandis que les éléments de socle contiennent des quartz et des feldspaths.

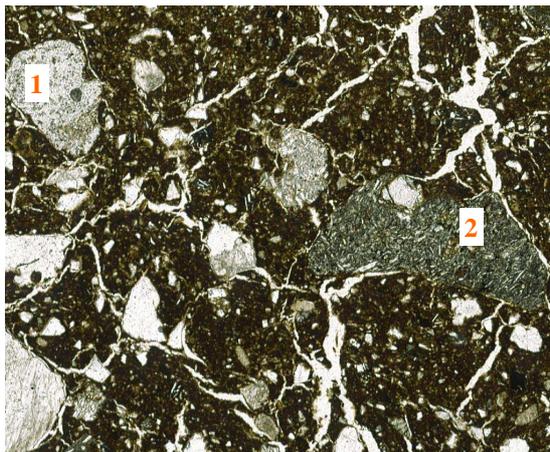


Figure 6.3 : Extrait de la photographie de la lame mince de l'échantillon C452 (Taille de l'image : 4,82 x 3,95 mm ; éléments figurés : 1 : socle, 2 : trachy-basalte).

6.2.1.3 Détermination de la paléodose

Nous avons testé les approches TLR MA, TLB MA, TLB SAR et OSL sur les grains de quartz de la fraction granulométrique 100-200 μm .

a) TLR MA

Une préchauffe de 350°C/10s a été utilisée pour éliminer les signaux instables. Les courbes de croissance (Figure 6.4) tendaient légèrement à saturer. Le test du plateau était vérifié et la paléodose calculée avec la méthode de glissement LISA était de 35 ± 3 Gy.

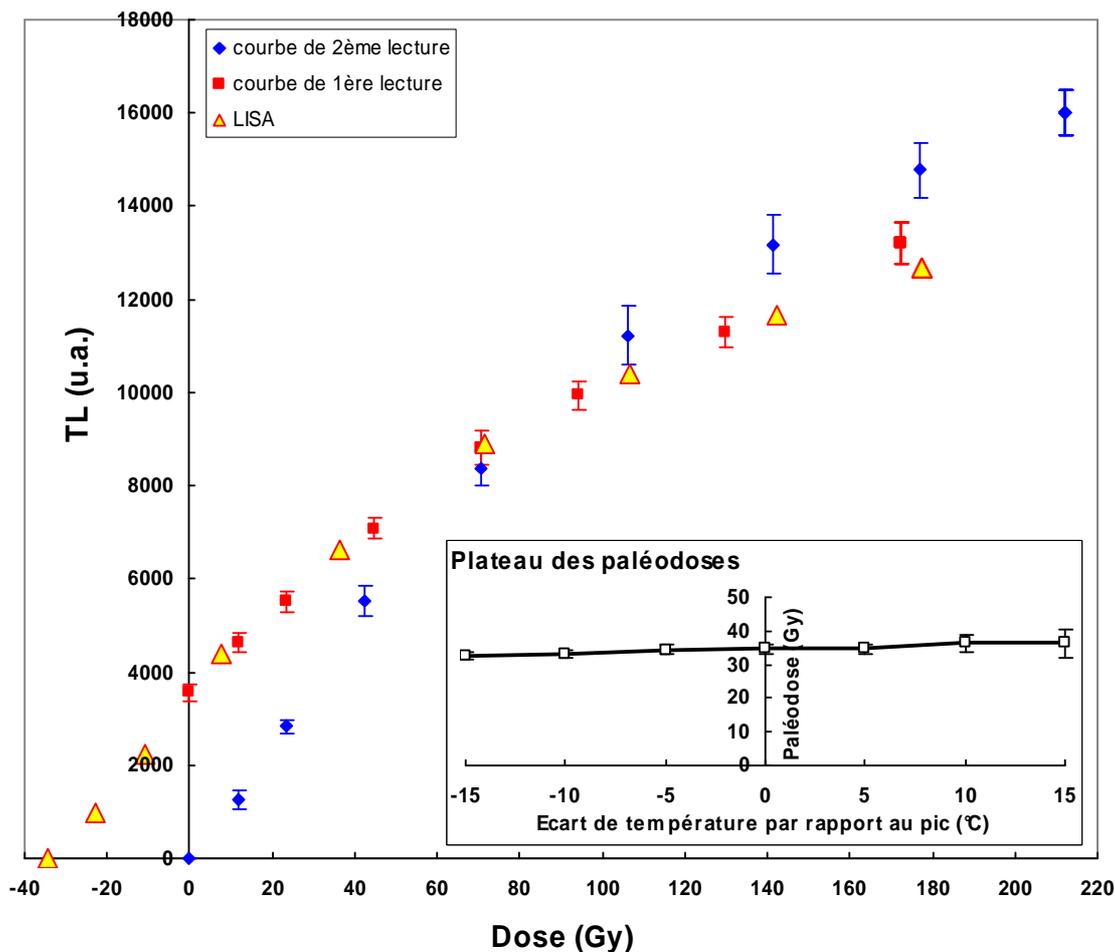


Figure 6.4 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLR MA pour l'échantillon C452.

b) TLB MA

Une préchauffe à 270°C/10s a été utilisée avec cette technique. Les courbes de croissance de première et de deuxième lecture (Figure 6.5) paraissent linéaires sur une large gamme de doses, mais la précision des points de mesure permettait cependant d'observer un léger changement de forme, respectivement à partir de N + 40 Gy et 0 + 40 Gy. Le changement de sensibilité dû au recuit était très important. Pour le calcul de la paléodose, nous avons donc limité le domaine de dose étudié, en considérant seulement les points d'abscisse inférieure à N + 40 Gy et 0 + 40 Gy. La paléodose calculée avec une méthode linéaire avec correction d'intercepte était de 38 ± 4 Gy.

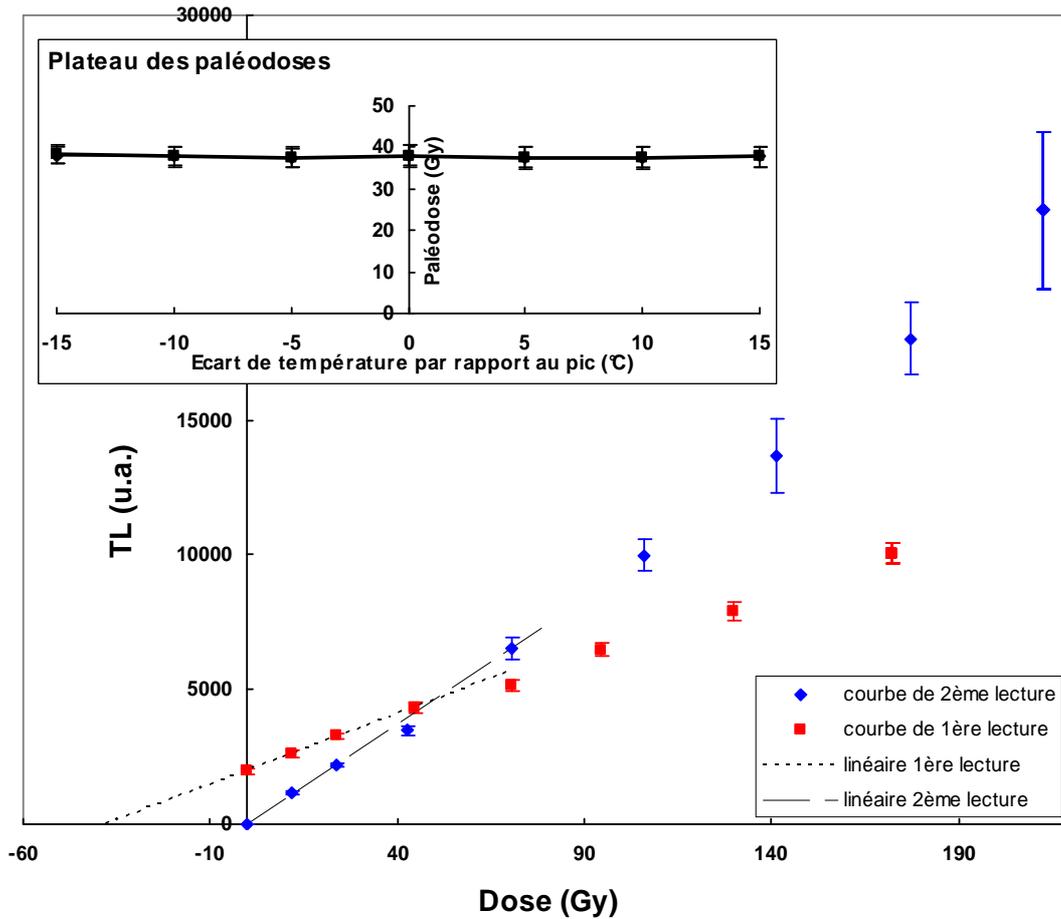


Figure 6.5 : Courbes de croissance et plateau des paléodoses obtenus en TLB MA pour l'échantillon C452.

c) TLB SAR

Une préchauffe à 270°C/10s, similaire à celle utilisée avec le protocole multiple-aliquot pour le même domaine de longueur d'onde, a été pratiquée. La courbe de régénération (Figure 6.6.b) était linéaire. Le taux de recyclage moyen était de 1,02. Un plateau de paléodose a été obtenu sur un large domaine de température (Figure 6.6.a). Les mesures étaient très reproductibles et ont conduit à une paléodose de 32 ± 2 Gy.

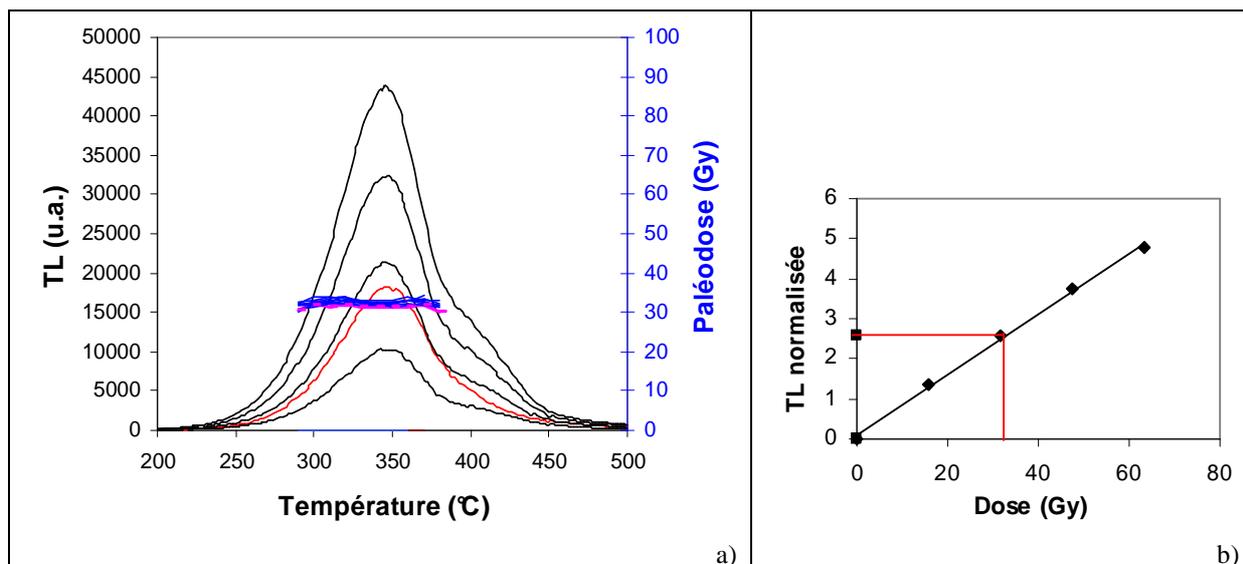


Figure 6.6 : Approche TLB SAR : a) courbes de TL bleue obtenues pour une aliquote de l'échantillon C452. Son plateau de paléodoses (pas d'intégration : 10°C) est figuré en rose ; b) courbe de régénération correspondante. Les plateaux de paléodoses des 11 autres aliquotes de la série mesurée sont représentés en bleu en a).

d) OSL

Les signaux d'OSL de 12 aliquotes ont été mesurés. Nous avons administré les doses de régénération de manière standard pour la construction de la courbe de croissance du signal (Figure 6.7). Le transfert thermique était inférieur à 1% et le test de recyclage était également vérifié, le taux de recyclage moyen étant de 1,00. La paléodose moyenne a été évaluée à 29 ± 2 Gy.

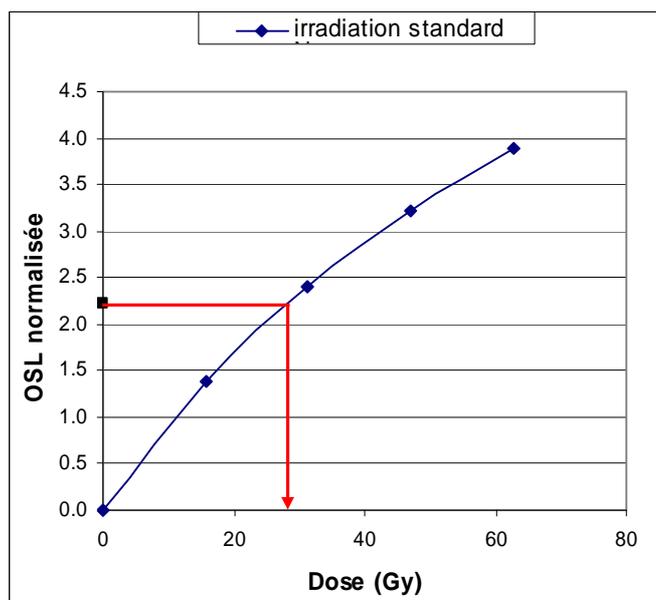


Figure 6.7 : Courbe de croissance obtenue en OSL pour une aliquote de l'échantillon C452. Les doses de régénération ont été administrées de manière standard.

6.2.1.4 Discussion

La détermination des paléodoses par les différentes approches mises en œuvre n'a pas présenté de difficultés particulières : les courbes de croissance étaient régulières et peu saturantes, et les tests de plateau satisfaisants. Les âges déduits (Tableau 6.3) sont compris entre $7,0 \pm 0,5$ (OSL) et $9,2 \pm 1,0$ ka (TLB MA). Il semblerait que l'âge obtenu en OSL sous-estime légèrement l'âge réel de la coulée. Cette particularité de l'approche OSL avait déjà été observée lors des tests de détermination de paléodoses générées expérimentalement (cf. chapitre 5). Compte-tenu de leurs barres d'erreur, les âges TL obtenus avec les autres approches (moyenne arithmétique : 8400 ± 800 ans) sont compatibles à 2 sigma avec la fenêtre temporelle la plus probable pour l'éruption des Volcans de la Vache et Lassolas, soit 8400-8700 ans.

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
TLR MA	100-200	35 ± 3	$4,15 \pm 0,14$	$8,4 \pm 0,8$
TLB MA	100-200	38 ± 4	$4,15 \pm 0,14$	$9,2 \pm 1,0$
TLB SAR	100-200	32 ± 2	$4,15 \pm 0,14$	$7,7 \pm 0,5$
OSL irradiation standard	100-200	29 ± 2	$4,15 \pm 0,14$	$7,0 \pm 0,5$

Tableau 6.3 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C452.

6.2.2 Terre Noire

6.2.2.1 Présentation du site et échantillonnage

Nous nous sommes intéressés à un niveau de produits volcaniques dans une petite carrière d'exploitation de cendres volcaniques, au lieu-dit Terre Noire (Figure 6.8), sur la commune de Ceysnat. L'altitude du site est de 913 m et ses coordonnées UTM (WGS84) sont (493947 ; 5067836).

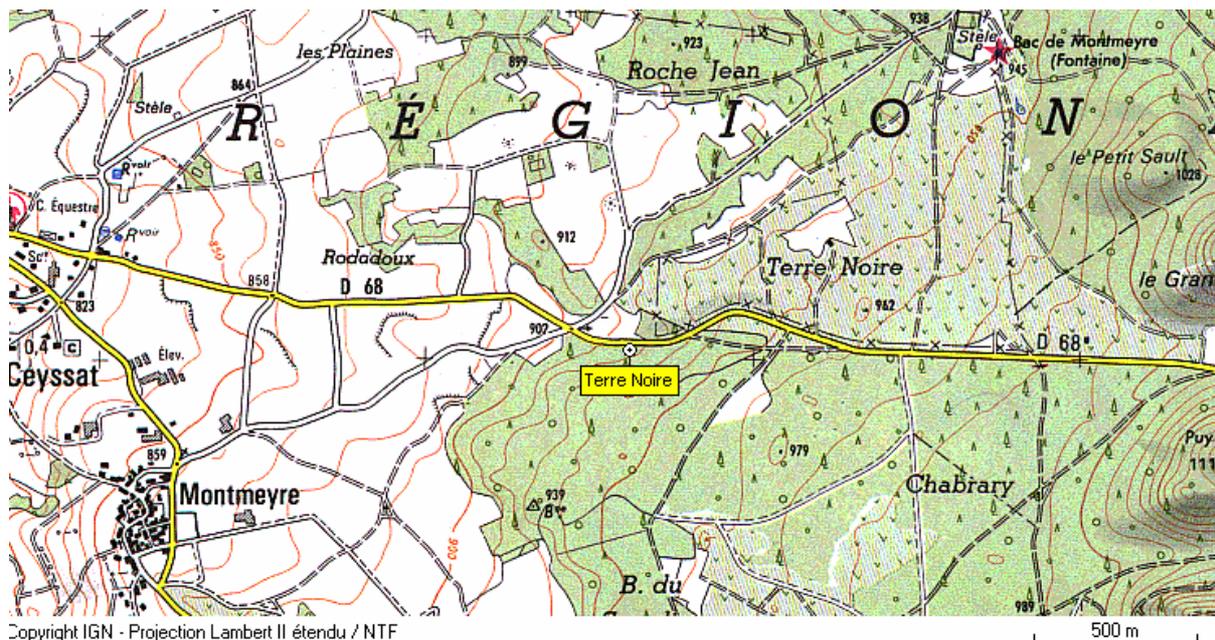


Figure 6.8 : Secteur de Terre Noire.

La carrière étant ancienne et en partie reprise par la végétation, la stratigraphie complète n'est pas visible d'un seul tenant. Sa reconstitution de haut en bas, sous le sol contemporain, est la suivante (Figures 6.9 et 6.10) :

- Une première unité, d'une épaisseur de 40 cm environ, est constituée de cendres trachytiques altérées contenant de petits nodules de trachytes. Cet horizon, bien connu dans la Chaîne des Puys, est attribué au Puy Vasset et/ou au Kilian. Il n'est pas possible de discriminer entre les deux volcans qui sont péné-contemporains, avec des âges respectifs de 9270 ± 280 ans et 9430 ± 120 ans (compilation dans Miallier et al., 2004).
- Une deuxième unité, de plusieurs mètres d'épaisseur, contient des lapilli volcaniques à faciès de débouillage. Le magma juvénile est un trachy-andésite ($\text{SiO}_2 = 55\%$). Les autres éléments sont des laves anciennes et du socle sous forme de fragments de roche ou de minéraux libres, dont du quartz. Ces lapilli présentent ici un gradient de granulométrie (décroissante vers le haut). De tels produits sont largement répandus dans le centre-est de la Chaîne des Puys (Puy de Barme, Puy Montchié et Puy de Salomon) et sont présents dans différents contextes téphrostratigraphiques. C'est dans ce niveau que nous avons prélevé l'échantillon C437 en vue d'une datation par les méthodes de la luminescence.

- Une troisième unité, de plusieurs mètres d'épaisseur également, est constituée de cendres volcaniques litées, indurées et altérées dans la partie au contact de l'unité supérieure. Plusieurs arguments, notamment l'âge, la proximité et la nature des produits, permettent de songer au Côme comme volcan source.
- Une quatrième unité contient un sédiment fin de consistance argileuse. Dans sa partie supérieure (C439sup.), il est riche en cendres végétales et micro-restes végétaux carbonisés. Cette carbonisation est vraisemblablement liée au premier dépôt de téphras. Un âge ^{14}C a été obtenu par AMS sur ces micro-restes. Le traitement chimique et la préparation des cibles de graphite ont été réalisés au LSCE et les mesures, par le Professeur L. Keith Fifield à l'Australian National University à Canberra en Australie. La datation (ANNUA-31428, Gif 50024) a conduit à un âge de 12070 ± 220 BP. La calibration de ce résultat donne une courbe de probabilité à deux pics, l'un centré sur 15 ka environ (30%) et l'autre sur 14 ka environ (65%) en années réelles. Ce niveau contient aussi des fragments millimétriques d'un trachyte clair dont l'origine n'est pas encore déterminée (probablement Aumône ou Cliersou). La partie inférieure du sédiment fin ne contient pas de micro-restes carbonisés et le spectre minéralogique est beaucoup moins riche que dans sa partie supérieure. Le sédiment fin y emballe un cailloutis volcanique gris et de gros blocs de lave grise.

L'âge de l'échantillon C437 que nous nous proposons de dater par la luminescence serait donc compris entre 9,4 ka et 14-15 ka. L'absence de sol entre les deux premiers téphras incite à penser qu'il ne s'est pas écoulé une longue période entre les deux éruptions. L'âge du dépôt C437 devrait donc être proche de 14-15 ka.

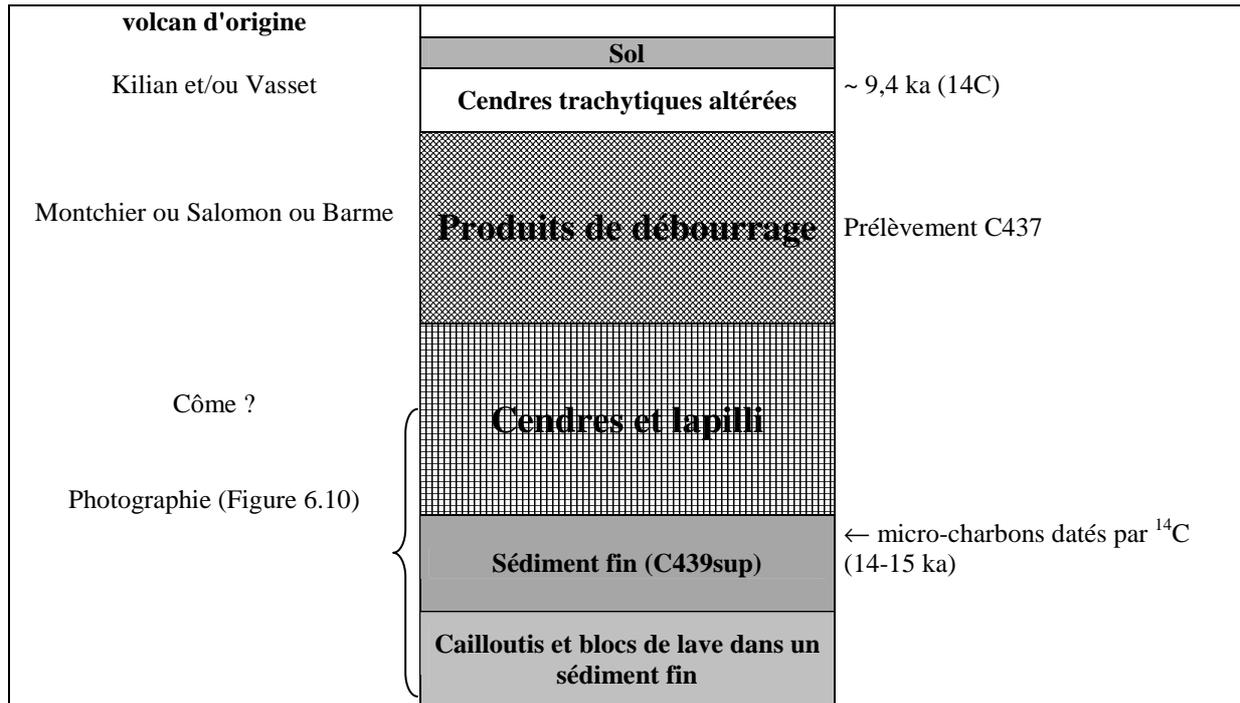


Figure 6.9 : Coupe stratigraphique schématique (hauteur totale ~10m).



Figure 6.10 : Détail de la coupe. (étoile : niveau de prélèvement des microrestes végétaux carbonisés).

6.2.2.2 Détermination de la paléodose

Toutes les mesures de luminescence ont été réalisées sur les grains de quartz de granulométrie 200-315 μm .

a) TL rouge

Nous avons choisi d'exploiter les émissions de TL rouge des grains de quartz de cet échantillon avec le protocole mixte multiple-aliquot standard, mais également avec la nouvelle approche décrite par Miallier et al. (2007).

Un premier lot de quartz a été divisé en 8 aliquotes irradiées à des doses croissantes pour la construction des courbes de première lecture (0, 12, 24, 48, 72, 96 et 121 Gy). Un second lot a été recuit à 380°C/16h, puis divisé en 6 aliquotes irradiées à des doses croissantes pour la construction des courbes de deuxième lecture (48, 72, 96, 121, 144 et 216 Gy). Chacune des aliquotes a été ensuite divisée en deux : une fraction a été stockée à l'abri de la lumière pour la mise en œuvre de la méthode TL MA standard, l'autre a été exposée au soleil pendant un mois.

L'échantillon non exposé à la lumière se comporte comme un échantillon récent standard en ce qui concerne la forme des courbes de TL (Figure 6.11.A et B) et des courbes de croissance (Figure 6.12). La paléodose est évaluée à 50 ± 5 Gy avec la méthode LISA.

L'échantillon exposé au soleil présente des courbes de TL assez similaires à celles de l'échantillon non exposé, mais à un niveau de signal plus faible (Figure 6.11.C et D). La TL rouge résiduelle augmente significativement avec la dose d'irradiation administrée avant l'exposition au soleil (Figure 6.12). La paléodose calculée avec la méthode LISA est 60 ± 5 Gy. Elle est plus élevée que celle estimée à partir de l'échantillon non exposé à la lumière, mais les deux valeurs sont néanmoins compatibles.

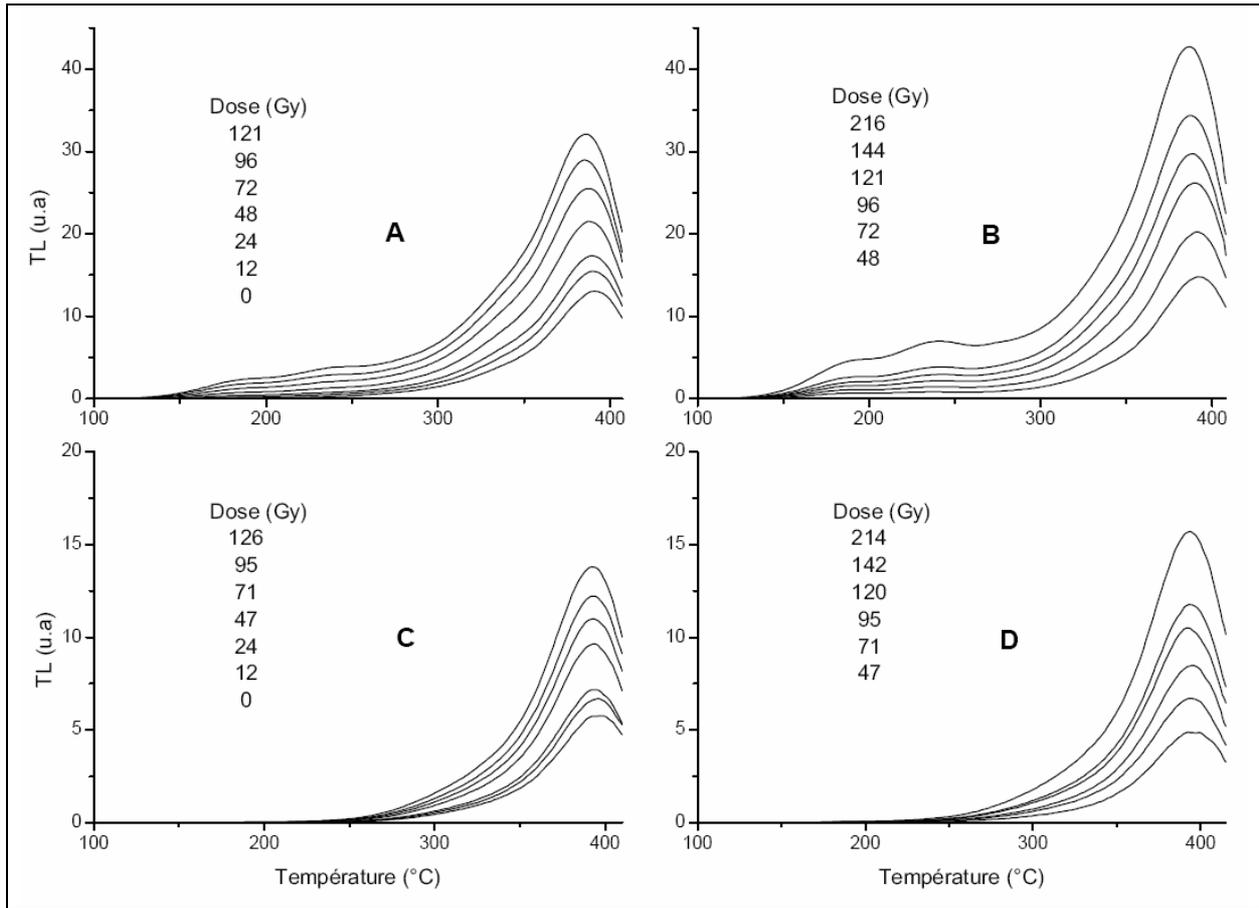


Figure 6.11 : Courbes de TL rouge obtenues pour l'échantillon C437 (Légende : A et B : courbes de TL respectivement de première et de deuxième lecture pour les aliquotes non exposées à la lumière, C et D : idem pour les aliquotes exposées à la lumière).

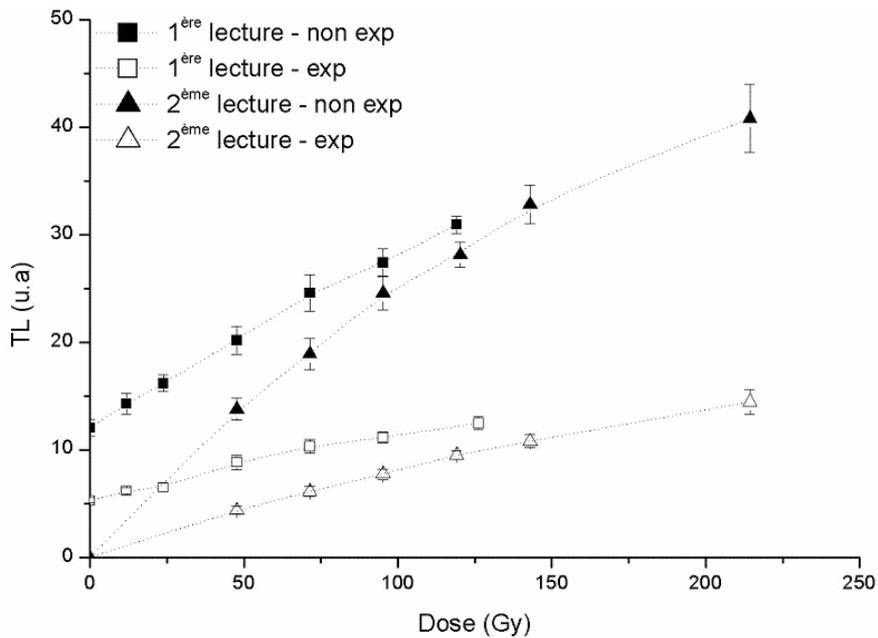


Figure 6.12 : Courbes de croissance obtenues en TL rouge pour l'échantillon C437 (Légende : non exp : échantillon non exposé à la lumière, exp : échantillon exposé à la lumière).

Les formes des courbes de croissance des échantillons exposé et non exposé sont pratiquement homothétiques, en ce qui concerne aussi bien l'échantillon remis à zéro au laboratoire que l'échantillon non remis à zéro. Le rapport moyen exposé/non exposé est de $0,33 \pm 0,01$ pour la courbe de deuxième lecture et $0,42 \pm 0,02$ pour la courbe de première lecture (Figure 6.13).

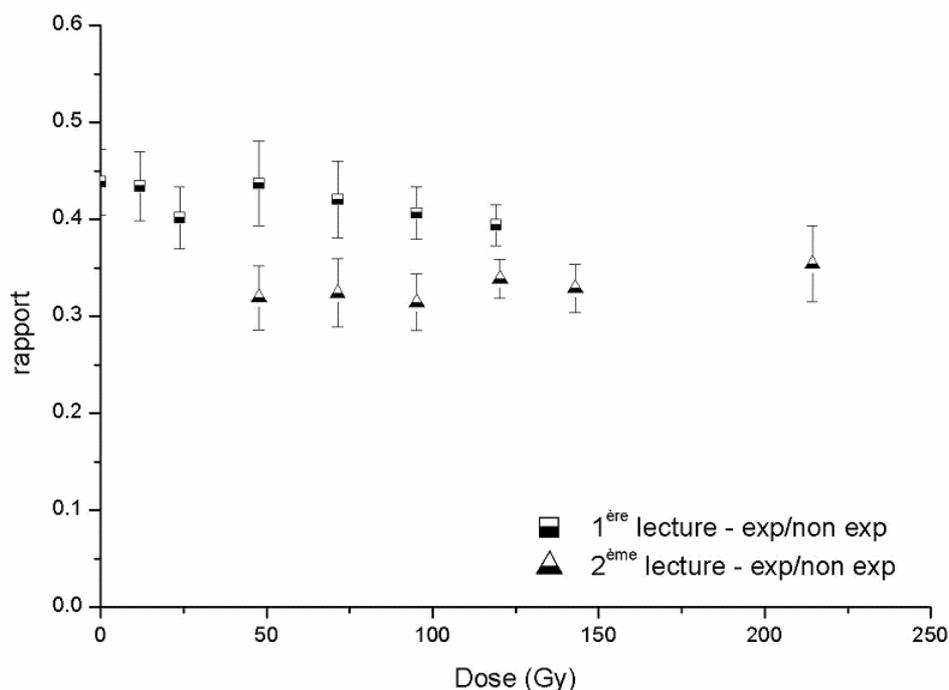


Figure 6.13 : Rapports de l'intensité des signaux de TL rouge des aliquotes exposées et non exposées à la lumière pour l'échantillon C437 (Légende : non exp : échantillon non exposé à la lumière, exp : échantillon exposé à la lumière).

Comme dans le cas de l'échantillon C397bis, la composante non blanchissable de la TL de l'échantillon C437 ne croît pas linéairement avec la dose d'irradiation, contrairement à ce qu'avaient suggéré Westaway et Roberts (2006). Pour cet échantillon plus récent, l'approche proposée par Miallier et al. (2007) a cependant permis de déterminer une paléodose comparable à celle obtenue avec l'approche TLR MA standard.

b) TLB SAR

Nous avons appliqué une préchauffe à 290°C/10s avant la mesure des signaux de TL des aliquotes. La courbe de régénération (Figure 6.14.b) était linéaire. Le taux de recyclage moyen était de 1,04. Un plateau de paléodose a été obtenu sur un large domaine de température, excepté pour 2 aliquotes pour lesquelles les doses obtenues décroissaient sur le

versant droit du pic (Figure 6.14.a). Les mesures étaient très reproductibles et ont conduit à une paléodose de 64 ± 5 Gy.

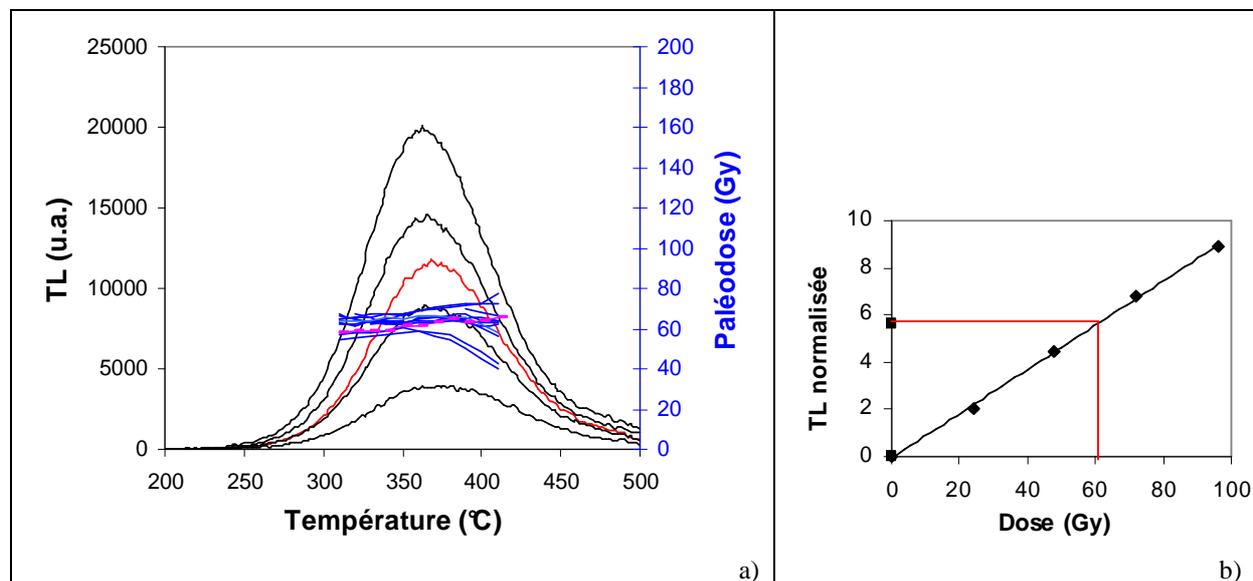


Figure 6.14 : Approche TLB SAR : a) courbes de TL bleue obtenues pour une aliquote de l'échantillon C437. Son plateau de paléodoses (pas d'intégration : 10°C) est figuré en rose ; b) courbe de régénération correspondante. Les plateaux de paléodoses des 9 autres aliquotes de la série mesurée sont représentés en bleu en a).

6.2.2.3 Discussion

Le tableau 6.4 donne le bilan des âges obtenus en exploitant les signaux de TL des quartz selon différentes procédures. Ces valeurs sont compatibles (à 2 sigma) entre elles et avec l'intervalle de temps attendu pour l'échantillon C437, qui serait compris entre 9,4 ka et 14-15 ka.

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
RTL MA standard	200-315	50 ± 5	$3,68 \pm 0,10$	$13,6 \pm 1,4$
RTL MA soleil	200-315	60 ± 5	$3,68 \pm 0,10$	$16,3 \pm 1,4$
BTL SAR	200-315	64 ± 5	$3,68 \pm 0,10$	$17,4 \pm 1,4$

Tableau 6.4 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C437.

6.2.3 Neschers

6.2.3.1 Présentation du site et échantillonnage

Le Puy de Tartaret est constitué de deux édifices emboîtés : l'Ancien Tartaret à l'ouest et le Nouveau Tartaret à l'est. Chacun des deux cônes a connu au moins une phase phréatomagmatique, suivie d'une phase strombolienne, mais c'est le premier qui a émis la coulée basaltique qui s'étire sur 22 km de long jusqu'à Neschers (Figure 6.15).

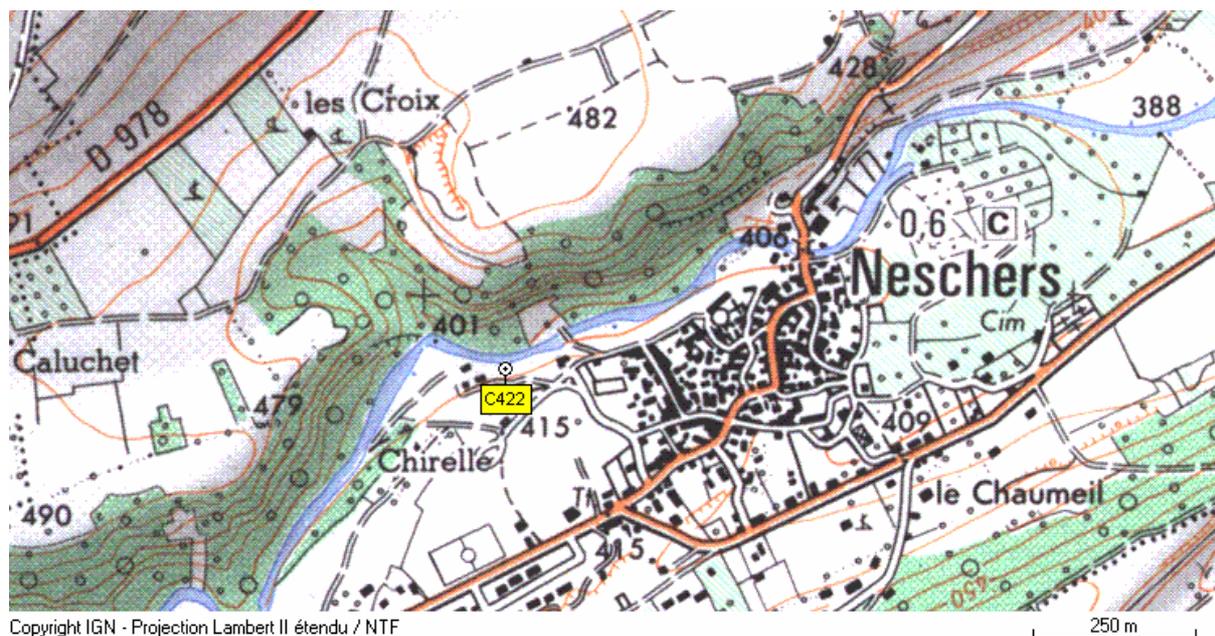


Figure 6.15 : Secteur de Neschers.

Les premières tentatives de datation de cette coulée par ^{14}C sur des sédiments noirs avaient conduit à des âges de 2970 ± 110 BP (Gif 2960) et 6900 ± 500 BP (Gif 3589) (Brousse et al., 1976). Ces dates, beaucoup trop jeunes pour cette coulée, s'expliquent par le fait que les paléosols ne se comportent pas toujours en système fermé et qu'ils sont donc souvent peu favorables à la datation radiocarbone.

Deux datations par la TL des plagioclases provenant de la lave elle-même ont été effectuées par Guérin (1983) à Murol et à Sapchat. Elles ont donné les âges respectifs de $27,2 \pm 2,7$ et de $28,2 \pm 2,3$ ka.

L'équipe de datation par TL du LPC s'est intéressée à un affleurement situé dans un abri naturel aménagé en cave (Figure 6.16), au lieu-dit « le Moulin-sous-Chirelle » (commune de Neschers). Cette coupe, qui a été décrite par Raynal et al. (1985), comporte un niveau rouge de sédiment cuit par la coulée. L'équipe du LPC a obtenu, dans un premier temps, un

âge de 27 ± 4 ka en exploitant la TL bleue des grains de quartz extraits de ce niveau rouge. Ce résultat, qui était en bon accord avec ceux de Guérin, a été infirmé par la suite : des expériences complémentaires ont conduit les auteurs à diviser l'âge par deux. Ce dernier résultat a été confirmé par des mesures de TL bleue sur des grains uniques (Miallier et al., 1985). Plus récemment, une datation par la TL rouge des grains de quartz a donné un âge de $13,7 \pm 0,8$ ka (Pilleyre et al., 1992). Des mesures par RPE sur des grains de quartz ont, par ailleurs, donné un âge de 20 ± 3 ka (Falguères et al., 1991).

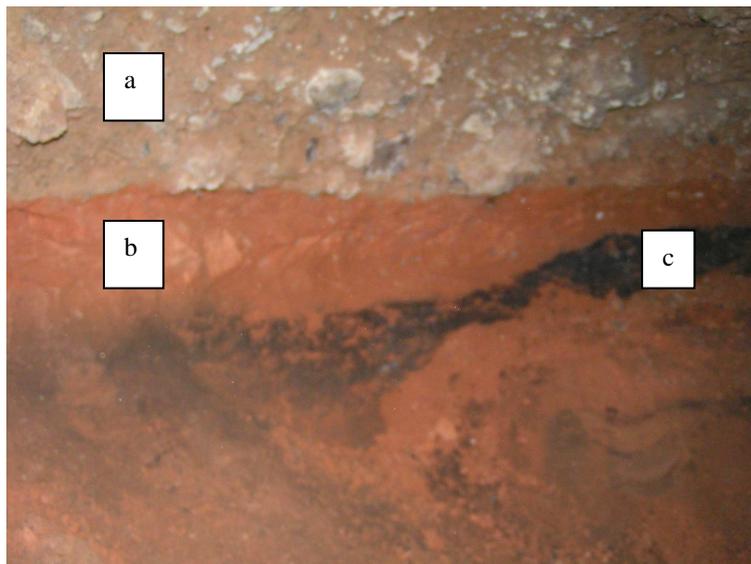


Figure 6.16 : Photographie de l'affleurement à Neschers où a été prélevé l'échantillon C422 (a : base de la coulée basaltique, b : zone rubéfiée (10 à 30 cm d'épaisseur), c : couche noire). L'analyse du sédiment en lame pétrographique montre qu'il a une origine unique. Il est oxydé dans la partie supérieure, rouge, et réduit dans sa partie inférieure (Courty, in : Raynal et al., 1985).

Dans le cadre de ce travail, nous avons échantillonné ce niveau rouge (échantillon C422), assez humide et riche en quartz, dont les coordonnées UTM (WGS84) sont (512339 ; 5048544). G. Guérin a, quant à lui, prélevé un échantillon de la lave (97F) qui a cuit ce sédiment.

6.2.3.2 Détermination de la paléodose

Toutes les mesures ont été réalisées sur les grains de quartz de la fraction granulométrique 100-200 μm , excepté pour l'approche « TLB MA sans préchauffage », pour laquelle nous avons utilisé les grains de dimension comprise entre 200 et 315 μm .

a) TLR MA

Deux séries de mesure ont été réalisées : pour l'une, les aliquotes n'ont subi aucun préchauffage avant la mesure de leurs signaux de TL, pour l'autre, un préchauffage à 350°C/10s a été appliqué. Dans les deux cas, la courbe de deuxième lecture recouvrait parfaitement celle de première lecture après son glissement le long de l'axe des abscisses et l'application d'un facteur s égal respectivement à 0,97 et 1,01 (Figure 6.17).

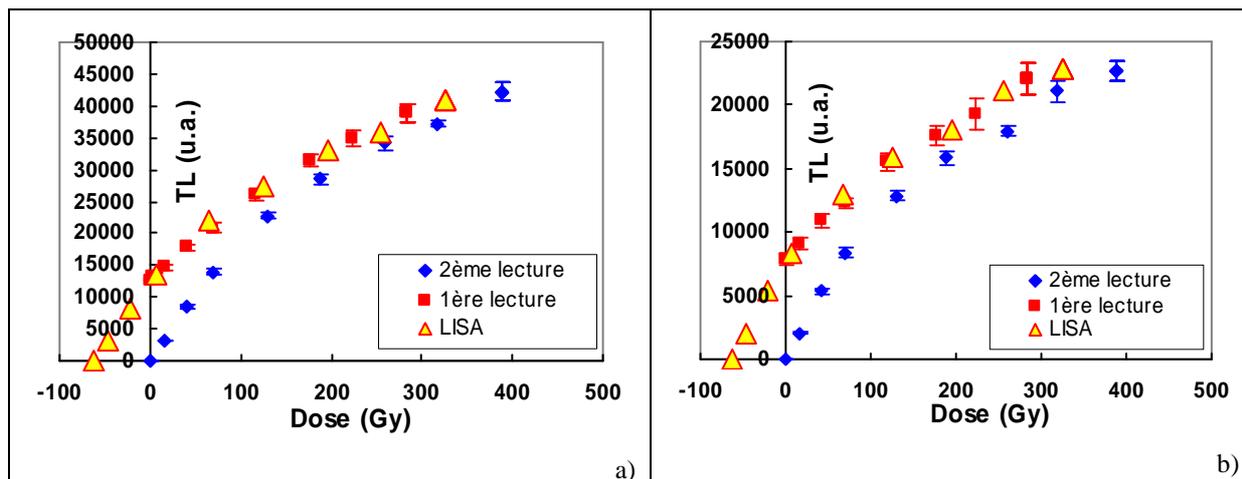


Figure 6.17 : Courbes de croissance obtenues en TLR MA pour les grains de quartz de granulométrie 100-200 μm de l'échantillon C422, pour des mesures de TL effectuées : a) sans préchauffage, b) après un préchauffage à 350°C/10s.

Dans les deux cas, un plateau de paléodoses a été obtenu pour le pic principal de TL (Figure 6.18). Ce plateau s'étendait à basse température pour les mesures effectuées après un préchauffage. La méthode LISA a conduit à une paléodose de 63 ± 5 Gy pour les deux situations étudiées.

Les signaux de TL rouge de 16 aliquotes de quartz de C422 ont également été mesurés avec le protocole SAR, après une préchauffe à 350°C/10s. La paléodose a été évaluée à 61 ± 7 Gy. Elle est donc parfaitement compatible avec celles obtenues avec le protocole des aliquotes multiples.

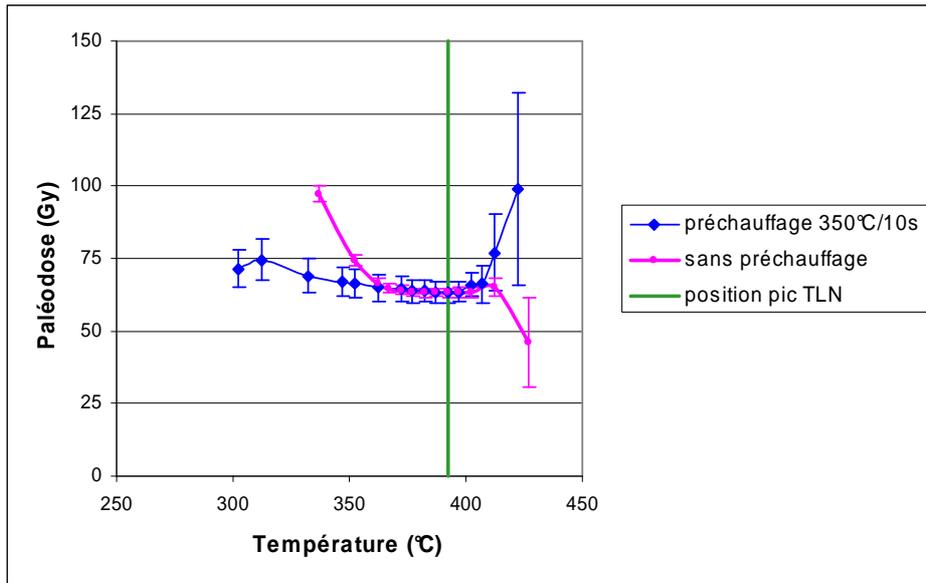


Figure 6.18 : Plateaux des paléodoses obtenus en TLR MA pour les grains de quartz de granulométrie 100-200 μm de l'échantillon C422, pour des mesures de TL effectuées sans préchauffage et après un préchauffage à 350°C/10s.

b) TLB MA

De même qu'en TLR MA, deux séries de mesure ont été réalisées : pour l'une, les aliquotes n'ont subi aucun préchauffage avant la mesure de leurs signaux de TL, pour l'autre un préchauffage à 270°C/10s a été utilisé. Dans les deux cas, le glissement de la courbe de deuxième lecture le long de l'axe des abscisses a permis son recouvrement avec celle de première lecture en appliquant un facteur s égal respectivement à 0,89 et 0,75 (Figure 6.19).

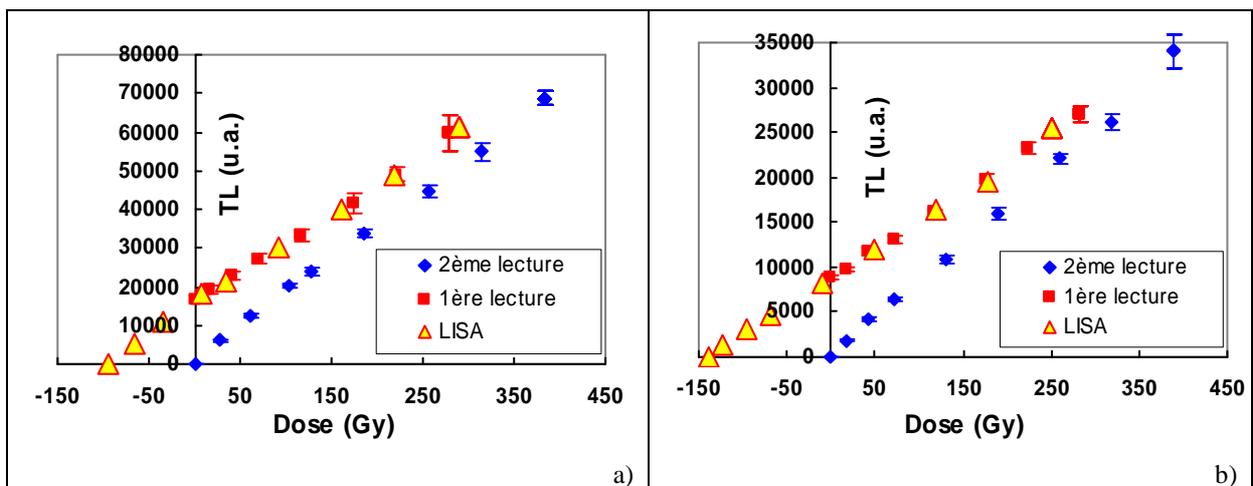


Figure 6.19 : Courbes de croissance obtenues en TLB MA pour les grains de quartz de l'échantillon C422, pour des mesures de TL effectuées : a) sans préchauffage (granulométrie 200-315 μm), b) après un préchauffage à 270°C/10s (granulométrie 100-200 μm).

La méthode LISA a conduit à une paléodose de 95 ± 9 Gy pour les mesures effectuées sans préchauffage et à une paléodose de 139 ± 13 Gy pour les mesures effectuées après un préchauffage. Cependant, dans les deux cas, un plateau de paléodoses a été obtenu pour le pic principal de TL (Figure 6.20).

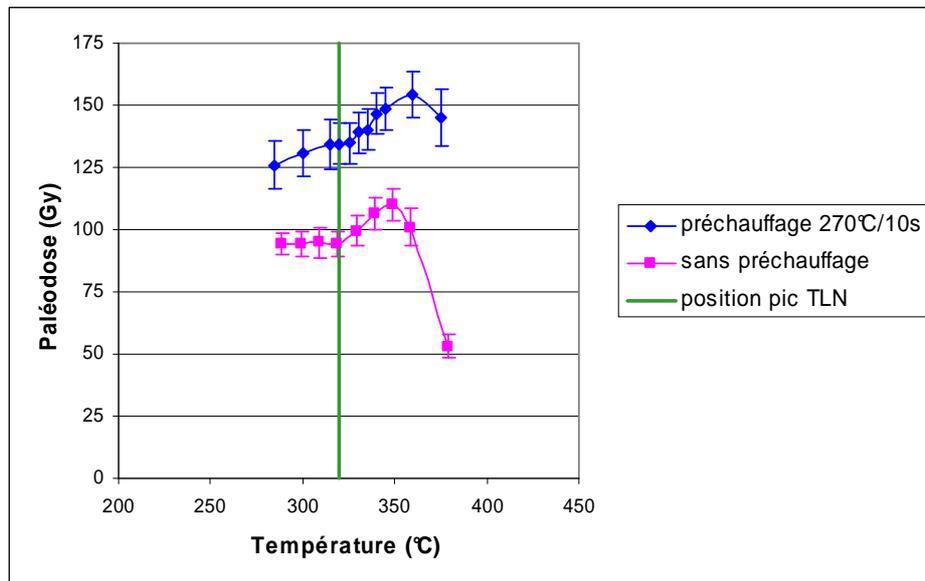


Figure 6.20 : Plateaux des paléodoses obtenus en TLB MA pour les grains de quartz de l'échantillon C422, pour des mesures de TL effectuées sans préchauffage (granulométrie 200-315 μm) et après un préchauffage à 270°C/10s (granulométrie 100-200 μm).

c) TLB SAR

Nous avons mesuré les signaux de TL de 12 aliquotes de l'échantillon C422 après une préchauffe à 310°C/10s. Les mesures étaient assez reproductibles et le taux de recyclage moyen, égal à 1,06, indiquait une prise en compte satisfaisante des changements de sensibilité. Le plateau des paléodoses était correct (Figure 6.21.a) et la paléodose a été estimée à 75 ± 3 Gy.

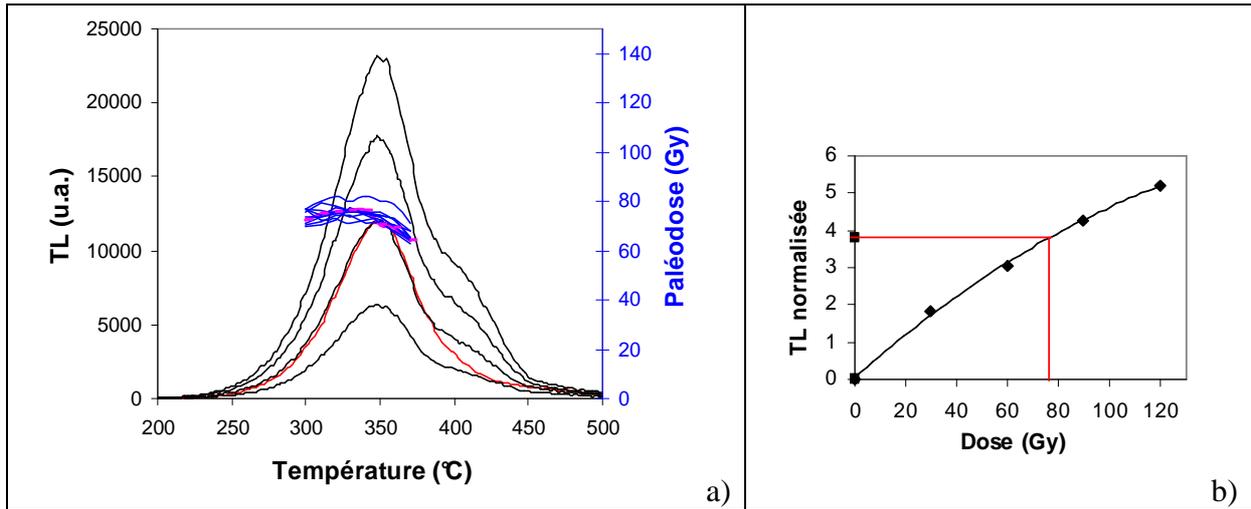


Figure 6.21 : Approche TLB SAR : a) courbes de TL bleue obtenues pour une aliquote de l'échantillon C422. Son plateau de paléodoses (pas d'intégration : 10°C) est figuré en rose ; b) courbe de régénération correspondante. Les plateaux de paléodoses des 11 autres aliquotes de la série mesurée sont représentés en bleu en a).

d) OSL

Nous avons mesuré les signaux d'OSL de 12 aliquotes. Les doses de régénération ont été administrées de manière standard pour la construction de la courbe de croissance du signal (Figure 6.22). Le transfert thermique était inférieur à 1% et le taux de recyclage moyen de 0,98. La paléodose moyenne a été évaluée à 78 ± 5 Gy.

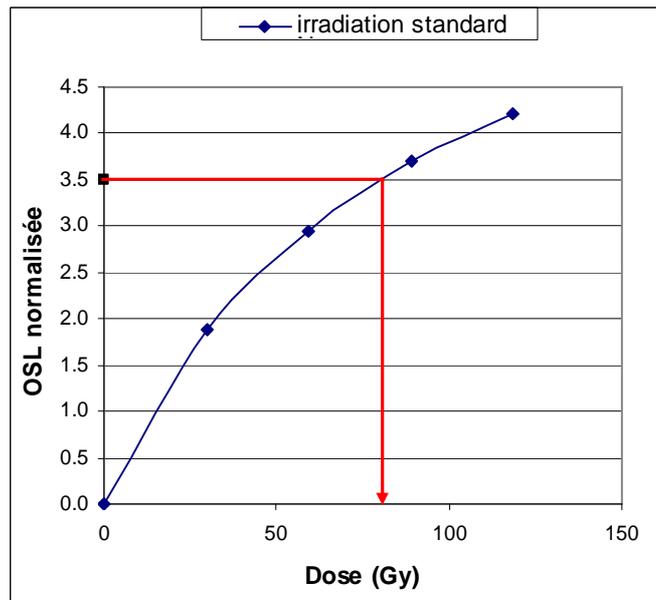


Figure 6.22 : Courbe de croissance obtenue en OSL pour une aliquote de l'échantillon C422. Les doses de régénération ont été administrées de manière standard.

6.2.3.3 Discussion

Les âges obtenus avec les différentes approches testées sont présentés dans le tableau 6.5. Les valeurs, comprises entre 15 et 33 ka, sont précises, mais dispersées. L'exploitation des signaux de TL rouge semble cependant l'approche la plus fiable, puisqu'elle conduit à des âges parfaitement compatibles, quel que soit le protocole utilisé. La mesure des signaux de TL bleue avec le protocole des aliquotes multiples donne des âges à la limite de la compatibilité (à 2 sigma) selon le traitement thermique appliqué (i.e. avec ou sans préchauffe). L'exploitation des signaux de TL bleue avec le protocole SAR conduit à un résultat encore différent, mais comparable à celui obtenu en OSL. Nous n'expliquons pas l'origine de ces différences.

G. Guérin a obtenu un âge de $21,7 \pm 1,1$ ka (com. pers.) par la méthode K-Ar.

Approche	Fraction granulométrique (μm)	Paléodose (Gy)	Dose annuelle ($\text{mGy}\cdot\text{an}^{-1}$)	Age (ka)
TLR MA sans préchauffage	100-200	63 ± 5	$4,16 \pm 0,12$	$15,1 \pm 1,3$
TLR MA avec préchauffage	100-200	63 ± 5	$4,16 \pm 0,12$	$15,1 \pm 1,3$
TLR SAR	100-200	61 ± 7	$4,16 \pm 0,12$	15 ± 2
TLB MA sans préchauffage	100-200	95 ± 9	$4,16 \pm 0,12$	23 ± 2
TLB MA avec préchauffage	200-315	139 ± 13	$4,04 \pm 0,12$	33 ± 3
TLB SAR	100-200	75 ± 4	$4,16 \pm 0,12$	$18,0 \pm 1,1$
OSL irradiation standard	100-200	78 ± 5	$4,16 \pm 0,12$	$18,7 \pm 1,3$

Tableau 6.5 : Bilan des âges obtenus à partir de l'échantillon C422.

6.2.4 Bilan des mesures pour des sites récents

La reproductibilité des mesures des signaux de luminescence des quartz extraits d'échantillons dont l'âge est postérieur à 30 ka était meilleure que celle observée pour les sites plus anciens liés à Laschamp. Il en résulte une amélioration de la précision des âges.

Pour les sites de Saint-Saturnin et de Terre Noire, les âges déterminés avec les différentes approches expérimentales étaient compatibles et en accord raisonnable avec les résultats du carbone 14. En revanche, pour le site de Neschers, dont l'âge, selon la méthode K-Ar, serait voisin de 22 ka, les résultats de la luminescence montraient une dispersion beaucoup plus importante qui reste difficile à comprendre. Il semblerait donc que les signaux de luminescence se complexifient avec l'âge, ce qui expliquerait, en partie, les difficultés rencontrées pour les échantillons compris dans la gamme 30-50 ka. Ce fait peut être dû à une irradiation prolongée des minéraux, qui se traduirait par une variabilité importante de leurs signaux de luminescence.

6.3 Études spécifiques

6.3.1 Contrôle de fading

6.3.1.1 Objectif

Comme nous l'avons mentionné au chapitre 2, certains matériaux sont sujets au « fading anormal », qui correspond à la perte d'une partie des charges stockées dans les pièges sans qu'intervienne une stimulation thermique ou optique. Nous souhaitons nous assurer que les échantillons de quartz étudiés dans ce travail n'étaient pas sujets à ce phénomène qui conduit à une sous-estimation de la dose reçue.

6.3.1.2 Mode opératoire

Les tests ont été réalisés sur deux échantillons de quartz, celui de Neschers (C422) de granulométrie 100-200 μm et celui des Riaumes (C397bis) de granulométrie 850-1000 μm broyé à 100-200 μm . Pour cette expérience, une fraction de la poudre naturelle de chaque échantillon a préalablement été recuite à 380°C pendant 16 h, de manière similaire à la remise à zéro du quartz utilisé lors de la construction de la courbe de 2^{ème} lecture avec le protocole mixte multiple-aliquot en TL. Ensuite, une dose de 100 Gy a été administrée, avec l'irradiateur γ du LPC, aux deux fractions de chaque échantillon : dose additive (TLnat + 100 Gy) pour l'une et dose de régénération (0 + 100 Gy) pour l'autre. Les mesures de TL rouge et de TL bleue de ces quartz ont alors été effectuées 1 j, 1 semaine et 1,5 mois après les irradiations. A chaque date, le signal de TL naturel (TLnat) a également été mesuré pour s'assurer de la bonne stabilité de l'appareillage.

6.3.1.3 Résultats

Les résultats des mesures sont présentés dans la figure 6.23.

En TL rouge, pour les deux échantillons et pour les deux doses d'irradiation, le pic à 140°C diminue rapidement avec le temps et il n'est plus visible 1,5 mois après l'irradiation. Le pic à 230°C, absent sur les signaux de TLnat, est stable sur la période étudiée (1,5 mois). Les pics à 325°C et 380°C ne présentent pas de fading, comme l'attestent les superpositions des trois courbes correspondant aux doses TLnat + 100 Gy et 0 + 100Gy : les faibles

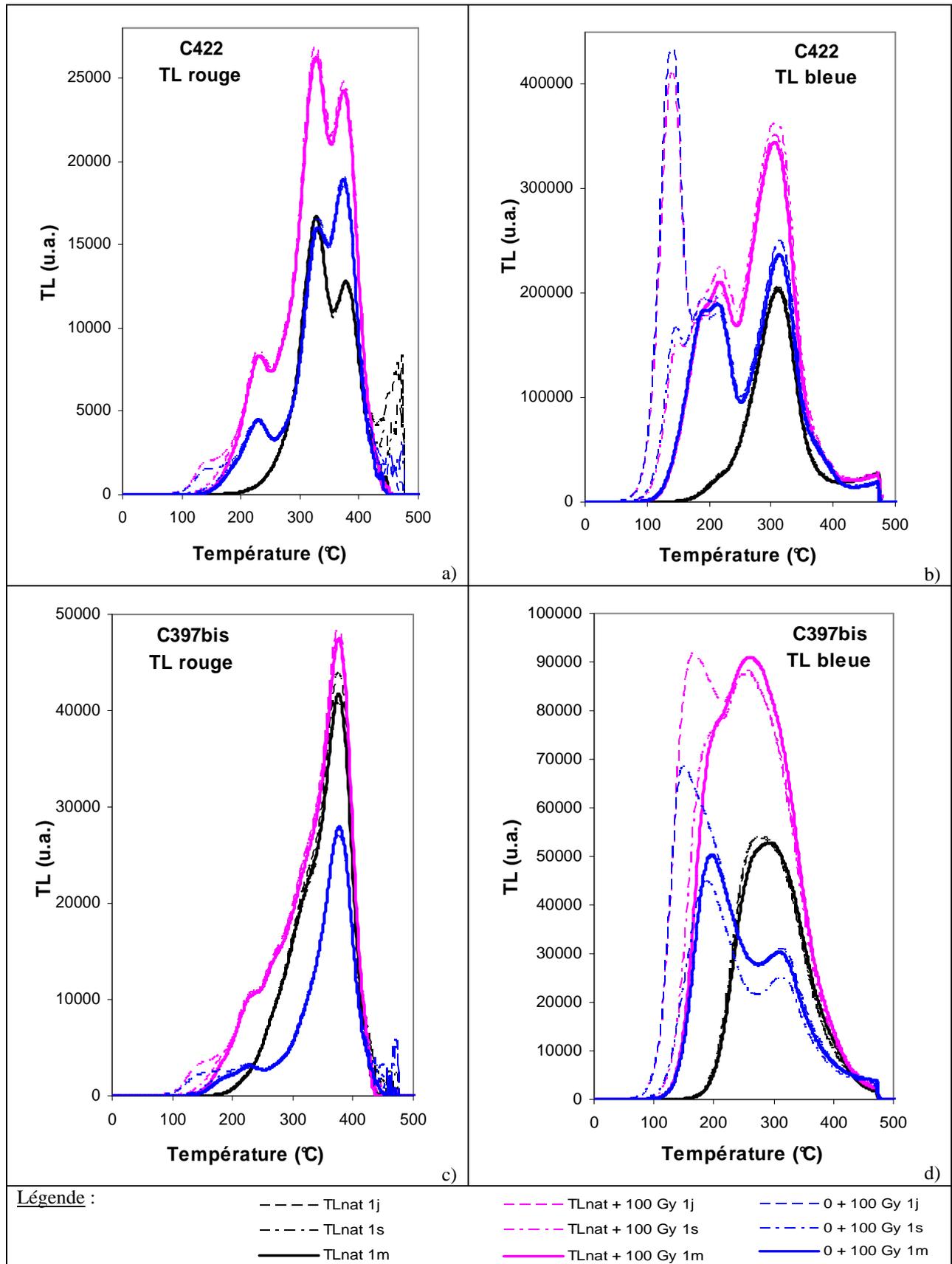


Figure 6.23 : Signaux de TL rouge et de TL bleue des échantillons C422 et C397bis enregistrés 1 jour (1j), 1 semaine (1s) et 1mois (1m) après l'irradiation. Chaque courbe représente la moyenne de la mesure de 5 aliquotes.

différences observées entre les signaux ne sont pas significatives, vue la dispersion des mesures (non représentée sur la figure). Notons que le pic à 325°C est peu marqué pour C397bis. Pour C422, le signal de TL de ce pic est plus élevé que celui du pic à 380°C pour la TLnat et pour la dose additive TLnat+100 Gy, tandis qu'après le recuit la tendance est inversée, suggérant que la chauffe de 16 heures à 380°C a modifié la sensibilité des pics à 325 et 380°C de cet échantillon.

En TL bleue, la sensibilisation du pic à 140°C des deux échantillons est très importante, mais, comme pour la TL rouge, le piège correspondant à ce pic est totalement vidé au bout d'1,5 mois. Au niveau du pic à 325°C, les signaux enregistrés 1 j, 1 semaine et 1,5 mois après l'irradiation sont compatibles, à la dispersion des mesures près : ce pic peut donc être considéré comme stable.

Pour les matériaux sujets au phénomène de « fading anormal », le déclin de la luminescence en fonction du temps est logarithmique. Cette expérience n'a pas mis en évidence un tel phénomène pour les pics de TL à haute température des quartz étudiés. Elle a donc permis de confirmer la stabilité de ces signaux de TL dans le temps et de justifier leur utilisation à des fins de datation.

6.3.2 Influence du débit de dose

6.3.2.1 Introduction

Une des hypothèses fondamentales de la datation par la luminescence est que les doses d'irradiation délivrées à l'échantillon dans la nature et au laboratoire conduisent à la même distribution de charges piégées, et par suite au même signal de luminescence. Pourtant, le fait que les doses naturelles et artificielles soient délivrées à des débits significativement différents pourrait mettre en doute cette équivalence. En effet, les débits de dose environnementaux pour les quartz sédimentaires sont typiquement de l'ordre de 1 à $5 \cdot 10^{-3}$ Gy.an⁻¹, tandis qu'au cours de l'irradiation au laboratoire des débits de dose d'un facteur 10^8 à 10^9 plus élevés sont communément utilisés.

Les effets des débits de dose sur le quartz ont fait l'objet de plusieurs études expérimentales. Groom et al. (1978) ont étudié la réponse TL d'une poudre de quartz issue d'un cristal de roche pour des débits de dose compris entre 1 et 10000 Gy.h⁻¹ et pour différentes doses d'irradiation. Ces irradiations étaient réalisées par l'intermédiaire de rayons

gamma émis par une source de ^{60}Co . Ils ont également enregistré les changements de sensibilité de la TL dus à ces irradiations en ajoutant, après cette première lecture TL, une dose test de 50 Gy à chaque aliquote avec une source de rayonnement bêta. Pour les doses les plus faibles, de 10 à 100 Gy, ils ont observé que la réponse TL en fonction du débit était constante pour les faibles débits, puis qu'elle diminuait pour les débits les plus élevés. Le débit pour lequel la chute de TL se produisait augmentait avec la dose totale. Par contre, la sensibilité de la TL après ces irradiations ne montrait pas de dépendance à l'égard du débit de dose utilisé et de la dose appliquée au préalable. Pour les doses les plus élevées, comprises entre 350 et 750 Gy, les variations de la TL avec le débit de dose se complexifiaient, du fait de la sensibilisation du minéral. Cette dernière augmentait avec le débit, puis chutait fortement. G. Valladas et ses collègues (Valladas et Ferreira, 1980 ; Valladas et Valladas, 1982) se sont intéressés à d'autres types de quartz, notamment les quartz détritiques. Ils ont comparé la réponse TL d'échantillons ayant reçu une dose de 32 Gy, administrée avec des sources de rayonnement gamma dont le débit différait d'un facteur 1000 (précisément 0,48 et 540 $\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$). L'utilisation de filtres bleu, UV et vert leur a permis d'isoler respectivement les pics situés vers 320, 360 et 370°C. Ils ont observé une diminution du pic à 320°C accompagnée d'une augmentation du pic à 360°C lorsque le débit augmentait, tandis que le pic à 370°C semblait peu affecté par la variation du débit. Ces comportements étaient toutefois moins marqués pour les quartz détritiques que pour les quartz filoniens.

Les effets des débits de dose semblant dépendre du type de quartz envisagé, mais aussi du domaine de longueur d'onde étudié, nous souhaitons étudier la sensibilité de nos échantillons vis-à-vis de ce paramètre. Notre étude a consisté à comparer, dans le bleu et le rouge qui sont nos domaines d'intérêt, les réponses TL de quartz irradiés à quatre débits différents.

6.3.2.2 Mode opératoire

Cette expérience a impliqué deux échantillons, choisis dans des gammes d'âge différentes et pour lesquels la détermination de la paléodose en TL avec la méthode LISA présentait des difficultés. Il s'agit, de même que pour les tests de fading (cf. paragraphe 6.3.1), du quartz de Neschers (C422) de granulométrie 100-200 μm et celui des Riaumes (C397bis) de granulométrie 850-1000 μm broyé à 100-200 μm . Pour chacun des échantillons, deux doses ont été étudiées : $\text{TL}_n + 100 \text{ Gy}$ et $0 + 100\text{Gy}$. Pour cette dernière, la poudre naturelle a été recuite à 380°C pendant 16 h, de manière similaire à la remise à zéro du quartz

utilisé lors la construction de la courbe de 2^{ème} lecture avec le protocole mixte multiple-aliquot en TL.

Les irradiations ont été réalisées au Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) à Saclay par Jean-Michel Dolo et Tristan Garcia, avec trois irradiateurs gamma de ⁶⁰Co, sur des lots de quartz d'environ 200 mg enfermés dans des enceintes en Delrin. Les quatre débits utilisés étaient 0,98, 9,8, 45,7 et 1062 Gy.h⁻¹. Une dose de 100 Gy a par ailleurs été ajoutée aux poudres naturelle et recuite de chaque échantillon avec l'irradiateur gamma (¹³⁷Cs) du LPC, dont le débit était de 138 Gy.h⁻¹ à la date de nos expériences. Pour chaque dose, les signaux de TL, normalisés entre eux au volume de poudre, ont été mesurés au LPC 6 semaines après les irradiations.

6.3.2.3 Résultats

a) Précautions à prendre pour l'analyse des résultats

Nous avons constaté des différences d'intensité de certains pics de TL entre les échantillons irradiés au LNHB et au LPC. Ainsi, pour C422 par exemple, les pics à 230 et 325°C en TL rouge (Figure 6.24.a), présents sur les courbes correspondant aux aliquotes irradiées au LPC, sont pratiquement inexistantes sur celles correspondant aux aliquotes irradiées au LNHB. De même, en TL bleue (Figure 6.24.b), l'ensemble des signaux de TL des échantillons irradiés au LNHB sont notablement plus faibles que ceux des échantillons irradiés au LPC. Pour expliquer ces différences, nous avons émis l'hypothèse que les gélules en Delrin pouvaient n'être pas parfaitement étanches à la lumière, d'où un vidage partiel des pièges sensibles à la lumière, au cours du stockage de la poudre de quartz dans ces gélules. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons irradié au LPC 2 aliquotes de la poudre naturelle (TLn + 100 Gy) et de celle recuite à 380°C (0 + 100 Gy) de l'échantillon C422. La première aliquote a été placée à l'abri de la lumière, tandis que la seconde, stockée dans une gélule en Delrin, a été exposée à la lumière du jour pendant une semaine. Cette période correspond à la durée maximale pendant laquelle les gélules ont été exposées à la lumière, entre leur irradiation au LMRI et leur stockage au LPC à l'abri de la lumière. Les mesures de TL qui ont suivi ont confirmé notre hypothèse (Figure 6.25) au sujet de l'effacement des pics à 230 et 325°C, mais elles ont montré que le pic à 380°C utilisé en datation n'était pas affecté par la lumière sur la période d'exposition considérée, comme l'avaient déjà observé certains auteurs (*e.g.*, Hashimoto et al., 1989 ; Miallier et al., 1994a).

Nous supposons ces conclusions valables également pour C397bis. Pour l'analyse des résultats, seul l'effet du débit de dose sur le pic à 380°C en rouge sera donc considéré.

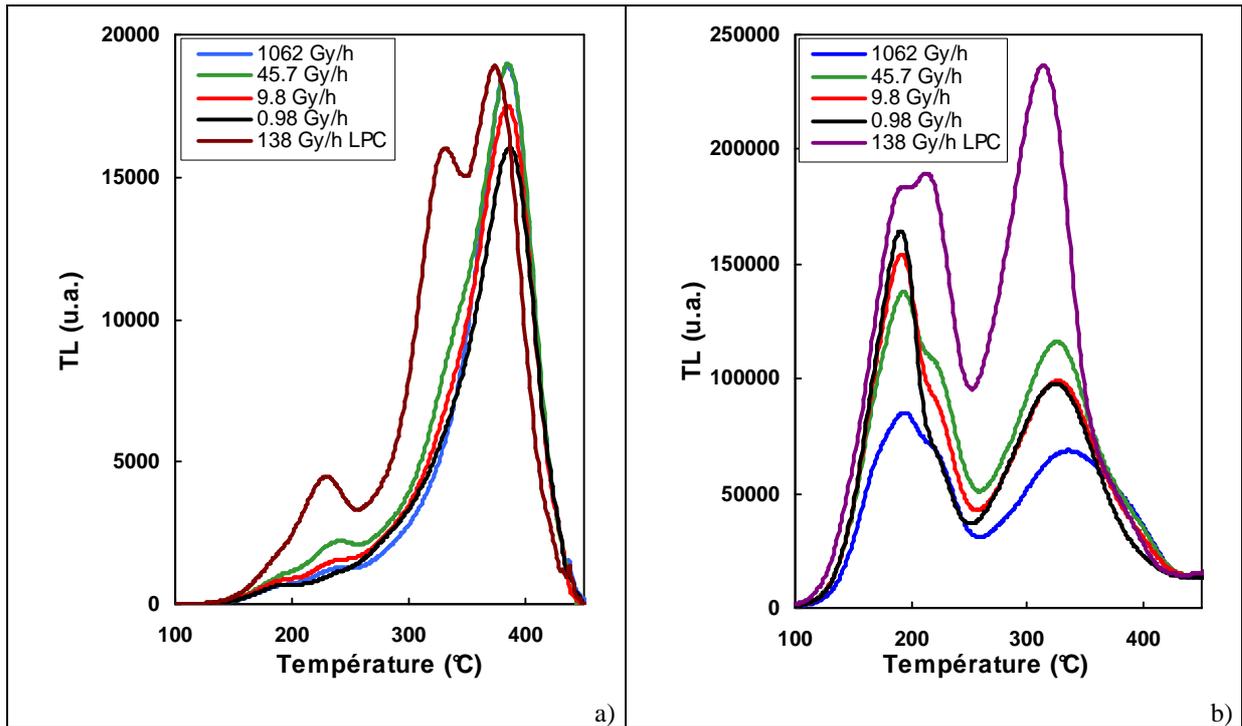


Figure 6.24 : Courbes de TL rouge (a) et de TL bleue (b) obtenues pour l'échantillon C422. Une dose de régénération de 100 Gy a été administrée avec 5 débits différents : 0,98, 9,8, 45,7 et 1062 Gy.h⁻¹ au LNHB (irradiateurs γ de ⁶⁰Co) et 138 Gy.h⁻¹ au LPC (irradiateurs γ de ¹³⁷Cs). Chaque courbe représente la moyenne de la mesure de 10 aliquotes, excepté pour la dose appliquée au LPC (5 courbes).

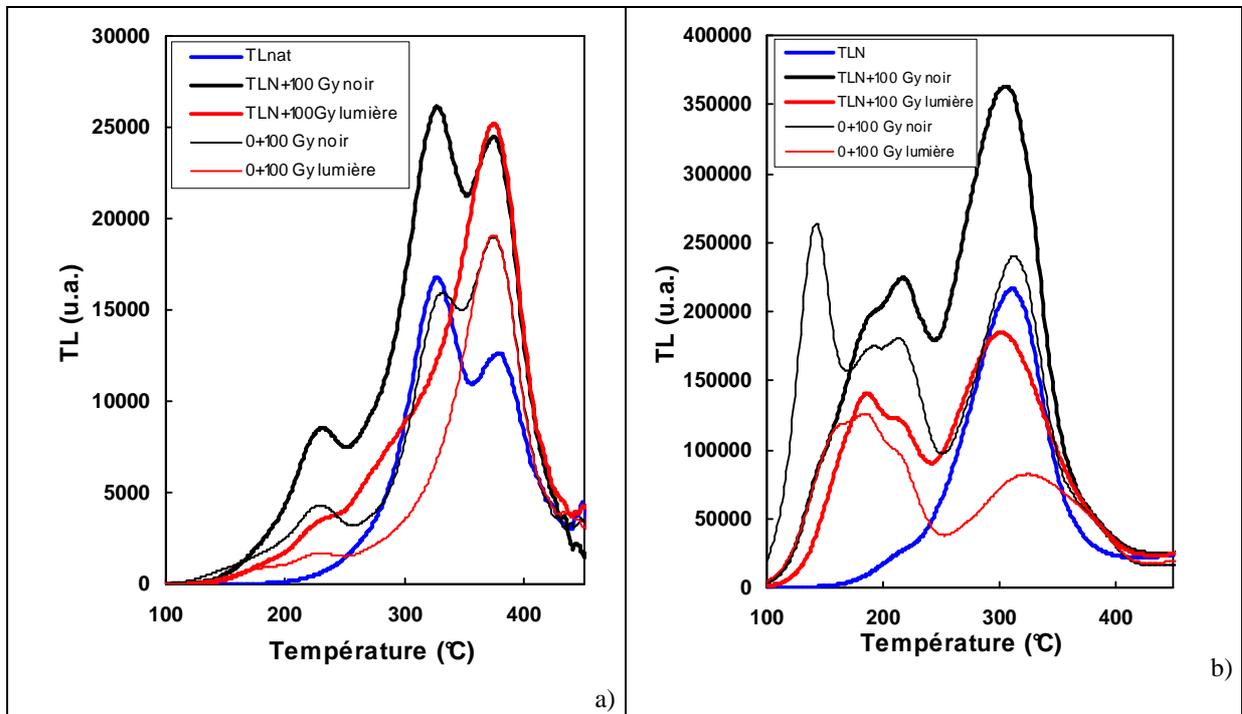


Figure 6.25 : Effet d'une exposition de l'enceinte en Delrin à la lumière sur les signaux de TL rouge (a) et de TL bleue (b) de l'échantillon C422. Les irradiations ont été réalisées avec l'irradiateur γ du LPC. Chaque courbe représente la moyenne de la mesure de 5 aliquotes.

b) Résultats en TL rouge

Pour l'échantillon C422 (Figure 6.26.a), le signal du pic principal semble augmenter légèrement avec le débit, pour les 2 doses étudiées. Pour l'échantillon C397bis (Figure 6.26.b), nous n'avons pas observé de différences significatives entre les différents débits.

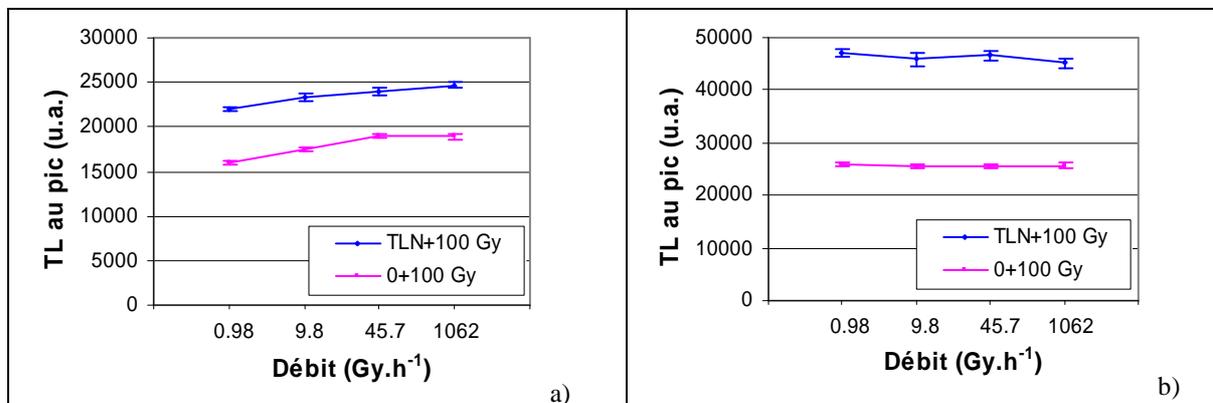


Figure 6.26 : Influence du débit de dose sur l'intensité du pic de TL rouge à 380C pour l'échantillon C422 (a) et pour l'échantillon C397bis (b).

6.3.2.4 Conclusion

Pour l'un des échantillons, dans la gamme de débit de dose étudiée, la sensibilité de la TL rouge semble dépendre légèrement de ce paramètre, tandis que pour l'autre, l'effet du débit de dose est négligeable. Ces résultats suggèrent donc des différences de comportement selon les quartz étudiés.

Toutefois, les gélules en Delrin n'étant pas étanches à la lumière, nos résultats sont à considérer avec prudence. Il serait cependant intéressant de refaire cette expérience avec des enceintes en aluminium par exemple, afin d'apprécier la sensibilité des signaux de TL au débit de dose dans le rouge et dans le bleu et de l'étendre aux signaux d'OSL.

6.3.3 Influence de la température de recuit sur la sensibilisation de la courbe de deuxième lecture pour la datation par TL avec le protocole mixte multiple-aliquot

6.3.3.1 Objectif

Le protocole mixte multiple-aliquot, mis en œuvre pour la datation par TL, nécessite la construction d'une courbe de deuxième lecture, utilisée comme modèle de croissance du

signal, en particulier pour les doses inférieures à la dose naturelle. A cette fin, une fraction de l'échantillon de quartz est recuite afin de remettre à zéro son signal de TL, puis divisée en aliquotes qui sont irradiées à des doses croissantes. Nous souhaitons étudier l'influence de la température de recuit des grains de quartz sur la sensibilisation des signaux de TL, et par suite son influence sur la détermination de la paléodose.

6.3.3.2 Mode opératoire

Les mesures ont été réalisées sur les quartz de la fraction 500-600 μm de l'échantillon C397bis, broyés à 200-315 μm afin de disposer d'une quantité suffisante de poudre homogène. Celle-ci a été divisée en quatre lots :

- le lot ① a permis la construction d'une courbe de première lecture.

Il a été divisé en 8 aliquotes : l'une d'elle a été réservée pour la lecture du signal naturel et les autres ont été irradiées à des doses croissantes (50, 100, 200, 300, 450, 600 et 750 Gy).

- les lots ② à ④, une fois recuits au laboratoire, ont permis la construction de courbes de deuxième lecture.

Trois températures et des durées variables ont été utilisées : respectivement 275°C/2 semaines, 380°C/16 h et 600°C/16 h. Chaque lot a ensuite été divisé en 8 aliquotes qui ont été irradiées à des doses croissantes (50, 120, 200, 350, 500, 650, 800 et 1000 Gy).

Les signaux de TL de ces 4 lots ont été mesurés dans le rouge et dans le bleu.

6.3.3.3 Résultats et discussion

a) TL rouge

Les mesures de TL rouge (Figure 6.27.a) pour la construction de la courbe de croissance de première lecture ont été effectuées après un préchauffage des aliquotes à 260°C/10s. Ces conditions ont également été utilisées pour la mesure de la TL des aliquotes ayant subi un recuit à 380°C/16h (Figure 6.27.b). Les courbes de croissances (Figure 6.28) avaient la forme habituelle de celles obtenues avec la TL rouge du quartz et la paléodose a été évaluée avec la méthode LISA à 229 ± 32 Gy.

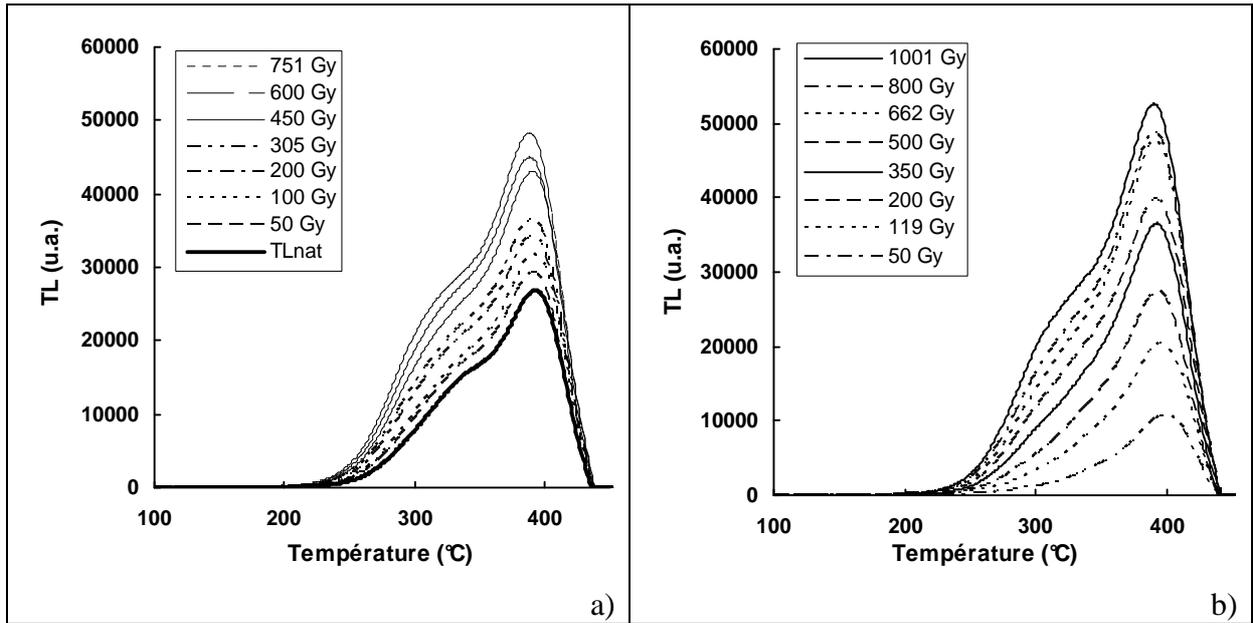


Figure 6.27 : Courbes de TL rouge de première lecture (a) et de deuxième lecture pour le lot recuit à 380°C/16h (b) (préchauffage 260°C/10s).

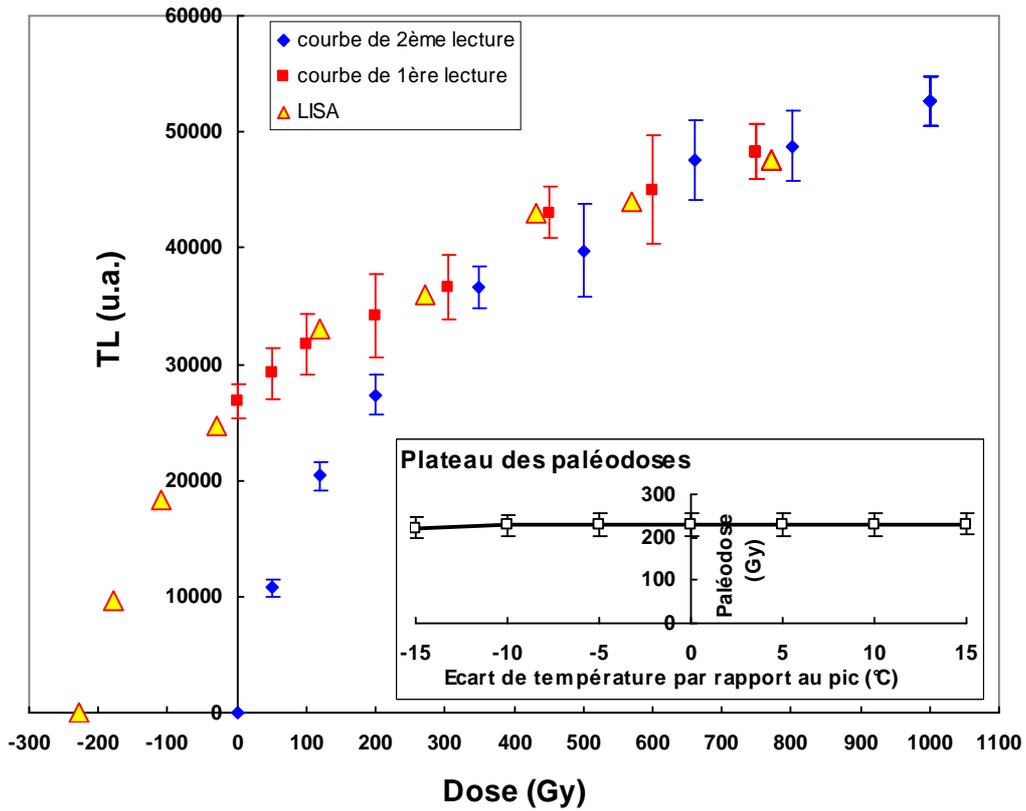


Figure 6.28 : Courbe de première lecture et courbe de deuxième lecture obtenue pour le lot recuit à 380°C/16 h en TL rouge.

Pour la courbe de croissance de deuxième lecture des quartz recuits à 600°C/16h, les aliquotes ont d'abord été préchauffées à 260°C/10s avant la mesure de leur signal de TL (Figure 6.29.a). Le minéral a été fortement sensibilisé par le recuit et un pic a été activé à haute température (vers 450°C). La courbe de deuxième lecture, d'abord légèrement saturante, connaît un changement de forme pour les doses supérieures à 500 Gy et avec une croissance de la TL plus forte (« seconde croissance »), ce qui constitue une limite à l'application de la méthode LISA. La paléodose déterminée en utilisant cette méthode de glissement est de 319 ± 212 Gy (Figure 6.29.b). Cette forte incertitude s'explique par le très faible recouvrement des courbes de croissance de première et de deuxième lecture.

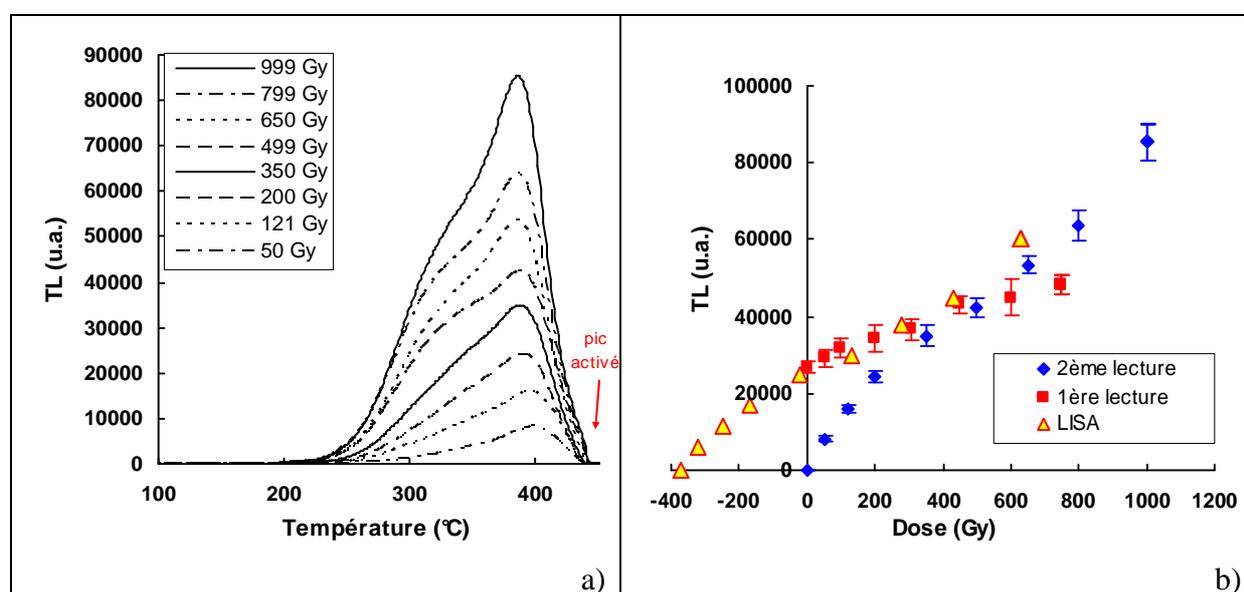


Figure 6.29 : Courbes de TL rouge de deuxième lecture pour le lot recuit à 600°C/16h (préchauffage 260°C/10s) (a) et détermination de la paléodose avec la méthode LISA (b).

De nouvelles mesures de TL ont été réalisées avec un préchauffage plus élevé (320°C/10s), afin de mieux définir le pic principal à 380°C (Figure 6.30.a). Le recouvrement des courbes de croissance de première et de deuxième lecture a été très peu amélioré (Figure 6.30.b), ce qui laisse supposer que la contribution des pics à basse température au pic principal est faible. La paléodose a été évaluée à 385 ± 72 Gy. L'incertitude sur le résultat a donc diminué, mais la paléodose reste beaucoup plus élevée que celle déterminée en utilisant les quartz recuits à 380°C/16h pour la deuxième lecture. Notons que lors du recuit à 600°C, la température de changement de phase du quartz a été franchie, puisque le passage de la forme α (basse température) à la forme β (haute température) intervient à 573°C. Les grains de quartz ont donc subi des modifications de leur structure, et par suite de leurs propriétés TL.

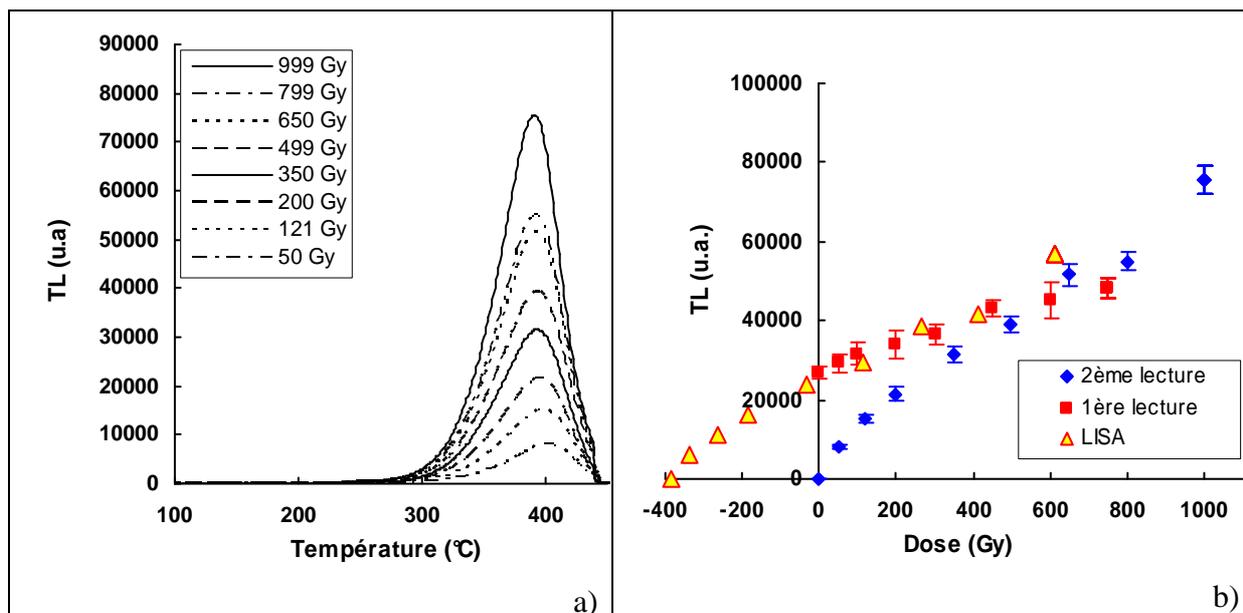


Figure 6.30 : Courbes de TL rouge de deuxième lecture pour le lot recuit à 600°C/16h (préchauffage 320°C/10s) (a) et détermination de la paléodose avec la méthode LISA (b).

Pour obtenir la courbe de deuxième lecture avec le lot de quartz recuit à 275°C/2 semaines, les aliquotes ont été préchauffées à 320°C/10s, afin de bien définir le pic à 380°C (Figure 6.31.a). Les courbes de croissance (Figure 6.31.b) étaient typiques de celles obtenues en exploitant la TL rouge du quartz ; la paléodose estimée avec la méthode LISA (235 ± 36 Gy), était compatible avec celle obtenue avec le quartz recuit à 380°C/16h (229 ± 32 Gy).

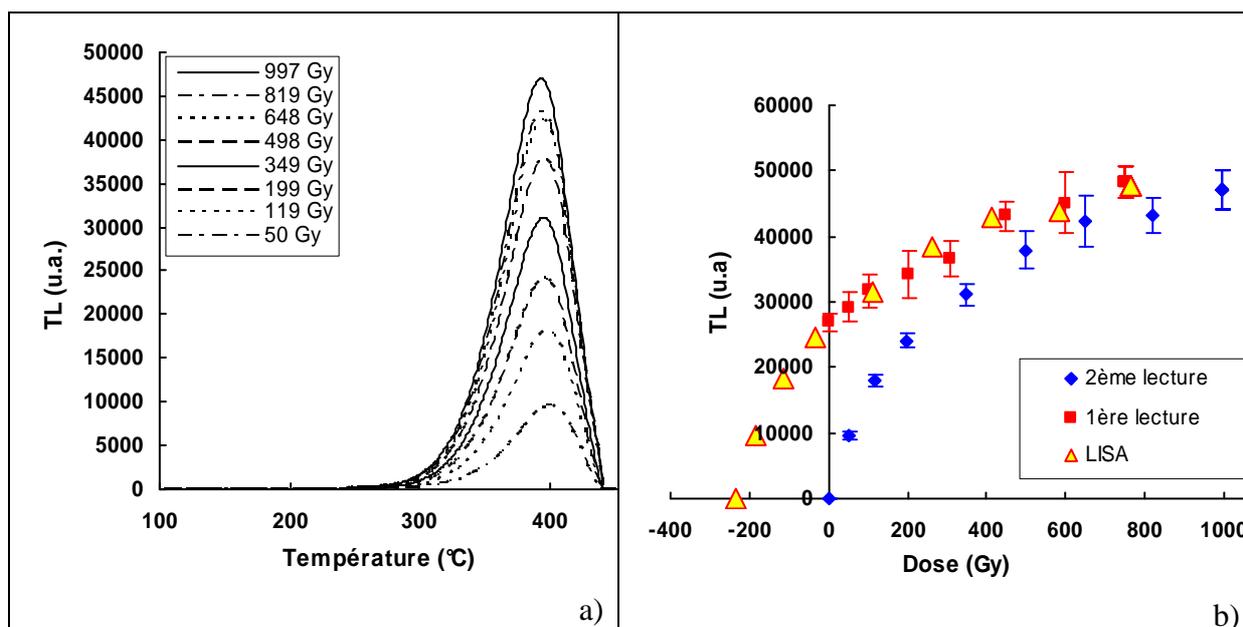


Figure 6.31 : Courbes de TL rouge de deuxième lecture pour le lot recuit à 275°C/2 semaines (préchauffage 320°C/10s) (a) et détermination de la paléodose avec la méthode LISA (b).

b) TL bleue

Les mesures de TL bleue pour la construction de la courbe de première lecture et de celles de deuxième lecture avec les lots de quartz recuits respectivement à 275°C et à 380°C ont été effectuées après un préchauffage des aliquotes à 260°C/10s. La courbe de première lecture est très irrégulière (Figure 6.32). Les courbes de deuxième lecture, qui attestent d'un changement de sensibilité de la TL important, n'ont pas la même forme que celle de première lecture. Il s'agit d'un cas limite de l'application de la méthode LISA et il en résulte des paléodoses avec des erreurs relativement importantes, à la limite de la compatibilité : 173 ± 33 et 246 ± 48 Gy respectivement pour les recuits à 275°C et 380°C.

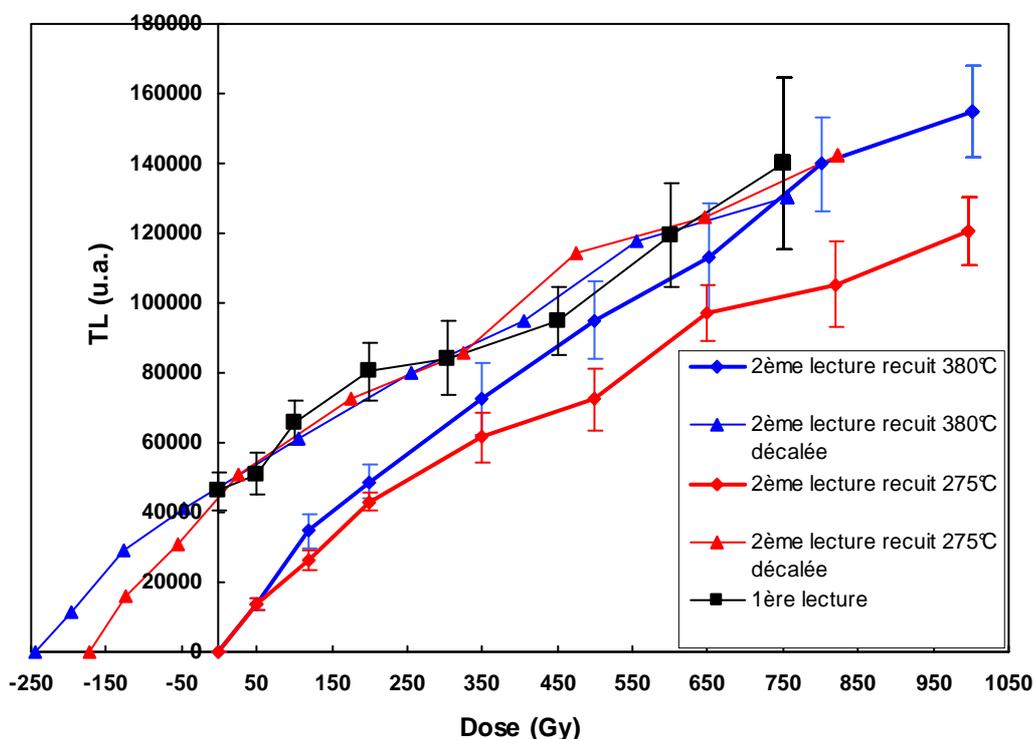


Figure 6.32 : Courbe de première lecture et courbes de deuxième lecture obtenues pour les lots recuits à 275°C/2 semaines et à 380°C/16 h en TL bleue.

Les mesures de TL rouge pour la construction de la courbe de deuxième lecture avec les quartz recuits à 600°C/16h ayant consommé la plus grande partie de échantillon, il n'a pas été possible de poursuivre ces investigations avec la TL bleue.

c) Bilan

Le bilan des résultats obtenus pour les différentes températures de recuit des grains de quartz est donné dans le tableau 6.6. L'étude de la TL rouge a montré qu'un recuit trop élevé,

comme celui à 600°C, n'était pas approprié pour déterminer la paléodose avec la méthode LISA, car il était à l'origine d'un changement des propriétés du quartz. Le recuit à 380°C/16 h utilisé en routine par l'équipe du LPC reste le meilleur compromis : cette température présente l'avantage de limiter la sensibilisation du quartz, tout en assurant un vidage efficace des pièges en un temps assez court. Les résultats obtenus avec la TL bleue sont moins cohérents en raison de l'irrégularité de la croissance de la TL de première chauffe et des changements de sensibilité apparaissant après la deuxième chauffe, phénomènes qui rendent l'estimation de la paléodose délicate.

Conditions de remise à zéro	TL rouge		TL bleue	
	Préchauffe des aliquotes pour la deuxième lecture	Paléodose (Gy)	Préchauffe des aliquotes pour la deuxième lecture	Paléodose (Gy)
275°C/2 semaines	320°C/10 s	235 ± 36	260°C/10 s	173 ± 33
380°C/16 h	260°C/10 s	229 ± 32	260°C/10 s	246 ± 48
600°C/16 h	260°C/10 s	319 ± 212	-	-
	320°C/10 s	385 ± 72		

Tableau 6.6 : Bilan des résultats.

6.3.4 Étude expérimentale d'un cycle complet de datation par TL avec le protocole mixte multiple-aliquot avec des quartz « géologiques » chauffés au laboratoire

6.3.4.1 Objectifs

Les expériences décrites ci-dessous avaient pour objectif de reproduire l'ensemble des cycles de recuits et d'irradiations subits par un échantillon prélevé sous une coulée volcanique et destiné à être daté en TL avec le protocole mixte multiple-aliquot. L'idée était de partir d'un quartz « sédimentaire vierge », de façon à permettre une comparaison entre la TL d'un quartz ayant connu un cycle complet [chauffage naturel + irradiations (naturelle et artificielle) + chauffage TL] et celle du quartz « sédimentaire vierge » après qu'il ait subi un cycle identique, simulé au laboratoire. Nous souhaitions observer notamment si la TL d'un échantillon recuit naturellement à 500 ou 600°C il y a très longtemps différait ou non de celle d'un échantillon recuit récemment.

Pour réaliser ces expériences, il était nécessaire de disposer de quartz non chauffés de la même source que les quartz chauffés. Cette condition était remplie aux Riaumes. La coupe du terrain montrait, sous la coulée, le même sédiment sablo-argileux sur une épaisseur supérieure au 1 m. L'observation macroscopique et microscopique de la fraction siliceuse (P. Boivin) suggérait qu'il n'y avait pas de différence de nature et d'origine du sédiment de bas en haut de la coupe.

Par ailleurs, l'estimation des températures maximales atteintes en fonction de la distance par rapport à la coulée a été effectuée par comparaison avec un site présentant des conditions (épaisseur de la coulée, distance par rapport à la source) presque identiques à celui des Riaumes : la coulée de Neschers (cf. paragraphe 6.2.3). A Neschers, une étude basée sur la décrépitation des micro-inclusions fluides contenues dans les grains de quartz avait permis en effet d'obtenir un gradient de température (Figure 6.33) assez précis (Miallier et al., 2000, Chassagne, 2004) : la température maximale atteinte était voisine de 620°C au voisinage du contact sédiment-coulée et de 500°C à 15 cm plus bas. A 70 cm (profondeur maximale étudiée à Neschers), la température maximale était 285°C et cette courbe de décroissance a permis d'évaluer une température de 150°C environ vers 1 m sous la coulée.

Ces résultats ont, par suite, été extrapolés à la coupe des Riaumes : ainsi les échantillons C396 et C397 bis, prélevés dans les 30 premiers cm sous la coulée, sont présumés avoir été chauffés à une température de l'ordre de 500 à 600°C. Par contre, l'échantillon C397ter, prélevé à 1m, n'aurait pas été chauffé à plus de 150°C environ. Cette hypothèse est confortée par la couleur blanchâtre des grains de quartz alors que la surface des grains des échantillons C396 et C397 bis est rouge brique, du fait de l'oxydation du fer contenu dans la matrice argileuse lors de la chauffe à haute température. L'échantillon C397ter servira donc de témoin pour étudier, expérimentalement, les effets des cycles chauffage/irradiation sur la TL des échantillons C396 et C397bis utilisés pour dater la coulée.

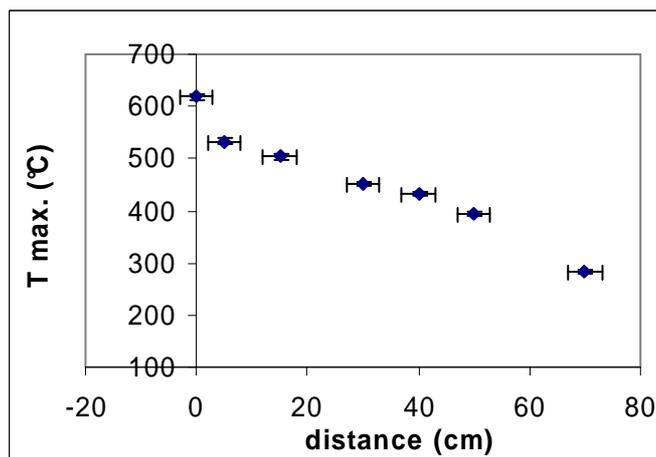


Figure 6.33 : Température maximale atteinte par les grains de quartz en fonction de la distance par rapport à la lave sous la coulée de Neschers (d'après Chassagne, 2004).

6.3.4.2 Mode opératoire

L'échantillon C397ter a été séparé en deux lots identiques. Ces derniers ont été mis au four et portés l'un à 600°C, l'autre à 500°C, pendant une durée de 30 h. Ces températures encadrent probablement la température de cuisson initiale des échantillons datés.

Du quartz pur a été extrait des deux lots de la façon suivante : la fraction 600-1000 µm a d'abord été sélectionnée par tamisage, puis attaquée à HF (40%) pendant 1 h et tamisée à nouveau à 600 µm. Elle a ensuite été broyée, tamisée à 200-315 µm, purifiée au Frantz, retraitée à HF (30 min) et enfin tamisée à 200 µm pour éliminer les poussières.

Ensuite, chacun des deux lots de quartz a lui-même été subdivisé en deux parts :

- la première part, qui représente l'échantillon irradié sous la coulée, a été utilisée pour la construction de la courbe de première lecture.

Cet échantillon a été divisé en 5 aliquotes d'environ 150 mg qui ont été irradiées aux doses de 70, 140, 280, 560, et 980 Gy, respectivement. La dose de 280 Gy simule la dose naturelle (N) qu'aurait reçue l'échantillon au bout de 60 ka environ sous la coulée. Les doses de 560 et 980 Gy simulent les doses additives pour la première lecture (soit : 560 Gy = N + 280 Gy et 980 Gy = N + 700 Gy). L'ajout des doses de 70 et 140 Gy avait pour objectif de préciser la forme de la courbe de croissance aux basses doses (*i.e.* inférieures à la « paléodose simulée »), zone qui ne nous est pas connue en situation réelle de datation.

- la deuxième part, qui simule l'échantillon recuit au laboratoire, a été utilisée pour obtenir la courbe de deuxième lecture.

Cet échantillon a été irradié à une dose de 280 Gy pour simuler la dose naturelle, puis il a été recuit à 380°C pendant 16 h. Enfin, il a été divisé en 5 aliquotes qui ont été irradiées à des doses croissantes : 70, 140, 280, 560, et 980 Gy. La différence de traitement par rapport à la première part est donc l'intervention d'un chauffage supplémentaire (380°C/16h), qui simule la remise à zéro des signaux de TL effectuée au laboratoire pour la seconde lecture dans une routine de datation.

Les signaux de TL des deux lots (recuits à 500 et 600°C) ont ensuite été mesurés suivant la procédure mixte standard de multiple-aliquot dans le rouge et dans le bleu.

6.3.4.3 Résultats

a) TL rouge

Échantillons recuits à 600°C

Les émissions de TL et les courbes de croissance en fonction de la dose sont typiques de celles obtenues avec la TL rouge du quartz (Figure 6.34.a). Pour les mesures correspondant aux doses respectives de 280, 560 et 980 Gy, les points expérimentaux des deux séries de mesures (première et deuxième lectures) se superposent (Figure 6.34.b).

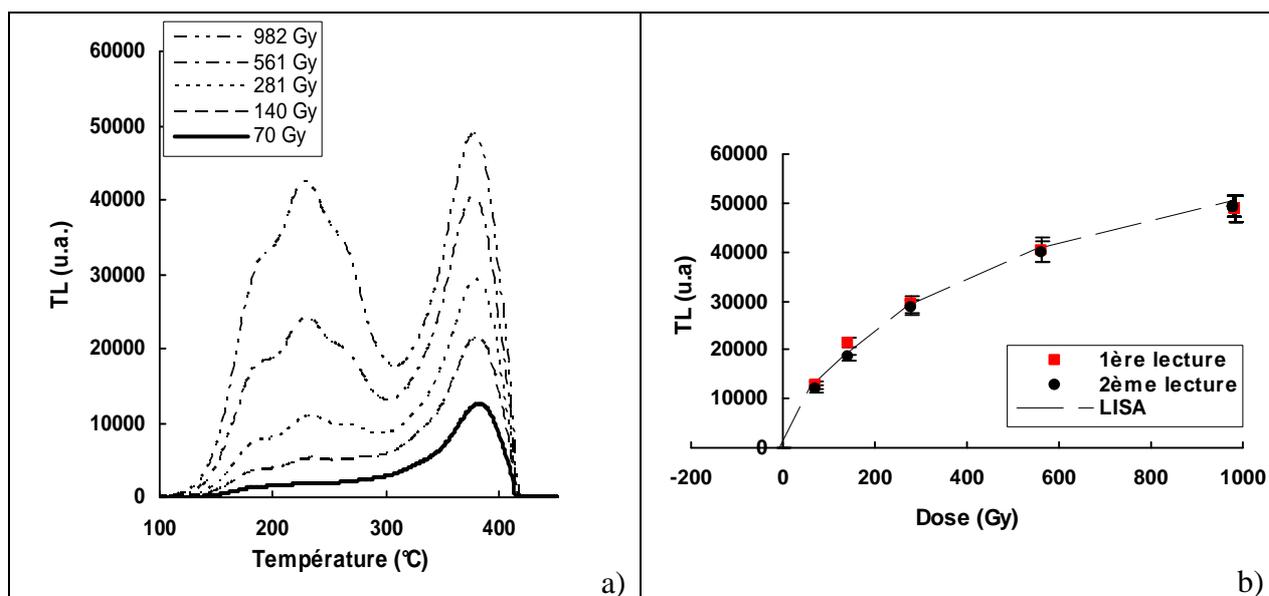


Figure 6.34 : Courbes de TL de première lecture (a) et courbes de croissance (b) obtenues pour l'échantillon recuit à 600°C.

Le rapport des deux séries de points (Figure 6.35) est compatible avec une sensibilisation faible ou nulle, sauf dans le cas de la dose de 140 Gy (rapport $1,17 \pm 0,07$). Notons cependant que les valeurs du rapport montrent une petite décroissance avec la dose, suggérant un léger changement de la forme des courbes de croissance de la TL entre la première et la deuxième chauffe.

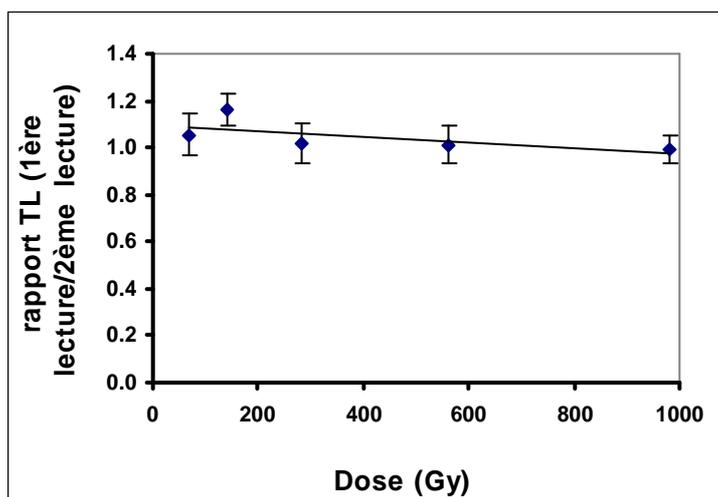


Figure 6.35 : Rapport des signaux de TL (au pic) [première lecture]/[deuxième lecture] en TL rouge pour l'échantillon recuit à 600°C.

La superposition des émissions correspondants aux doses de 280, 560 et 980 Gy (pour la deuxième lecture) et des émissions de TLN, N + 280 Gy et N + 700 Gy (pour la première lecture) conduirait à l'évaluation d'une « paléodose » correcte avec une méthode de glissement. Par contre, en raison du rapport plus élevé obtenu pour la dose de 140 Gy (Figure 6.35), les doses équivalentes évaluées selon la méthode LISA pour des paléodoses simulées inférieures à 280 Gy (Figure 6.36) sont trop élevées : 80 ± 8 Gy pour 70 Gy et 185 ± 18 Gy pour 140 Gy.

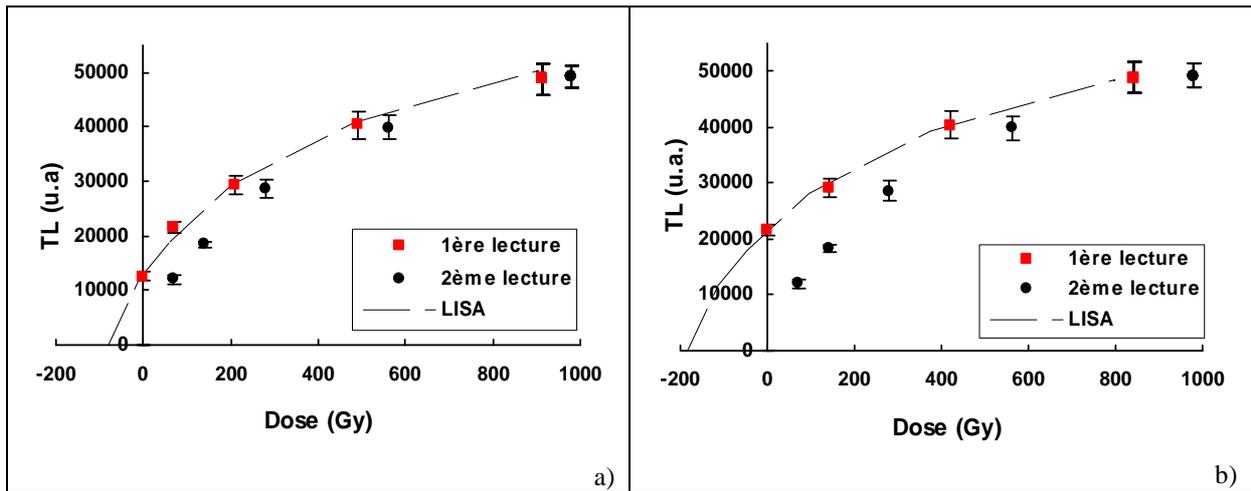


Figure 6.36 : Mise en œuvre de la méthode LISA pour des paléodoses simulées de 70 Gy (a) et 140 Gy (b).

Échantillons recuits à 500°C

Comme pour le recuit à 600°C, les émissions de TL et les courbes de croissance ont les formes habituelles de celles obtenues avec la TL rouge du quartz (Figure 6.37.a). Pour les mesures correspondant à 70, 140, 280, 980 Gy, une relativement bonne superposition des points expérimentaux est observée pour les deux séries de mesures (première et deuxième lectures, voir Figure 6.37.b). Aux environs de 560 Gy, la superposition est impossible, les doses appliquées pour la première et la seconde lecture étant légèrement différentes (560 et 600 Gy, respectivement). Quoiqu'il en soit, la dose équivalente évaluée en utilisant la méthode LISA (299 ± 76 Gy) est compatible avec la paléodose simulée (280 Gy).

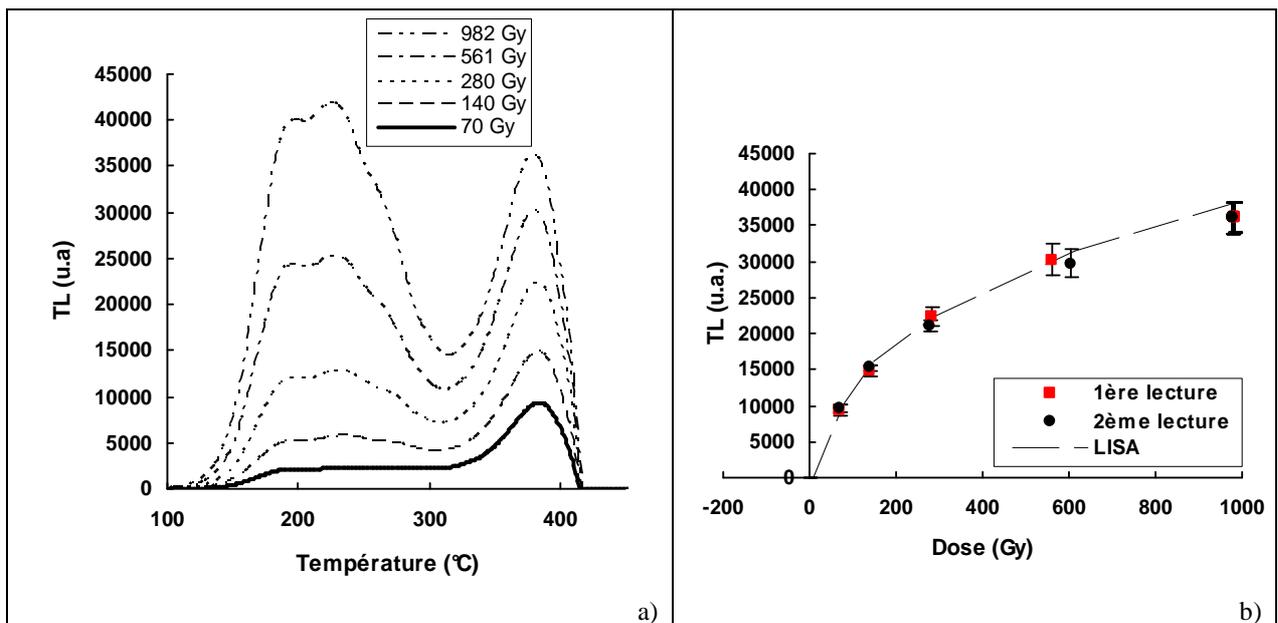


Figure 6.37 : Courbes de TL de première lecture (a) et courbes de croissance (b) obtenues pour l'échantillon recuit à 500°C.

Le rapport des deux séries de points (Figure 6.38) est compatible avec une sensibilisation faible ou nulle sauf pour la dose de 280 Gy où le rapport ($1,07 \pm 0,07$) est cependant compatible avec les autres.

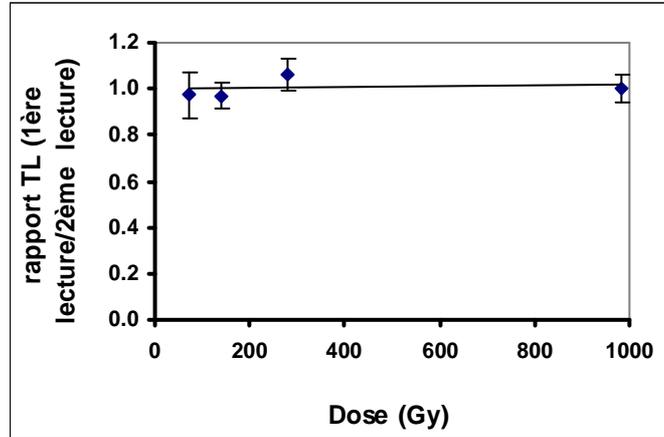


Figure 6.38 : Rapport (au pic) entre les mesures expérimentales [première lecture]/[deuxième lecture] en TL rouge pour l'échantillon recuit à 500°C.

En revanche, si on recherche une paléodose plus faible, en faisant glisser la courbe de croissance de première lecture vers la gauche, les doses équivalentes évaluées sont trop faibles : 65 ± 5 Gy pour 70 Gy et 120 ± 9 Gy pour 140 Gy (Figure 6.39).

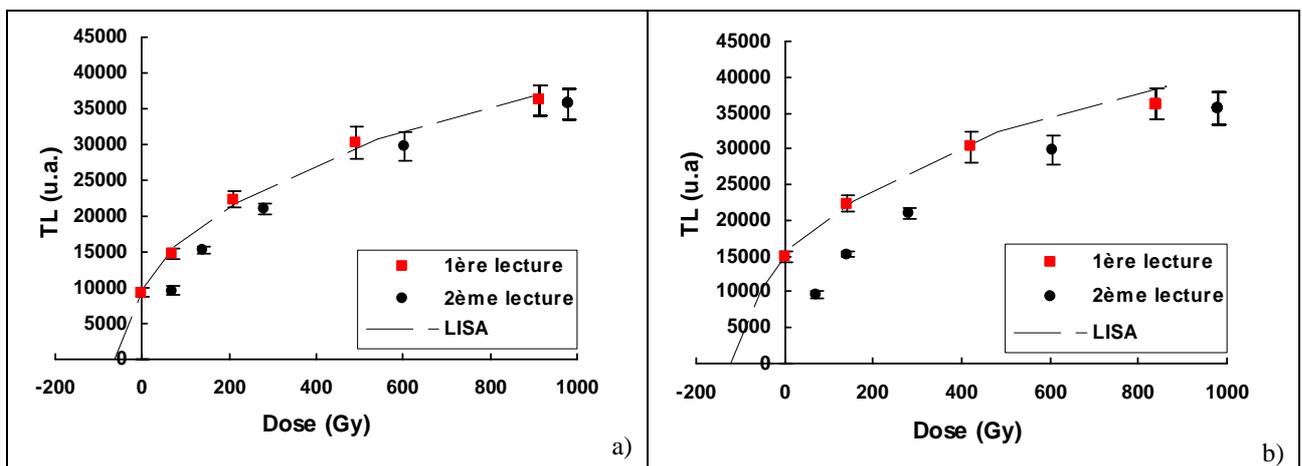


Figure 6.39 : Mise en œuvre de la méthode LISA pour des paléodoses simulées de 70 Gy (a) et 140 Gy (b).

Un récapitulatif des résultats des comparaisons entre paléodoses « simulées » et paléodoses évaluées est donné dans le tableau 6.7 : les résultats obtenus pour les paléodoses « simulées » de 280 Gy sont satisfaisants, mais les incertitudes associées sont élevées (16 et

24% pour les température de recuit de 500 et 600°C). Pour les paléodoses simulées de 70 et 140 Gy, les valeurs obtenues sont sensiblement supérieures (chauffe à 600°C), ou inférieures (chauffe à 500°C) à la valeur attendue.

Température de recuit	Paléodose simulée (Gy)	Paléodose évaluée (Gy)	Paléodose simulée / Paléodose évaluée
600 °C	70	80 ± 8	0,88 ± 0,09
	140	185 ± 18	0,76 ± 0,07
	280	290 ± 47	0,97 ± 0,16
500 °C	70	65 ± 5	1,08 ± 0,08
	140	120 ± 9	1,17 ± 0,09
	280	299 ± 76	0,94 ± 0,24

Tableau 6.7 : Bilan des résultats obtenus pour des essais de simulation de paléodoses en TL rouge.

b) TL bleue

De manière générale, la statistique de mesures en TL bleue était moins élevée qu'en rouge. Les mesures de TL rouge ayant en effet été réalisées en premier, beaucoup d'échantillon a été consommé. En outre, ainsi que nous l'avons souvent observé pour le quartz, la TL bleue est moins reproductible que la TL rouge. Les résultats obtenus pour cette longueur d'onde ne seront donc pas présentés, car il serait difficile d'en tirer des conclusions.

6.3.4.4 Discussion et conclusion

L'examen des courbes de TL rouge et des courbes de croissance correspondantes ne permet pas de mettre en évidence, en première approximation, des différences notables de forme entre les différentes séries. Les courbes de croissance présentent une forme relativement simple, qui ne peut toutefois pas être assimilée à une exponentielle saturante, ainsi que cela a déjà été remarqué dans d'autres expériences (*e.g.*, Sanzelle et al., 1996). Cela confirme que l'utilisation d'une courbe régénérée comme guide pour extrapoler la courbe additive donnera dans tous les cas un résultat plus proche de la réalité qu'une simple extrapolation exponentielle. Cependant, il apparaît que de petites différences de forme d'une courbe à l'autre ont des conséquences significatives sur la dose équivalente évaluée. Le nombre de mesures rapportées ici ne permet pas de décider si ces petites différences constatées représentent une réalité physique ou bien des accidents statistiques. Pourtant, dans ces expériences, les conditions réunies pour obtenir une bonne reproductibilité de comportement en première et seconde lecture étaient meilleures qu'elles ne le sont dans un cas réel de datation. Entre les deux situations (cas réel / expérience de laboratoire), il y a

notamment la différence de durée entre le chauffage initial et la lecture de la TL et celle des débits de dose.

Les propriétés de TL des quartz ayant été soumis à un cycle [chauffage + irradiations + chauffage TL] simulé ne semblent pas très éloignées de celles observées en situation effective de datation. Or, si ces expériences de laboratoire ne permettent pas de retrouver les doses simulées avec beaucoup de précision, il ne faut donc pas s'attendre à de bien meilleurs résultats dans un cas réel de datation. C'est d'autant plus vrai que les expériences ont été réalisées ici avec le même débit de dose (celui de la source du laboratoire), ce qui élimine une cause de différence (entre la croissance « naturelle » simulée et la croissance sous irradiation artificielle).

CONCLUSION GÉNÉRALE

Dans ce travail, nous avons mesuré les signaux de luminescence de grains de quartz extraits de 7 sédiments cuits et d'une série de galets quartzeux associés à des coulées volcaniques situées dans la période de l'événement paléomagnétique de Laschamp. Nous nous sommes attachés à déterminer, par différentes méthodes, la paléodose, afin d'apprécier la cohérence interne des résultats. De manière générale, les minéraux émettaient des signaux de luminescence dont le comportement était assez irrégulier et les paléodoses déduites, pour un échantillon donné, montraient une dispersion importante, difficile à expliquer. Les études menées conjointement sur des échantillons chauffés récents (< 30 ka) ont révélé un comportement plus régulier, suggérant que les difficultés rencontrées avec les sédiments associés au Laschamp résultaient d'une complexification des signaux de luminescence avec le temps.

Pour ces échantillons, l'utilisation du protocole des aliquotes multiples en TL a mis en évidence des « accidents » dans la croissance des signaux avec la dose d'irradiation. Des études plus approfondies seraient nécessaires pour déterminer si ces phénomènes ont une réalité physique et, dans ce cas, comprendre leur origine. Des différences de forme entre les courbes de première et de deuxième lecture ont également été observées. Cette absence d'homothétie entre les courbes a limité l'application de la méthode de glissement LISA pour déterminer la paléodose.

L'exploitation des émissions de TL dans le rouge et dans le bleu avec ce protocole a conduit à des paléodoses qui, pour une même granulométrie, étaient compatibles (échantillons C397bis, C348 par exemple) ou ne l'étaient pas (cas de l'échantillon C416). Pourtant, pour cet échantillon, les mesures de TL étaient reproductibles et un plateau des paléodoses avait été obtenu en TLR MA comme en TLB MA. Nous ne disposons donc pas d'argument permettant de privilégier l'un ou l'autre des résultats.

Pour l'échantillon C397bis, les mesures de TL avec le protocole des aliquotes multiples, dans le même domaine de longueur d'onde, en l'occurrence le rouge, sur des quartz de dimensions différentes, ont également conduit à des valeurs de paléodoses dispersées et incompatibles qui, contrairement à ce qu'on aurait pu attendre, augmentaient avec la granulométrie originelle des grains. Certaines fractions granulométriques ayant subi un broyage, il est possible que ces minéraux soient davantage sensibles à ce traitement mécanique que ne le laissent supposer les mesures effectuées par le passé, par les équipes du LPC et d'autres laboratoires. Il serait donc important de contrôler de façon détaillée l'impact

possible du broyage sur la TL des quartz de la Chaîne des Puys. La variabilité de comportement observée pourrait également indiquer que les grains sont d'origines variées et qu'ils possèdent donc des histoires thermiques et dosimétriques différentes.

Des différences de comportement ont également été observées lors des mesures de TL bleue avec le protocole de l'aliquote unique. En effet, dans une série de mesures, certaines aliquotes présentaient des plateaux de paléodoses de formes différentes, sans qu'une explication puisse être proposée. Des analyses complémentaires des signaux de luminescence de grains uniques permettraient éventuellement de mieux comprendre les phénomènes observés.

L'approche OSL, qui n'avait pas été testée jusqu'alors sur les quartz de la Chaîne des Puys, n'a, bien que présentant un réel intérêt, pas permis d'améliorer la précision des résultats pour les échantillons liés à Laschamp. Le débit de dose naturel auquel étaient soumis ces échantillons et leur âge supposé impliquaient une paléodose de l'ordre de 150-200 Gy. Des difficultés ont été rencontrées pour sa détermination, la courbe de croissance des signaux de régénération montrant un début de saturation dès 150 Gy et une saturation totale vers 300 Gy. Rappelons que, lors des tests de paléodoses générées expérimentalement, ce problème de saturation du signal avait déjà été observé. Enfin, dans la plupart des cas, la nouvelle procédure d'irradiation proposée par Bailey n'a pas permis de s'affranchir des difficultés liées à la saturation et de faciliter l'estimation de la paléodose. Cependant, avant de statuer définitivement sur le manque d'intérêt de cette approche pour ces échantillons, des investigations complémentaires seraient nécessaires pour connaître, par exemple, l'influence de la température de chauffe des aliquotes entre l'administration de chaque dose pulsée et l'incidence de la grandeur de cette dernière.

Par ailleurs, l'intercomparaison des méthodes a mis en évidence une dispersion des résultats supérieure à ce qui pouvait être attendu au regard des incertitudes habituellement associées à chacune d'entre elles. Ces observations ont conduit, dans la plupart des cas, à proposer un intervalle assez large dans lequel est compris l'âge probable de l'échantillon. La méconnaissance de la teneur en humidité du site au cours du temps, et par conséquent celle de la dose annuelle qui a prévalu, a conduit à augmenter davantage cet intervalle.

D'une façon générale, les résultats sont en accord avec les prévisions basées sur d'autres approches (méthode K-Ar, études de terrain), mais les incertitudes restent trop larges pour répondre au problème posé, à savoir une amélioration de la précision sur la chronologie

de l'excursion de Laschamp. Pour certains sites, les méthodes de la luminescence étaient cependant les seules méthodes applicables pour dater des coulées volcaniques, notamment lorsque l'absence de matière organique ne permettait pas d'utiliser la méthode du carbone 14 ou lorsque la lave était localement trop altérée pour permettre des mesures K-Ar. Les méthodes de la luminescence ont ainsi permis d'identifier des candidats potentiels à l'étiquette Laschamp, comme ceux du secteur de Volvic.

BIBLIOGRAPHIE

- Adamic, G., Aitken, M. (1998). Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL*, 16 (2), 37-50.
- Aitken, M.J. (1985). *Thermoluminescence Dating*. Academic Press, London, 359 p.
- Aitken, M.J. (1998). *An Introduction to Optical Dating*. Academic Press, London, 280 p.
- Aitken, M.J., Bussell, G.D., Driver, H.S.T. (1979). Zero-glow monitoring (ZGM). *Ancient TL*, 6, 13-15.
- Aitken, M.J., Tite, M.S., Reid, J. (1964). Thermoluminescence dating of ancient ceramics. *Nature*, 202, 1032-1033.
- Aitken, M.J., Zimmerman, D.W., Fleming, S.J. (1968). Thermoluminescence dating of ancient pottery. *Nature*, 219, 442-444.
- Akselrod, M.S., Kortov, V.S., Kravetsky, D.J., Gotlib, V.I. (1990). Highly sensitive thermoluminescent anion defect $\alpha\text{-Al}_2\text{CO}_3\text{:C}$ single crystal detectors. *Radiat. Prot. Dosim.*, 32, 15-20.
- Armitage, S.J., Duller, G.A.T., Wintle, A.G. (2000). Quartz from southern Africa: sensitivity changes as a result of thermal pretreatment. *Radiation Measurements*, 32, 571-577.
- Bailey, R. M. (2001). Towards a general kinetic model for optically and thermally stimulated luminescence of quartz. *Radiation Measurements*, 33, 17-45.
- Bailey, R.M. (2004). Paper I—simulation of dose absorption in quartz over geological timescales and its implications for the precision and accuracy of optical dating. *Radiation Measurements*, 38, 299-310.
- Bailey, R.M., Armitage, S.J., Stokes, S. (2005). An investigation of pulsed-irradiation regeneration of quartz OSL and its implications for the precision and accuracy of optical dating (Paper II). *Radiation Measurements*, 39, 347-359.
- Bailey, R.M., Smith, B.W, Rhodes, E.J. (1997). Partial bleaching and the decay form characteristics of quartz OSL. *Radiation Measurements*, 27, 123-136.
- Barbetti, M., Flude, K. (1979). Paleomagnetic field strengths from the sediments baked by lava flows of the Chaîne des Puys, France. *Nature*, 278, 153-156.
- Bassinot, C., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Miallier, D., Mercier, N. (2003). Datation d'une coulée volcanique Würmienne à Malauzat (Chaîne des Puys, France) par la

- thermoluminescence et la luminescence optiquement stimulée du quartz. Colloque du GMPCA, Bordeaux (France).
- Bassinet, C., Mercier, N., Miallier, D., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Valladas, H. (2006). Thermoluminescence of heated quartz grains: Intercomparisons between SAR and multiple-aliquot additive dose techniques. *Radiation Measurements*, 41, 803-808.
- Bell, W.T. (1979). Attenuation factors for the absorbed radiation dose in quartz inclusions for thermoluminescence dating. *Ancient TL*, 8, 2-13.
- Benson, L., Liddicoat, J., Smoot, J., Sarna-Wojcicki, A., Negrini, R., Lund, S. (2003). Age of the Mono Lake excursion and associated tephra. *Quaternary Science Reviews*, 22, 135-140.
- Berger, G.W., Huntley, D.J. (1983). Dating volcanic ash by thermoluminescence. *PACT*, 9; part II, 581-592.
- Berger, G.W., Pillans, B.J., Palmer, A.S. (1994). Test of thermoluminescence dating of loess from New Zealand and Alaska. *Quaternary Science Reviews*, 13, 309-333.
- Boivin, P., Besson, J.C., Briot, D., Camus, G., de Goër, A., Gourgaud, A., Labazuy, P., de Larouzière, D., Livet, M., Mergoïl, J., Miallier, D., Morel, J.M., Vernet, G., Vincent, P. (2004). *Volcanologie de la Chaîne des Puys, carte et fascicule, 4^e édition, Parc Naturel des Volcans d'Auvergne (ed.)*, 179 p.
- Bonde, A., Murray, A., Friedrich W.L. (2001). Santorini: Luminescence dating of a volcanic province using quartz? *Quaternary Science Reviews*, 20, 789-793.
- Bonhommet, N. (1972) Sur la direction d'aimantation des laves de la Chaîne des Puys, et le comportement du champ terrestre en France au cours de l'événement de Laschamp. *Thèse, Université Louis Pasteur de Strasbourg*.
- Bonhommet, N., Babkine, J. (1967). Sur la présence d'aimantations inversées dans la Chaîne des Puys. *C.R. Acad. Sc. Paris*, 264, 92-94.
- Bonhommet, N., Zähringer, J. (1969). Paleomagnetism and potassium argon age determinations of the Laschamp geomagnetic polarity event. *Earth and Planetary Science Letters*, 6, Issue 1, 43-46.

- Bøtter-Jensen, L., Agersnap Larsen, N., Markey, B.G., McKeever, S.W.S. (1997). $\text{Al}_2\text{CO}_3\text{:C}$ as a sensitive OSL dosimeter for rapid assessment of environmental photon dose rates. *Radiation Measurements*, 27, 295-298.
- Bräunlich, P., Scharmann, A. (1964). Ein einfaches Modell für die Deutung der Thermolumineszenz und der thermisch stimulierten Leitfähigkeit von Alkalihalogeniden. *Z. Phys.*, 177, 320-336.
- Brennan, B.J., Lyons, R.G., Phillips, S.W. (1991). Attenuation of alpha particle track dose for spherical grains. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 18, 249-253.
- Brousse, R., Maury, R.C., Santoire, J.P. (1976). L'âge de la coulée du Tartaret. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 282, série D, 1618-1620.
- Chassagne, M. (2004). Rapport de maîtrise. Laboratoire Magmas et Volcans et Laboratoire de Physique Corpusculaire, Université Blaise Pascal (France).
- Chauvin, A., Duncan, R.A., Bonhommet, N., Levi, S. (1989). Paleointensity of the earth's magnetic field and K-Ar dating of the Louchadiere volcanic flow (Central France): new evidence for the Laschamp excursion. *Geophys. Res. Lett.*, 16, 1189-1192.
- Clarke, M. L. (1994). Infra-red stimulated luminescence ages from aeolian sand and alluvial fan deposits from the eastern Mojave Desert, California. *Quaternary Science Reviews*, 13, 533-538.
- Condomines, M. (1978). Age of the Olby-Laschamp geomagnetic polarity event. *Nature*, 276, N°5685, 257-258.
- Condomines, M., Morand, P., Camus, G., Duthou, J.L. (1982). Chronological and geochemical study of lavas from the Chaîne des Puys: evidence for crustal contamination. *Contrib. Mineral Petrol*, 81, 296-303.
- Courtine, F. (2007). Étalonage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle. Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo. *Thèse de doctorat de l'université Blaise Pascal - Clermont II*, Clermont-Ferrand.
- David, M., Sunta, C.M., Ganguly, A.K. (1977). Thermoluminescence of quartz: Part I – Glow curve & Spectral characteristics. *Indian Journal of Pure & Applied Physics*, 15 (3), 201-204.

- Duller, G. A. T. (1991). Equivalent dose determination using single aliquots. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 18, 371-378
- Duller, G. A. T. (1994). Luminescence dating of sediments using single aliquots: New procedures. *Quaternary Science Reviews*, 13, 149-156.
- Duller, G.A.T. (1995). Luminescence dating using single aliquots: Methods and applications *Radiation Measurements*, 24, 217-226.
- Erramli, H. (1986). Développement des techniques de dosimétrie appliquées à la datation par thermoluminescence. *Thèse de doctorat de l'université Blaise Pascal - Clermont II*, Clermont-Ferrand.
- Faïn, J., Erramli, H., Miallier, D., Montret, M., Sanzelle S. (1985). Environmental gamma dosimetry using TL dosimeters: efficiency and absorption calculations. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 10, 639-646.
- Faïn, J., Miallier, D., Montret, M., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Soumana, S., Bechtel, F., Guibert, P., Schvoerer, M., Vartanian, E., Mercier, N., Valladas, H., Bahain, J.J., Falguères, C., Tripier, J., Joron, J.L. (1997). Intercomparaisons dosimétriques dans le cadre de la datation par thermoluminescence et par résonance paramagnétique électronique. Validation de milieux naturels-témoins de la région de Clermont-Ferrand (Puy-de-Dôme, France). *Revue d'Archéométrie*, 21, 29-34.
- Faïn, J., Sanzelle, S., Miallier, D., Montret, M., Pilleyre, T. (1994). A TL model based on deep traps competition. *Radiation Measurements*, 23, 287-291.
- Faïn, J., Sanzelle, S., Pilleyre, T., Miallier, D., Montret, M. (1999a). Deep-trap model for thermoluminescence: emptying stage calculation and comparison with experimental data. *Radiation Measurements*, 30, 487-495.
- Faïn, J., Soumana, S., Montret, M., Miallier, D., Pilleyre, T., Sanzelle, S. (1999b). Luminescence and ESR dating: Beta-dose attenuation for various grain shapes calculated by a Monte-Carlo method. *Quaternary Geochronology*, 18, 231-234.
- Falguères, C., Yokoyama, Y., Quaegebeur, J.P. (1991). Datation par la résonance de spin électronique (E.S.R.) de sédiments quaternaires. *Cahiers du Quaternaire*, 16, 39-52.
- Fattahi, M., Stokes, S. (2000). Extending the time range of luminescence dating using red TL (RTL) from volcanic quartz. *Radiation Measurements*, 32, 2000, 479-485

- Fattahi, M., Stokes, S. (2005). Dating unheated quartz using a single aliquot regeneration-dose red thermoluminescence protocol (SAR RTL). *Journal of Luminescence*, 115, 19-31.
- Fleming, S.J. (1970). Thermoluminescence dating: refinement of the quartz inclusion method. *Archaeometry*, 12, 133-147.
- Folz, É., Mercier, N. (1999). Use of a new procedure to determine paleodose in the OSL dating of quartz: The MARA protocol. *Quaternary Science Reviews*, 18, 859-864.
- Franklin, A.D., Hornyak, W.F. (1992). Normalization of inclusion size quartz TL data. *Ancient TL*, 10 (1), 1-6.
- Frechen, M. (1999). Upper Pleistocene loess stratigraphy in Southern Germany. *Quaternary Science Reviews*, 18, 243-269.
- Galloway, R.B. (1996). Equivalent dose determination using only one sample: Alternative analysis of data obtained from infrared stimulation of feldspars. *Radiation Measurements*, 26, 103-106.
- Ganzawa, Y., Furukawa, H., Hashimoto, T., Sanzelle, S., Miallier, D., Pilleyre, T. (2005). Single grains dating of volcanic quartz from pyroclastic flows using Red TL. *Radiation Measurements*, 39, 479-487
- Garlick, G.F.J., Gibson, A.F. (1948). The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors. *Proceedings of the Royal Society of London*, A60, 574-590.
- Gillot, P.Y., Valladas, G., Reyss, J.L. (1978). Dating of the lava flow using a granitic enclave: Application to the Laschamp magnetic event. *PACT*, 2, 165-173.
- Goër de Hervé, A. de, Camus, G., Miallier, D., Sanzelle, S., Falguères, C., Faïn, J., Montret, M., Pilleyre, T. (1993). Le puy de Gravenoire et ses coulées dans l'agglomération de Clermont-Ferrand (Massif-Central français) : un modèle inhabituel d'avalanche de débris déclenchée par une éruption strombolienne en climat périglaciaire. *Bull. Soc. Géol. Fr.*, 64, 783-793.
- Groom, P.J., Durrani, S.A., Khazal, K.A.R., McKeever, S.W.S. (1978). The dose-rate dependence of thermoluminescence response and sensitivity in quartz. *PACT*, 2, 200-210.

- Grün, R., Fenton, C. (1990). Internal dose rates of quartz grains separated from fault gouge. *Ancient TL*, 8 (3), 26-28.
- Guérin, G. (1983). La thermoluminescence des plagioclases, méthode de datation du volcanisme. Applications au domaine volcanique français : Chaîne des Puys, Mont-Dore et Cézallier, Bas-Vivarais. *Thèse de doctorat d'état, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI*, Paris.
- Guérin, G., Lefèvre, J.C. (2005). A fully automated TL-OSL reader dedicated to high temperature studies. Poster. 11th International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating. Cologne, Allemagne.
- Guillou, H., Singer, B.S., Laj, C., Kissel, C., Scaillet, S., Jicha, B.R. (2004). On the age of the Laschamp geomagnetic excursion. *Earth and Planetary Science Letters*, 227, 331-343.
- Hall, C.M., York, D. (1978). K-Ar and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ age of the Laschamp geomagnetic polarity reversal. *Nature*, 274, 462-464.
- Hashimoto, T., Habuki, H., Tanabe, I., Sakai, T., Takahashi, S. (1989). Dating using red thermoluminescence from quartz grains in strata related to fossil bones of *Elephas Naumanni*. *Chikyukagaku (Geochemistry)*, 23, 35-43 (en japonais, résumé en anglais).
- Hashimoto, T., Hayashi, Y., Koyanagi, A., Yokosaka, K., Kimura, K. (1986). Red and blue colouration of thermoluminescence from natural quartz sands. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 11, 229-235.
- Hashimoto, T., Notoya, S., Arimura, T., Konishi, M. (1996). Changes in luminescence colour images from quartz slices with thermal annealing treatments. *Radiation Measurements*, 26, 233-242.
- Hashimoto, T., Yokosaka, K., Habuki, H. (1987). Emission properties of thermoluminescence from natural quartz-blue and red TL response to absorbed dose. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 13, 57-66.
- Heller, F. (1980). Self-reversal of natural remanent magnetisation in the Olby-Laschamp lavas. *Nature*, 284, 334-335.
- Heller, F., Petersen, N. (1982). Self-reversal explanation for the Laschamp/Olby geomagnetic field excursion. *Phys. Earth Planet. Inter.*, 30, 358-372.

- Huntley, D.J., Godfrey-Smith, D. I., Haskell, E.H. (1991). Light-induced emission spectra from some quartz and feldspars. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 18, 127-131.
- Huntley, D.J, Godfrey-Smith, D.I., Thewalt, M.L.W. (1985). Optical dating of sediments. *Nature*, 313, 105-107.
- Huntley, D.J., Godfrey-Smith, D.I., Thewalt, M.L., Prescott, J. R., Hutton, J. T. (1988). Some quartz thermoluminescence spectra relevant to thermoluminescence dating. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 14, 27-33.
- Huxtable, J., Aitken, M.J., Bonhommet, N. (1978). *Nature*, 275, 207-209.
- Jain, M., Murray, A. S., Wintle, A. G. (2003). Characterisation of blue-light stimulated luminescence components in different quartz samples: implications for dose measurement. *Radiation Measurements*, 37, 441-449.
- Juvigné, É., Bastin, B., Delibrias, G., Evin, J., Gewalt, M., Gilot, E., Streel, M. (1996). A comprehensive pollen and tephra-based chronostratigraphic model for the late glacial and holocene period in the french Massif-Central. *Quaternary International*, 35/36, 113-120.
- Juvigné, É., Bastin, B., Gewalt, M. (1986). Découverte de retombées volcaniques d'âge holocène dans la Chaîne des Puys septentrionale (Massif Central, France). *Rev. Sci. Nat. Auvergne*, Clermont-Ferrand, 52, 33-36.
- Juvigné, É., Gewalt, M. (1987). La narse d'Ambois comme téphrostratotype dans la Chaîne des Puys méridionale (France). *Bull. Assoc. Franc. Et. Quat.*, 37-49.
- Juvigné, É., Stach-Czerniak, A. (1998). Étude sédimentologique et palynologique des dépôts lacustres tardiglaciaires et holocènes du gour de Tazenat (Massif-Central, France). *Quaternaire*, 9, 1, 15-23.
- Kent, D.V., Hemming, S.R., Turrin, B.D. (2002). Laschamp Excursion at Mono Lake ? *Earth and Planetary Science Letters*, 197, 151-164.
- Klasens, H.A. (1946). Transfer of energy between centres in zinc sulphide phosphors. *Nature*, 158, 306-308.
- Kristjansson, L., Gudmundsson (1980). Geomagnetic excursion in late-glacial basalt outcrops in south-western Iceland. *Geophys. Res. Lett.*, 7, 337-340.

- Lai, Z.P., Murray, A.S., Bailey, R.M., Huot, S., Bøtter-Jensen, L. (2006). Quartz red TL SAR equivalent dose overestimation for Chinese loess. *Radiation Measurements*, 41, 114-119.
- Laj, C., Kissel, C., Mazaud, A., Channell, J.E.T, Beer, J. (2000). North Atlantic palaeointensity stack since 75 ka (NAPIS-75) and the duration of the Laschamp event. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, 358, 1009-1025.
- Lamothe, M., Balescu, S., Auclair, M. (1994). Natural IRSL intensities and apparent luminescence ages of single feldspar grains extracted from partially bleached sediments. *Radiation Measurements*, 23, 555-561.
- Lang, A., Wagner, G.A. (1997). Infrared stimulated luminescence dating of holocene colluvial sediments using the 410 nm emission. *Quaternary Science Reviews*, 16, 393-396.
- Levi, S., Audunsson, H., Duncan, R.A., Kristjansson, L., Gillot, P.Y., Jakobsson, S.P. (1990). Late Pleistocene geomagnetic excursion in Icelandic lavas: confirmation of the Laschamp excursion. *Earth and Planetary Science Letters*, 96, 443-457.
- Marshall, M., Chauvin A., Bonhommet, N. (1988). Preliminary paleointensity measurements and detailed magnetic analyses of basalts from the Skalamaelifell excursion, southwest Iceland. *J. Geophys. Res.*, 93, 11681-11698.
- McKeever, S.W.S., Bøtter-Jensen, L., Agersnap Larsen, N., Duller, G.A.T. (1997). Temperature dependence of OSL decay curves: Experimental and theoretical aspects. *Radiation Measurements*, 27, 161-170.
- McKeever, S.W.S., Chen, R. (1997). Luminescence models. *Radiation Measurements*, 27, 625-661.
- Mejdahl, V. (1979). Thermoluminescence dating: beta dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry*, 21, 61-72.
- Mejdahl, V. (1985). Thermoluminescence dating based on feldspars. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 10, 133-136.
- Mejdahl, V. (1987). Internal radioactivity in quartz and feldspar grains. *Ancient TL*, 5 (2), 10-17.

- Mejdahl, V., Bøtter-Jensen, L. (1994). Luminescence dating of archaeological materials using a new technique based on single aliquot measurements. *Quaternary Science Reviews*, 13, 551-554.
- Mejdahl, V., Bøtter-Jensen, L. (1997). Experience with the SARA OSL method. *Radiation Measurements*, 27, 291-294.
- Mercier, N., Valladas, H., Valladas, G. (1992). Observations on palaeodose determination with burnt flints. *Ancient TL*, 10 (3), 28-32.
- Mercier, N., Valladas, H., Valladas, G. (1995). Flint thermoluminescence dates from the CFR laboratory at Gif: Contributions to the study of the chronology of the middle Palaeolithic. *Quaternary Science Reviews*, 14, 351-364.
- Miallier, D., Erramli, H., Faïn, J., Sanzelle S. (1988). Dose-rate measurement by the enclosure method using Al₂O₃ TL dosimeters. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 14, 193-197.
- Miallier, D., Faïn, J., Montret, M., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Soumana, S. (1991). Properties of the red TL peak of quartz relevant to thermoluminescence dating. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 18, 89-94.
- Miallier, D., Faïn, J., Montret, M., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Soumana, S. (1994a). Sun bleaching of the red TL of quartz. *Ancient TL*, 12 (1), 1-4.
- Miallier, D., Faïn, J., Sanzelle S. (1985). Single-quartz-grains thermoluminescence dating: An approach for the complex materials. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 10, 163-168.
- Miallier, D., Faïn, J., Sanzelle, S., Pilleyre, T., Montret, M., Soumana, S., Falguères, C. (1994b). Attempts at dating pumice deposits around 580 ka by use of red TL and ESR of xenolithic quartz inclusions. *Radiation Measurements*, 23, 399-404.
- Miallier, D., Michon, L., Évin, J., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Vernet, G. (2004). Volcans de la chaîne des Puys (Massif central, France) : point sur la chronologie Vasset-Killian-Pariou-Chopine. *C.R. Geoscience*, 336, 1345-1353.
- Miallier, D., Sanzelle, S., Pilleyre, T., Bassinet, C. (2006). Residual thermoluminescence for sun-bleached quartz: Dependence on pre-exposure radiation dose. *Quaternary Geochronology*, 1, 313-319.

- Montret-Brugerolle, M. (1980). Distribution spatiale de l'énergie déposée par des ions énergétiques dans les milieux condensés. Étude par thermoluminescence. *Thèse d'état, Université Blaise Pascal - Clermont II*, Clermont-Ferrand.
- Montret, M., Miallier, D., Sanzelle, S., Faïn, J., Pilleyre, T., Soumana, S. (1992). TL dating in the Holocene using red TL from quartz. *Ancient TL*, 10 (3), 33-36.
- Murray, A.S. (1981). Environmental radiation studies relevant to thermoluminescent dating. *D. Phil. thesis, Faculty of Physical Sciences, Oxford University*.
- Murray, A.S., Mejdahl, V. (1999). Comparison of regenerative-dose single-aliquot and multiple-aliquot (SARA) protocols using heated quartz from archaeological sites. *Quaternary Science Reviews*, 18, 223-229.
- Murray, A.S., Roberts, R.G. (1997). Determining the burial time of single grains of quartz using optically stimulated luminescence. *Earth and Planetary Science Letters*, 152, 163-180.
- Murray, A.S., Roberts, R.G. (1998). Measurement of the equivalent dose in quartz using a regenerative-dose single-aliquot protocol. *Radiation Measurements*, 29, 503-515.
- Murray, A.S., Roberts, R.G., Wintle, A.G. (1997). Equivalent dose measurement using a single aliquot of quartz. *Radiation Measurements*, 27, 171-184.
- Murray, A.S., Wintle, A.G. (2000a). Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiation Measurements*, 32, 57-73.
- Murray, A.S., Wintle, A.G. (2000b). Application of the single-aliquot regenerative-dose protocol to the 375°C quartz TL signal. *Radiation Measurements*, 32, 579-583.
- Murray, A.S., Wintle, A.G. (2003). The single aliquot regenerative dose protocol: potential for improvements in reliability. *Radiation Measurements*, 37, 377-381.
- Pelletier, H., Delibrias, G., Labeyrie, J., Perquis, M.T., Rudel, A. (1959). Mesure de l'âge de l'une des coulées volcaniques issues du puy de la Vache (Puy de Dôme) par la méthode du carbone 14. *C.R. Acad. Sc. Paris*, 249, 2221-2222.
- Pilleyre, T. (1991). Datation par thermoluminescence. Application à la chronologie des retombées volcaniques. *Thèse de doctorat de l'université Blaise Pascal - Clermont II*, Clermont-Ferrand.

- Pilleyre, T., Montret, M., Faïn, J., Miallier, D., Sanzelle, S. (1992). Attempts at dating ancient volcanoes using the red TL of quartz. *Quaternary Science Reviews*, 11, 13-17.
- Plenier, G., Valet, J.P., Guérin, G., Lefèvre, J.C., LeGoff, M., Carter-Stiglitz, B. (2007). Origin and age of the directions recorded during the Laschamp event in the Chaîne des Puys (France). *Earth and Planetary Science Letters*, in press.
- Prescott, J.R., Huntley, D.J., Hutton, J.T. (1993). Estimation of equivalent dose in thermoluminescence dating-the Australian slide method. *Ancient TL*, 11, 1-5.
- Prescott, J.R., Hutton, J.T. (1994). Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: Large depths and long-term time variations. *Radiation Measurements*, 23, 497-500.
- Prescott, J.R., Mojarrabi, B. (1993). Selective bleach: an improved partial bleach technique for finding equivalent doses for TL dating of quartz sediments. *Ancient TL*, 11, 27-30.
- Prescott, J.R., Robertson, G.B. (1997). Sediment dating by luminescence: a review. *Radiation Measurements*, 27, 893-922.
- Prescott, J.R., Stephan, L.G. (1982). The contribution of cosmic radiation to the environmental dose for thermoluminescence dating. Latitude, altitude and depth dependences. *PACT* 6, 17-25.
- Prescott, J.R., Hutton, J.T. (1988). Cosmic ray and gamma ray dosimetry for TL and ESR. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 14, 223-227.
- Rambaud, X., Faïn, J., Miallier, D., Pilleyre, T., Sanzelle, S. (2000). Annual dose assessment for luminescence and ESR dating: evaluation of nuclides mobility. *Radiation Measurements*, 32, 741-746.
- Randall, J.T., Wilkins, M.H.F. (1945). Phosphorescence and electron traps. *Proceedings of the Royal Society of London*, A184, 366-407.
- Raynal, J.P., Paquereau, M.M., Daugas, J.P., Miallier, D., Faïn, J., Sanzelle, S. (1985). Contribution à la datation du volcanisme quaternaire du Massif Central français par thermoluminescence des inclusions de quartz et comparaison avec d'autres approches : implications chronostratigraphiques et paléoenvironnementales. *Bulletin de l'Association française pour l'étude du Quaternaire*, 4, 183-207.
- Roberts, R.G. (1997). Luminescence dating in archaeology: from origins to optical. *Radiation Measurements*, 27, 819-892.

- Roperch, P., Bonhommet, N., Levi, S. (1988). Paleointensity of the earth's magnetic field during the Laschamp excursion and its geomagnetic implications. *Earth and Planetary Science Letters*, 88, 209-219.
- Sanzelle, S. (1988). Lecteur de thermoluminescence spécialisé pour la datation. Rapport interne PCCF, 88/04.
- Sanzelle, S., Erramli, H., Faïn, J., Miallier, D. (1988). The assessment of gamma dose-rate by gamma-ray field spectrometer. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 14, 209-213.
- Sanzelle, S., Faïn, J., Miallier, D., Montret, M., Pilleyre, T. (1993). Exponential regressions for TL/ESR using regenerated dose response curves. *Ancient TL*, 11, 6-13.
- Sanzelle, S., Miallier, D., Pilleyre, T., Faïn, J., Montret, M. (1996). A new slide technique for regressing TL/ESR dose response curves. *Radiation Measurements*, 26, 631-638.
- Schön, M. (1942). Zum Leuchtmechanismus der Kristallphosphore. *Z. Phys.*, 119, 463-471.
- Short, M.A., Huntley, D.J. (1992). Infrared stimulation of quartz. *Ancient TL*, 10 (2), 19-21.
- Soumana, S. (1993). Amélioration des techniques de dosimétrie appliquées à la datation par thermoluminescence. *Thèse de doctorat de l'université Blaise Pascal - Clermont II, Clermont-Ferrand*.
- Soumana, S., Faïn, J., Miallier, D., Montret, M., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Akselrod, M. (1994). Gamma and enclosure dosimetry for TL/ESR dating with the new Al₂O₃:C TL dosemeter. *Radiation Measurements*, 23, 501-505.
- Smith, B.W., Rhodes, E.J. (1994). Charge movements in quartz and their relevance to optical dating. *Radiation Measurements*, 23, 329-333.
- Stokes, S., Colls, A.E.L., Fattahi, M., Rich, J. (2000). Investigations of the performance of quartz single aliquot D_E determination procedures. *Radiation Measurements*, 32, 585-594.
- Tsukamoto, S., Rink, W.J., Watanuki, T. (2003). OSL of tephric loess and volcanic quartz in Japan and an alternative procedure for estimating D_e from a fast OSL component. *Radiation Measurements*, 37, 459-465.
- Valladas, G. (1979). A gamma ray irradiator. *PACT*, 3, 439-442.

- Valladas, G. (1982). Mesure de la dose γ annuelle de l'environnement d'un site archéologique par un dosimètre TL. *PACT*, 2, 77-85.
- Valladas, G., Ferreira, J. (1980). On the dose-rate dependence of the thermoluminescence response of quartz. *Nuclear Instruments and Methods*, 175, 216-218.
- Valladas, G., Gillot, P.Y. (1978). Dating of the Olby lava flow using heated quartz pebbles: some problems. *PACT*, 2, 141-150.
- Valladas, G., Valladas, H. (1982). Influence du débit de dose sur la thermoluminescence du quartz. *PACT*, 6, 281-291.
- Valladas, H. (1992). Thermoluminescence dating of flint. *Quaternary Science Reviews*, 11, 1-5.
- Visocekas, R. (1993). Tunneling radiative recombination in K-feldspar sanidine. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 21, 175-178.
- Westaway, K.E., Roberts, R.G. (2006). A dual-aliquot regenerative-dose protocol (DAP) for thermoluminescence (TL) dating of quartz sediments using the light-sensitive and isothermally stimulated red emissions. *Quaternary Science Reviews*, 25, 2513-2528.
- Wang, X.L., Wintle, A.G., Lu, Y.C. (2006). Thermally transferred luminescence in fine-grained quartz from Chinese loess: Basic observations. *Radiation Measurements*, 41, 649-658.
- Wintle, A.G., Huntley, D.J (1979). Thermoluminescence dating of a deep-sea sediment core. *Nature*, 279, 710-712.
- Wintle, A.G., Huntley, D.J. (1980). Thermoluminescence dating of ocean sediments. *Canadian Journal of Earth Sciences*, 17, 348-360.

ANNEXES

Annexe 1 : Chaînes de désintégration radioactives du thorium 232, de l'uranium 238 et de l'uranium 235

Les chaînes de désintégration radioactives du thorium 232, de l'uranium 238 et de l'uranium 235 sont données respectivement par les figures A1.1, A1.2 et A1.3 (d'après Aitken, 1985). La période de chaque radionucléide est indiquée sous son symbole. Les flèches obliques correspondent à une désintégration α et les flèches horizontales à une désintégration β .

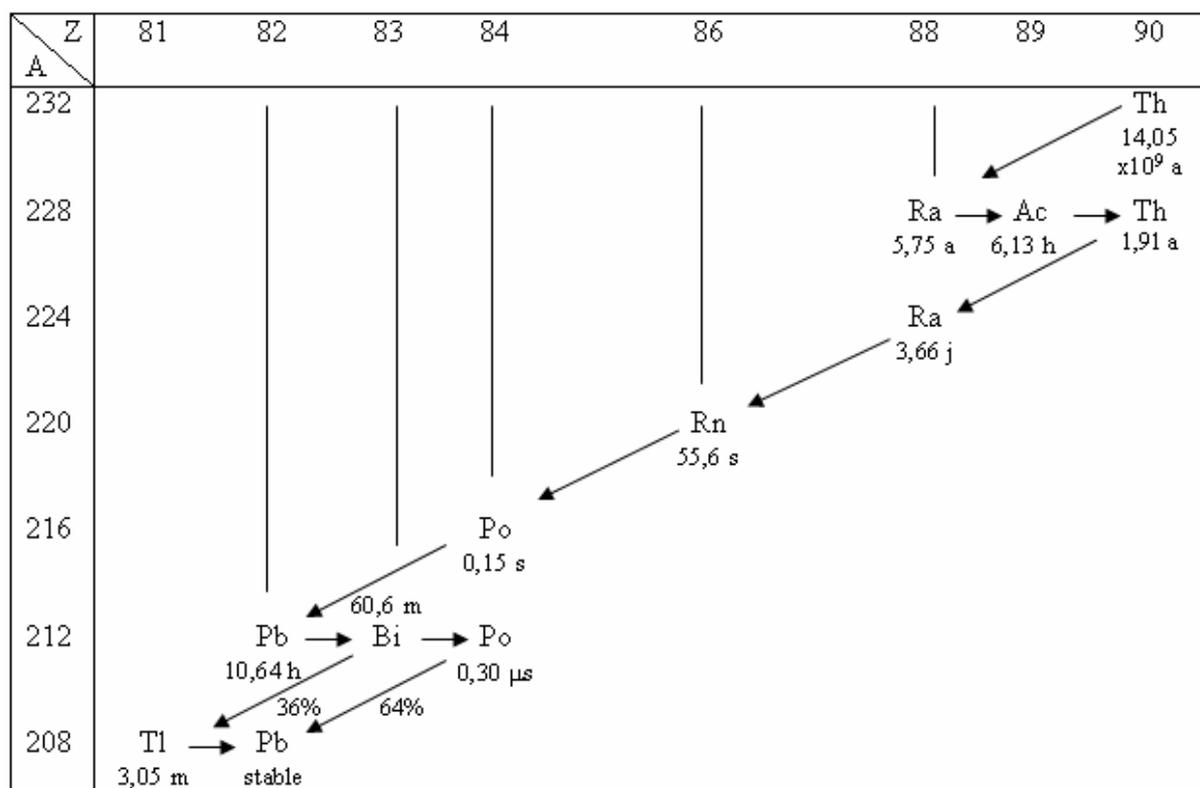


Figure A1.1 : Série radioactive du thorium 232.

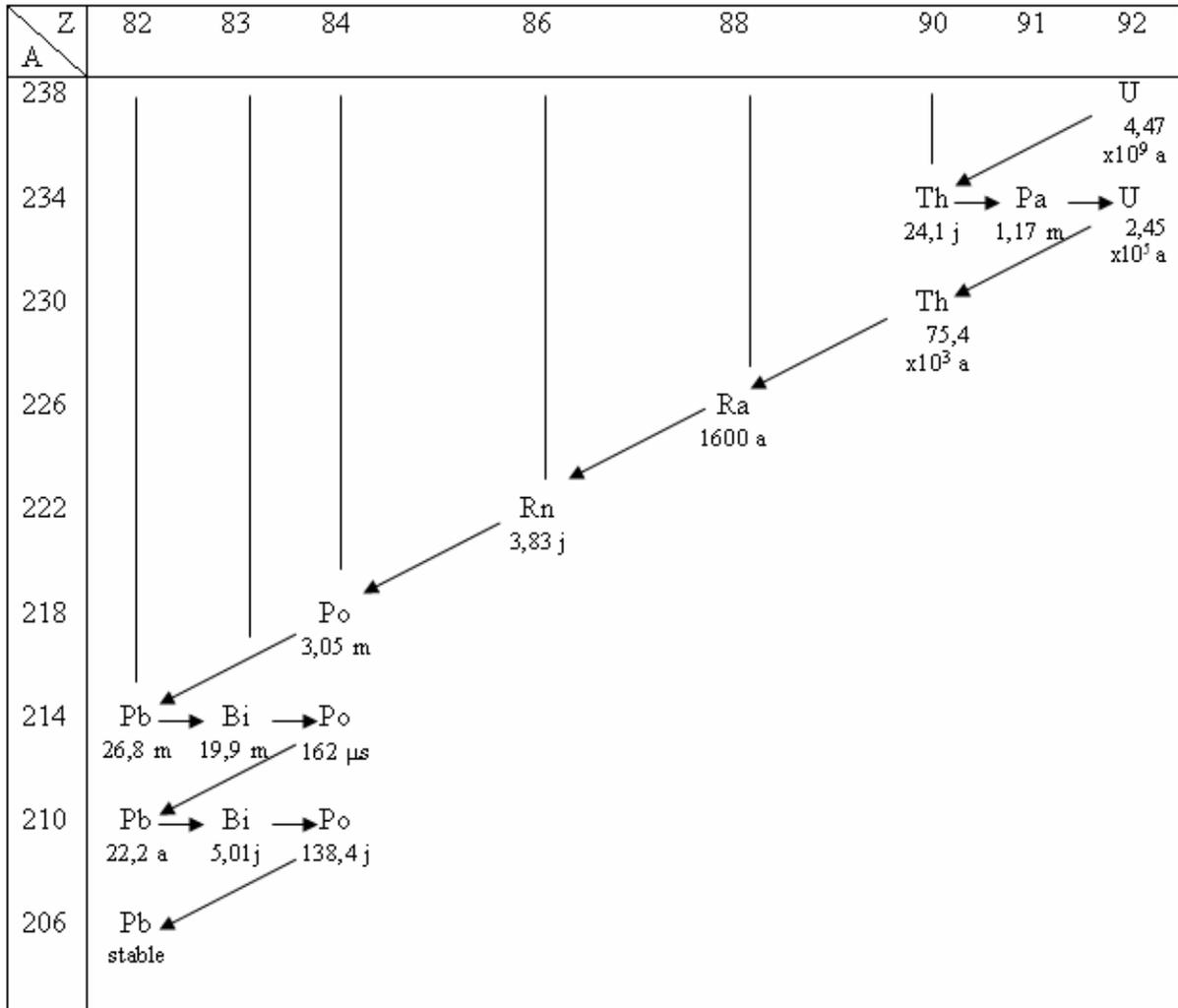


Figure A1.2 : Série radioactive de l'uranium 238.

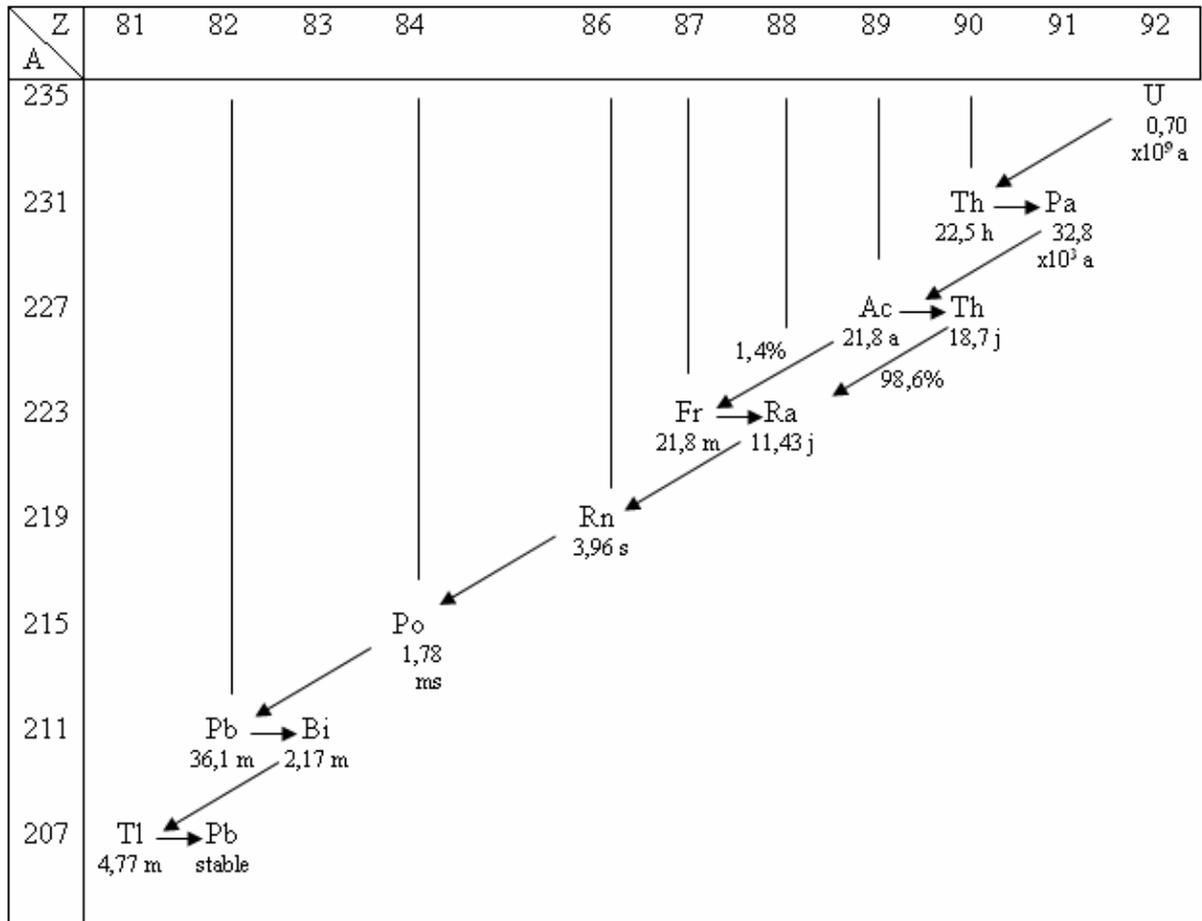


Figure A1.3 : Série radioactive de l'uranium 235.

Annexe 2 : Analyses des échantillons

La composition en éléments majeurs des échantillons de sédiment cuit étudiés dans ce travail et leurs teneurs en radioéléments sont données respectivement par les tableaux A2.1 et A2.2.

Site	Réf. Éch.	SiO ₂ %	Al ₂ O ₃ %	Fe ₂ O ₃ %	MnO %	MgO %	CaO %	Na ₂ O %	K ₂ O %	TiO ₂ %	P ₂ O ₅ %	PF %	Total %
Les Riaumes	C397bis	71,94	15,2	3,16	<L.D.	0,72	0,78	1,83	5,23	0,34	0,24	0,45	99,89
Les Riaumes	C396	67,51	15,66	3,63	<L.D.	0,77	0,91	1,83	5,06	0,48	0,35	3,7	99,9
Le Fraisse1	C348	59,98	16,59	7,06	0,1	2,32	3,05	2,13	3,22	1,15	0,34	3,99	99,93
Le Fraisse2	C408	56,16	16,98	7,57	0,10	2,86	3,49	1,97	3,34	1,26	0,28	5,90	99,91
Blanzat	C416	58,72	16,49	7,37	0,10	2,90	2,48	1,49	3,09	1,08	0,22	5,93	99,87
Aydat	C410	58,25	17,65	7,51	0,13	2,64	4,17	3,14	2,17	0,88	0,22	3,11	99,87
Saint-Saturnin	C452	62,17	15,85	6,53	0,14	1,7	2,66	1,52	3,27	1,2	-	1,6	96,64
Terrenoire	C437	54,75	17,82	8,43	0,22	2,20	5,23	5,10	3,09	1,30	0,76	0,70	99,59
Neschers	C422	59,5	12,1	3,2	-	1,3	8,4	0,6	3,9	0,7	-	2,04	91,74

Tableau A2.1 : Composition en majeurs des échantillons de sédiment cuit déterminée par ICP-AES au Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques de Vandoeuvre-lès-Nancy (PF : perte au feu).

Site	Réf. Éch.	K ₂ O (%)	²³² Th (ppm)	²³⁸ U (ppm)	²²⁶ Ra (ppm)	²¹⁰ Pb (ppm)	²²⁶ Ra/ ²³⁸ U	²¹⁰ Pb/ ²²⁶ Ra
Les Riaumes	C397bis	5,26 ± 0,04	11,98 ± 0,09	1,97 ± 0,13	2,09 ± 0,03	1,77 ± 0,29	1,06 ± 0,08	0,85 ± 0,15
Les Riaumes	C396	5,30 ± 0,05	22,80 ± 0,19	2,83 ± 0,19	2,54 ± 0,05	2,35 ± 0,35	0,90 ± 0,10	0,90 ± 0,15
Le Fraisse1	C348	3,24 ± 0,03	13,3 ± 0,3	2,80 ± 0,15	3,30 ± 0,15	2,28 ± 0,15	1,18 ± 0,08	0,69 ± 0,05
Le Fraisse2	C408	3,17 ± 0,04	15,72 ± 0,12	2,64 ± 0,16	4,02 ± 0,06	1,60 ± 0,73	1,5 ± 0,1	0,44 ± 0,04
Royat	C405	3,25 ± 0,04	11,6 ± 0,2	3,2 ± 0,3	4,2 ± 0,1	3,2 ± 0,5	1,3 ± 0,2	0,76 ± 0,16
Blanzat	C416	2,87 ± 0,08	16,25 ± 0,29	2,3 ± 0,2	4,15 ± 0,13	2,8 ± 0,5	1,8 ± 0,3	0,68 ± 0,14
Aydat	C410	2,01 ± 0,06	9,51 ± 0,19	2,6 ± 0,3	3,28 ± 0,11	2,7 ± 0,5	1,24 ± 0,15	0,82 ± 0,15
Saint-Saturnin	C452	3,14 ± 0,05	15,0 ± 0,2	2,8 ± 0,3	4,00 ± 0,15	3,1 ± 0,5	1,43 ± 0,2	0,77 ± 0,03
Terrenoire	C437	2,93 ± 0,05	12,05 ± 0,20	3,1 ± 0,3	3,6 ± 0,2	2,9 ± 0,5	1,16 ± 0,2	0,81 ± 0,10
Neschers	C422	3,78 ± 0,07	13,1 ± 0,2	3,1 ± 0,3	4,42 ± 0,11	3,0 ± 0,5	1,41 ± 0,4	0,68 ± 0,03

Tableau A2.2 : Teneurs en radioéléments des échantillons (déterminées par spectrométrie gamma à haute résolution au LPC) et mise en évidence des déséquilibres dans la chaîne de l'uranium 238. Les deux dernières colonnes donnent des rapports d'activité. Pour les descendants de ²³⁸U (²²⁶Ra et ²¹⁰Pb), les teneurs sont exprimées en « équivalent ²³⁸U, à l'équilibre », ce qui permet d'utiliser facilement les tables d'équivalence pour les débits de dose.

Le tableau A2.3 donne la composition élémentaire des laves du secteur de Royat.

Réf. Éch.	SiO₂ %	Al₂O₃ %	Fe₂O₃ %	MnO %	MgO %	CaO %	Na₂O %	K₂O %	TiO₂ %	P₂O₅ %	PF %	Total %
C405L	47,369	17,142	12,21	0,201	5,304	9,27	3,661	1,886	2,344	0,774	0,222	100,383
C423G	47,634	17,218	12,332	0,202	5,391	9,337	3,629	1,945	2,371	0,781	-0,125	100,715
C423L	47,508	17,319	12,228	0,202	5,286	9,271	3,658	1,983	2,351	0,788	-0,17	100,425
C518	46,978	16,872	11,543	0,189	5,811	9,229	3,289	1,836	2,349	0,739	1,064	99,899

Tableau A2.3 : Composition en majeurs des échantillons de lave du secteur de Royat déterminée par ICP-AES au Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques de Vandoeuvre-lès-Nancy (PF : perte au feu).

Annexe 3 : Description des lames minces des galets des Riaumes

La figure A3.1 présente des extraits de photographies, en lumière polarisée, de lames minces des galets des Riaumes que nous avons étudiés pour déterminer l'âge de la coulée (description de P. Boivin).

	<p><u>C404-1</u></p> <p>Quartz filonien tectonisé et recristallisé. Grands cristaux atteignant 4 cm baignant dans une matrice de cristaux de petite taille. Tous les cristaux ont des joints amiboïdes (structure granoblastique). Les grands cristaux contiennent de très nombreuses inclusions fluides souvent biphasées, qui dessinent un réseau dense d'alignement. Rares paillettes de phyllites associées à des fentes cicatrisées.</p>
	<p><u>C404-6</u></p> <p>Quartz hydrothermal. Cristallisation granoblastique, parfois fibreuse orientée perpendiculairement à des fentes ou des géodes. Structure localement fibro-radiée. Inclusions fluides très abondantes mais de très petite taille.</p>
	<p><u>C404-8</u></p> <p>Quartz filonien à texture polyphasée. Grands cristaux automorphes assez riches en inclusions polyphasées. Repris en fragments par une silicification tardive plus fine, associée à des phyllites interstitielles biréfringentes, parfois fibro-radiées, verdâtres (chlorites, mica blanc ?) et à des hydroxydes (?) brunâtres de fer.</p>

	<p><u>C404-9</u> Idem C404-8, mais texture à 2 phases plus nettes.</p>
	<p><u>C404-10</u> Monocrystal de quartz filonien Zones de croissances soulignées par des inclusions polyphasées (?) de très petite taille et dans certaines zones, d'inclusions phylliteuses de plus grandes tailles. Sa périphérie a une texture fibreuse et passe à une texture bréchique cimentée par des cristaux de quartz de taille réduite ou microcristallins.</p>
	<p><u>C404-11</u> Quartz filonien à cristallisation polyphasée. Texture bréchique recimentée par des cristaux de quartz fibreux. Fantômes de biotite et restes de plagioclase. Zircons intacts assez nombreux et automorphes. C'est manifestement un granite silicifié. Très belle texture en « queue de paon ».</p>
	<p><u>C404-12</u> Quartz filonien recristallisé en plages à bordures microgrenues et à extrémité à extinction zonée (aspect fractale des bordures). Inclusions assez peu nombreuses. Quelques phyllites incolores.</p>

Figure A3.1: Extraits de photographies de lames minces des galets des Riaumes (lumière polarisée).

Résumé

L'objectif de ce travail était de dater des coulées volcaniques de la Chaîne des Puys (Massif Central, France) situées chronologiquement dans la période de l'événement paléomagnétique de Laschamp (30-50 ka). Les méthodes utilisées étaient la thermoluminescence et la luminescence stimulée optiquement appliquées à des grains de quartz et à des galets quartzeux extraits de sédiments cuits par ces coulées. Ces minéraux émettent des signaux de luminescence dont le comportement est souvent irrégulier. Leur paléodose a donc été déterminée par différentes méthodes pour choisir celles qui seraient les plus appropriées à l'obtention de résultats fiables. Ces intercomparaisons ont mis en évidence une dispersion des résultats supérieure à ce qui pouvait être attendu au regard des incertitudes habituellement associées à chacune d'entre elles. Dans la plupart des cas, ces observations ont conduit à proposer un intervalle assez large dans lequel est compris l'âge probable de l'échantillon.

Mots-clés : thermoluminescence, luminescence stimulée optiquement, quartz, volcanisme, Laschamp, Quaternaire

Abstract

The aim of this work was to date lava flows from the Chaîne des Puys (Massif Central, France) which were chronologically situated during the period of the Laschamp paleomagnetic event (30-50 ka). The methods used were thermoluminescence and optically stimulated luminescence applied to quartz grains and quartz pebbles extracted from sediments baked by the lava flows. These minerals often emit luminescence signals exhibiting erratic behaviour. Thus, their palaeodoses were tentatively determined by various methods to select those which were most likely to yield reliable results. These intercomparisons highlighted a dispersion of results beyond what could be expected from the uncertainties usually associated with each measurement. In the majority of cases, these observations forced us to propose a relatively wide interval in which the most probable age of the sample is included.

Keywords: thermoluminescence, optically stimulated luminescence, quartz, volcanism, Laschamp, Quaternary