



Quaternaire

Revue de l'Association française pour l'étude du
Quaternaire

vol. 19/3 | 2008
Volume 19 Numéro 3

Datation des sédiments quaternaires par luminescence stimulée optiquement : un état de la question

*Dating of Quaternary Sediments by Optically Stimulated Luminescence: A
Review*

Norbert Mercier



Édition électronique

URL : <http://journals.openedition.org/quaternaire/3932>
DOI : 10.4000/quaternaire.3932
ISSN : 1965-0795

Éditeur

Association française pour l'étude du quaternaire

Édition imprimée

Date de publication : 1 septembre 2008
Pagination : 15-204
ISSN : 1142-2904

Référence électronique

Norbert Mercier, « Datation des sédiments quaternaires par luminescence stimulée optiquement : un état de la question », *Quaternaire* [En ligne], vol. 19/3 | 2008, mis en ligne le 01 septembre 2011, consulté le 06 mai 2019. URL : <http://journals.openedition.org/quaternaire/3932> ; DOI : 10.4000/quaternaire.3932

DATATION DES SÉDIMENTS QUATERNAIRES PAR LUMINESCENCE STIMULÉE OPTIQUEMENT : UN ÉTAT DE LA QUESTION



Norbert MERCIER

RÉSUMÉ

Au cours des vingt dernières années, la datation des sédiments par luminescence stimulée optiquement (OSL pour *Optically Stimulated Luminescence*) s'est grandement développée : de nombreuses applications ont été réalisées sur des dépôts d'origines variées, en parallèle d'efforts méthodologiques soutenus. Ces études ont conduit à définir pour les différents types de minéraux, plusieurs approches et protocoles de détermination de l'âge dont la fiabilité a été évaluée au fil du temps. Dans cet article, nous proposons de faire un historique de ces différentes approches et de les expliciter succinctement, en insistant sur leurs avantages respectifs, leurs limitations ainsi qu'en exposant les hypothèses qui les soutiennent. Les développements les plus récents qui sont en cours d'évaluation et les espoirs qu'ils suscitent, seront aussi exposés.

Mots-clés : luminescence stimulée optiquement, OSL, datation, sédiment, Quaternaire.

ABSTRACT

DATING OF QUATERNARY SEDIMENTS BY OPTICALLY STIMULATED LUMINESCENCE: A REVIEW

During the last twenty years, the dating of sediments by the Optically Stimulated Luminescence (OSL) method largely developed: numerous applications were realized on deposits of various origins, in parallel of constant methodological efforts. These studies led to define for the different types of minerals, several approaches and protocols for the determination of the age whose reliability was progressively estimated. In this article, we propose to make a review of these various approaches and to clarify them briefly, by insisting on their respective advantages, their limitations as well as by explaining the underlying hypotheses. The most recent developments which are in the course of evaluation and the hopes that they arouse, will also be explained.

Keys-words: optically stimulated luminescence, OSL, dating, sediment, Quaternary.

1 - INTRODUCTION

L'obtention de données chronologiques est l'un des éléments clés qui participe à l'étude d'une séquence sédimentaire. Aussi, les physiciens ont-ils cherché depuis une trentaine d'années à développer les méthodes fondées sur la dosimétrie des rayonnements ionisants afin de les appliquer à la datation des minéraux. La première application dont les résultats furent largement diffusés (Wintle & Huntley, 1979) a exploité le signal de thermoluminescence (TL) émis par des grains de quartz et de feldspaths. Dans ce travail précurseur, ces auteurs avaient montré qu'une partie de ce signal TL s'effaçait lors de l'exposition de ces minéraux à la lumière du jour. Comme par ailleurs, ces mêmes minéraux étaient utilisés depuis plusieurs années pour dater, par TL, des pièces d'intérêt archéologique (tessons de poterie, figurines en terre cuite,...), ce travail ouvrait la voie à la datation

directe des sédiments. Par la suite, en raison de leurs propriétés physiques et de leur ubiquité dans les dépôts sédimentaires, les quartz et les feldspaths ont focalisé la grande majorité des études destinées à leur utilisation comme géochronomètre.

Sur le principe, la méthode proposée par Wintle et Huntley s'apparente aux travaux menés à l'époque pour dater des vestiges chauffés grâce à leur signal TL (Fleming, 1970). Elle s'appuie sur le fait que ces minéraux constituent des dosimètres, c'est-à-dire des supports capables d'accumuler sous la forme d'électrons piégés dans des défauts cristallins, une information relative à la dose induite par les rayonnements auxquels ils sont soumis du fait de l'irradiation naturelle ambiante. Cette dernière résulte principalement de la désintégration des radioéléments des chaînes de l'uranium (U), du thorium (Th), ainsi que du potassium 40 (K), et caractérise le taux d'accroissement de la dose accumulée avec le temps.

Ce taux est couramment dénommé débit de dose ou plus simplement, dose annuelle. Le rapport de la dose accumulée, ou paléodose, à la dose annuelle est donc une mesure du temps écoulé depuis l'effacement du signal considéré, qui correspond à « l'âge » de l'échantillon (Aitken, 1985).

Dans la suite de cet article, nous n'exposerons pas les différentes techniques disponibles pour évaluer la dose annuelle, qui peut être décomposée en plusieurs fractions dues, respectivement, aux particules alpha, beta, gamma, et aux rayons cosmiques. Rappelons seulement que ces techniques permettent soit de déterminer directement ces débits de dose – c'est le cas par exemple de la dose annuelle due aux rayons gamma et cosmiques qui peut être aisément mesurée à l'aide de dosimètres artificiels –, soit de les calculer à partir de la mesure de l'activité des radioéléments U, Th, K et de leurs descendants.

Notre propos se focalisera ici sur les différentes approches développées au cours des trente dernières années pour déterminer la paléodose. Ces approches qui exploitent différents signaux de luminescence (TL, OSL, IRSL,...) sont souvent qualifiées de méthodes, suggérant qu'elles sont indépendantes alors qu'elles possèdent en fait une base commune qui, comme nous l'avons mentionné, est la dosimétrie des rayonnements ionisants.

2 - LES SIGNAUX DE LUMINESCENCE : ORIGINE ET CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES

Les signaux de thermoluminescence (TL)

Afin de comprendre les fondements des approches développées pour mesurer la paléodose d'un quartz ou d'un feldspath, il importe de connaître l'origine des signaux de luminescence. Ceux-ci sont observables à l'aide de détecteurs sensibles aux radiations lumineuses lorsqu'un minéral est chauffé de l'ambiante jusque vers 500°C : on obtient ainsi une courbe de thermoluminescence. Cette courbe présente selon la nature minéralogique des feldspaths et l'origine des quartz plusieurs signaux caractérisés par leur amplitude et leur localisation en température (fig. 1a). Les « pics TL » résultent en effet de la libération, lors d'un apport d'énergie par la chauffe, des électrons piégés et de leur recombinaison avec des centres luminogènes présents dans le cristal et avides d'électrons (qui correspondent à un « trou » électronique). Ces recombinaisons électrons-trous induisent, lorsqu'elles sont radiatives, l'émission de photons de diverses longueurs d'onde qui constituent le spectre d'émission du minéral étudié. De manière générale, il existe pour ces minéraux deux bandes d'émission principales localisées dans le rouge-proche infrarouge, et dans le bleu- proche ultra-violet. Sauf mention contraire, les expériences décrites par la suite exploitent cette seconde bande d'émission.

La localisation en température d'un pic TL fournit de l'information sur la stabilité dans le temps des pièges

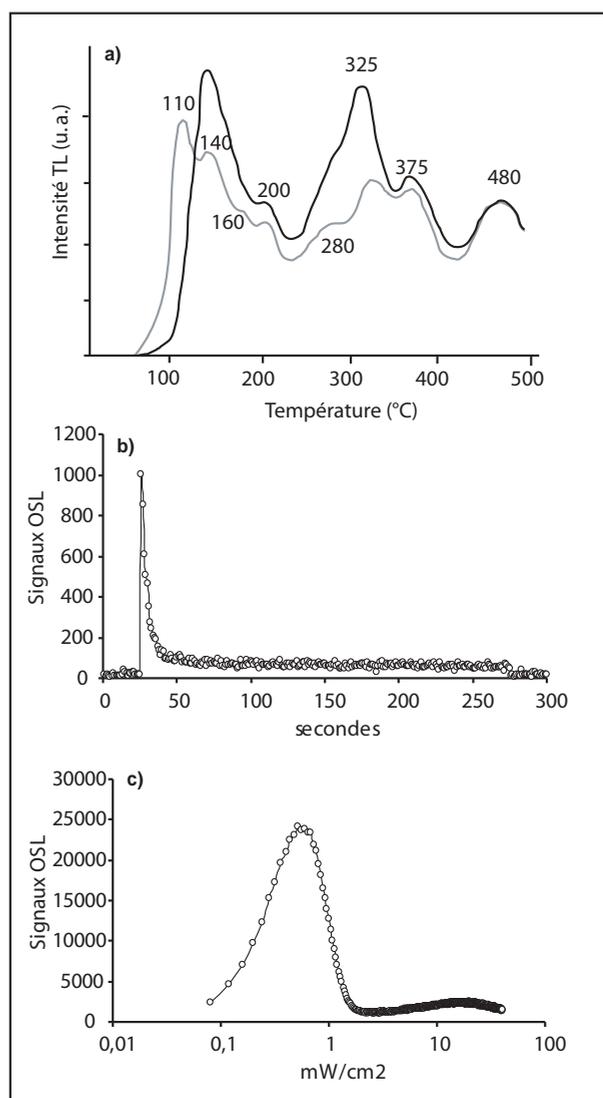


Fig. 1: a) Courbes de thermoluminescence (TL) d'un quartz australien (WIDG8) où sont indiquées les températures des pics. La courbe noire a été obtenue à partir de l'échantillon naturel en augmentant régulièrement sa température, de l'ambiante jusque vers 500°C. La courbe grisée correspond au même échantillon après qu'il ait été soumis à une stimulation lumineuse. On notera que l'amplitude des pics à 160 et 325°C a particulièrement diminué indiquant leur grande sensibilité à la lumière du jour (adapté de Wintle & Murray, 1997) ; b) Courbe d'OSL d'un quartz du gisement Middle Stone Age de Diepkloof (Afrique du Sud). L'utilisation de filtres optiques a permis d'isoler la composante UV du signal OSL de la lumière de stimulation (ici bleue) ; c) Courbe de luminescence du même quartz obtenue en augmentant régulièrement l'intensité de la stimulation lumineuse (LM-OSL) entre 0 et 40 mW/cm². La composante rapide RPB apparaît sous la forme d'un pic marqué pour des puissances de stimulation faibles (< 1 mW/cm²). À l'inverse, les composantes lentes du signal OSL donnent une émission lumineuse faible mais continue entre 1 et 40 mW/cm² (noter l'échelle logarithmique).

Fig. 1: a) Thermoluminescence curves of an Australian quartz (WIDG8) where temperatures peaks are indicated. The black curve was obtained with the natural sample by increasing its temperature from ambient to 500°C. The grayed curve corresponds to the same sample after it was subjected to an optical stimulation. Notice that the 160 and 325 °C peaks have significantly decreased indicating their great daylight sensitivity (after Wintle & Murray, 1997); b) OSL curve of a quartz from the Middle Stone Age site of Diepkloof (South Africa). The use of optical filters made it possible to separate the UV component of the OSL signal to the stimulation light (here blue); c) Luminescence curve of the same quartz obtained by increasing linearly the intensity of the optical stimulation (LM-OSL) between 0 and 40 mW/cm². The fast component RPB appears as a peak for low stimulation powers (< 1 mW/cm²). On contrary, the slow components of the signal OSL give a weak but continuous light output between 1 and 40 mW/cm² (notice the logarithmic scale).

associés : celle-ci est d'autant plus grande que la température du pic est élevée. Cette information est capitale puisqu'elle permet d'évaluer le taux d'érosion du pic considéré sur une durée fixée, que l'on appelle aussi le taux de fading normal ou thermique : pour dater des événements survenus il y a plusieurs centaines de millénaires, on montre ainsi que les signaux TL doivent être situés au-delà de 300°C, c'est-à-dire à des températures pour lesquelles la perte de signal due au fading thermique sera faible ($\ll 1\%$). C'est pour cette raison que les protocoles définis pour mesurer la paléodose possèdent, comme nous le verrons, une étape dite de préchauffe destinée à vider les pièges instables ($< 300^\circ\text{C}$). Pour le quartz, deux pics TL sont généralement présents au-delà de 300°C, à 325 et 375°C pour une vitesse de chauffe de 5°/sec et sont exploités pour la datation (Fleming, 1970). Pour les feldspaths, deux pics sont aussi habituellement observés vers 280 et 330°C, à 2°/sec (Mejdahl, 1988), le premier étant donc jugé insuffisamment stable sur la période de temps considérée.

Les signaux de luminescence stimulés optiquement (OSL)

Comme l'avaient montré Wintle & Huntley, les signaux observables sur les courbes de thermoluminescence sont sensibles à la lumière : leur amplitude diminue en fonction de l'exposition du minéral à une stimulation lumineuse. On parle ainsi de blanchiment du signal. Sur la figure 1a, on peut observer que les pics du quartz situés à 160 et 325°C sont particulièrement sensibles. A l'inverse, pour cette même stimulation, l'amplitude du pic à 480°C ne varie pratiquement pas.

De manière générale, un signal d'OSL (pour *Optically Stimulated Luminescence*) correspond à

l'émission lumineuse résultant d'une stimulation induite directement par la lumière (fig. 1b). Les photons de stimulation apportent en effet l'énergie nécessaire à la libération des électrons piégés, dont la recombinaison avec des centres lumino-gènes entraîne le signal de luminescence. Lors du blanchiment d'un minéral par la lumière du jour, des signaux d'OSL sont aussi émis tout comme cela se produit en laboratoire où les sources de lumière pour la stimulation sont choisies en fonction des caractéristiques physiques des minéraux étudiés.

Plusieurs études ont porté sur les signaux d'OSL émis lors du blanchiment d'un quartz : il a ainsi été montré que le signal obtenu lors d'une stimulation optique résultait principalement du vidage partiel du pic TL à 325°C (Singarayer & Bailey, 2003 ; Choi *et al.*, 2006). Compte-tenu de la stabilité thermique de ce pic, ce signal qui est rapidement blanchi – d'où son nom de *Rapid Bleach Peak (RBP)* –, est utilisable pour la datation des dépôts quaternaires. Mais, il n'est pas le seul : ces mêmes auteurs ont aussi montré qu'en augmentant régulièrement l'intensité de la stimulation lumineuse (d'où la dénomination : *Linearly Modulated (LM) OSL*), plusieurs signaux d'OSL ayant des vitesses de blanchiment moindre, sont observables (fig. 1c).

Longueurs d'onde et sensibilité des signaux de luminescence

La sensibilité des quartz et des feldspaths à libérer les électrons piégés a été étudiée en fonction de la longueur d'onde de stimulation (fig. 2, Bøtter-Jensen *et al.*, 1994). On observe ainsi que le signal OSL du quartz est d'autant plus blanchi que la longueur d'onde des photons de stimulation est courte, c'est-à-dire que leur énergie est

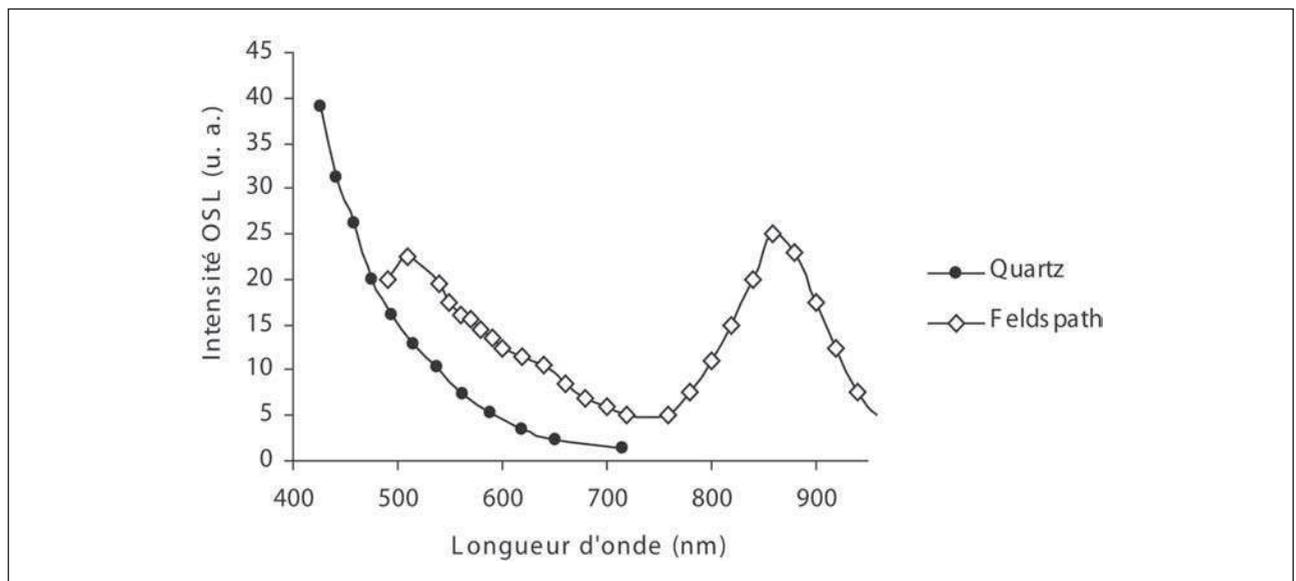


Fig. 2 : Spectres de stimulation optique d'un quartz (points noirs) et d'un feldspath -albite- (losanges blancs). Ces supports avaient été préalablement chauffés, puis irradiés artificiellement. Leur signal OSL a été détecté dans le proche UV avec un filtre U-340. On observe que la stimulation optique est d'autant plus efficace que la longueur d'onde est courte, tant pour le quartz que le feldspath. Néanmoins, ce dernier est aussi particulièrement sensible aux rayons du proche infrarouge (~880 nm) (adapté de Bøtter-Jensen *et al.*, 1994).

*Fig. 2: Optical stimulation spectra of a quartz (black spots) and a feldspar – albite (white diamonds). These minerals had been heated, then artificially irradiated. Their OSL signal was detected in the UV band with a U-340 filter. One can observe that the optical stimulation is more effective when the wavelength is short, as well for quartz as feldspar. Nevertheless, feldspar is also particularly sensitive to infra-red radiations (~880 Nm) (after Bøtter-Jensen *et al.*, 1994).*

grande. Il en est sensiblement de même pour les feldspaths mais ces derniers présentent en plus une forte sensibilité (une résonance) à des longueurs d'onde bien plus grandes, vers 850-900 nm.

Ces observations ont permis de sélectionner les sources de lumière les mieux adaptées pour stimuler la luminescence de ces minéraux en laboratoire. Des sources lasers ont ainsi été utilisées vers la fin des années 80 mais leur coût élevé a conduit à rechercher d'autres solutions comme les lampes halogènes. Aujourd'hui, grâce aux développements récents de l'optoélectronique, les sources mises en œuvre utilisent des diodes électroluminescentes (LED). Pour le quartz, des LEDs vertes ou bleues sont ainsi utilisées car elles permettent à la fois une forte stimulation optique (cf. fig. 2) et une détection du signal d'OSL dans la bande spectrale bleu – proche ultra-violet. Dans les années 1990, ces expériences apparaissent parfois sous les sigles GLSL et BLSL, respectivement (pour *Green and Blue light stimulated luminescence*) mais aujourd'hui, seul l'acronyme OSL est employé. Pour les feldspaths, il est par contre intéressant de mettre à profit la résonance située vers 850-900 nm même si, comme pour le quartz, leur stimulation au moyen de longueurs d'onde plus courtes est possible. En effet, les feldspaths émettent généralement davantage dans le domaine spectral correspondant au bleu, que ne le font les quartz. Il est donc ainsi plus aisé de séparer la lumière de stimulation, qui vers 880 nm correspond au proche infrarouge (IR), du signal de luminescence. Cette combinaison stimulation IR-détection fait que l'on utilise souvent l'acronyme IRSL pour identifier ce type d'expériences. Comme indiqué précédemment, les data-

tions IRSL reposent donc sur l'exploitation du signal émis par les feldspaths, le quartz étant extrêmement peu sensible à ces longueurs d'onde.

Vitesse de blanchiment

La figure 3 montre la réduction des signaux naturels TL et OSL d'un quartz et d'un feldspath exposés à la lumière du jour (Godfrey-Smith *et al.*, 1988). On y observe que les signaux OSL sont blanchis plus rapidement que les signaux TL du même échantillon: ils sont réduits d'un facteur 100 en quelques dizaines de secondes pour le quartz, et en quelques minutes pour le feldspath. Il est également intéressant de noter que les signaux TL mesurés vers 375°C atteignent un niveau résiduel stable, qui reste élevé même pour des durées d'exposition importantes.

Cette figure montre ainsi tout l'avantage d'exploiter les signaux OSL ou IRSL, plutôt que les signaux de TL, pour une datation de minéraux blanchis. En effet, utiliser le signal TL nécessite de faire une hypothèse relativement forte: il faut supposer que le niveau de TL résiduel a bien été atteint lors de la mise en place du sédiment, ce qui peut ne pas être le cas si la durée d'exposition à la lumière a été réduite. Par ailleurs, il est aussi nécessaire de reproduire en laboratoire ce niveau résiduel en utilisant une source de lumière dont le spectre lumineux s'approche au mieux du spectre auquel l'échantillon a été soumis lors du blanchiment.

Malgré ces hypothèses contraignantes dont les conséquences sur la fiabilité des âges obtenus peuvent être importantes, le signal TL a souvent été utilisé en datation des sédiments (ex: Frechen *et al.*, 1997): l'approche

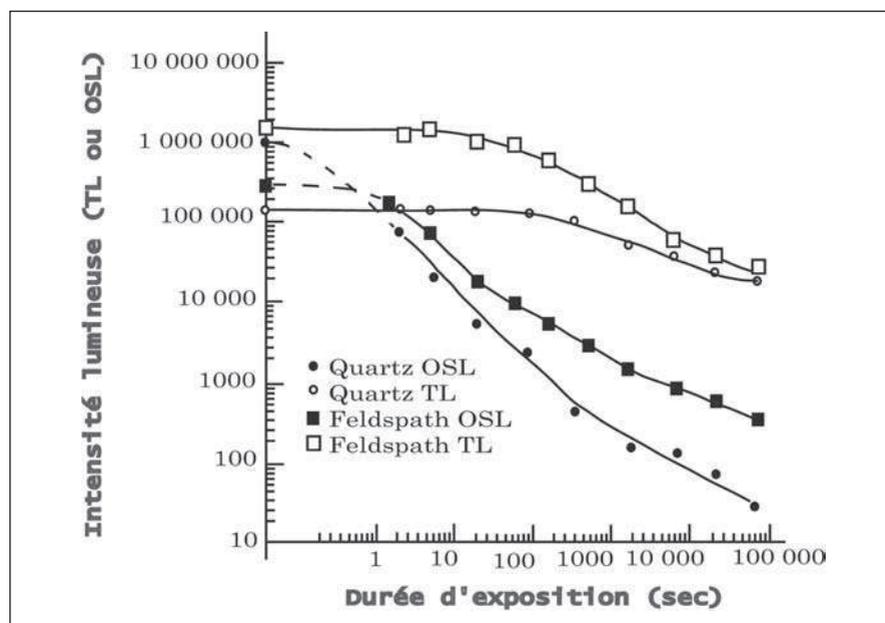


Fig. 3: Réduction des signaux naturels TL et OSL d'un quartz et d'un feldspath exposés à la lumière du jour. Les signaux OSL sont blanchis plus rapidement et atteignent un niveau résiduel plus faible que les signaux TL du même échantillon. Les échelles logarithmiques utilisées pour les axes montrent ainsi que les signaux OSL sont réduits d'un facteur 100 en quelques dizaines de secondes pour le quartz, et en quelques minutes pour le feldspath. Pour des durées d'exposition plus longues, ces signaux peuvent atteindre des niveaux qui ne sont plus détectables par les appareils de luminescence disponibles à ce jour; le blanchiment peut alors être considéré comme total (adapté de Godfrey-Smith *et al.*, 1988).

Fig. 3: Reduction of the natural TL and OSL signals of a quartz and a feldspar exposed to daylight. OSL signals are bleached more quickly than the TL signals and reach a lower residual level. The logarithmic scales used on the axes indicate that OSL signals are reduced by a factor 100 in a few tens of seconds for quartz, and in a few minutes for feldspar. For longer exposure times, these signals can reach levels which are not detectable by the luminescence equipments available to date; in this case, the bleaching can then be regarded as total (after Godfrey-Smith *et al.*, 1988).

développée est connue sous le nom de «*total bleaching*», faisant ainsi référence au fait que le signal doit être ramené au niveau résiduel en laboratoire. Enfin, comme ce niveau résiduel qui correspond à la fraction du signal TL non blanchissable doit être soustrait du signal d'origine, cela conduit à accroître très sensiblement l'incertitude associée à la détermination de la paléodose.

Conséquences pratiques

Les observations relatives à la sensibilité des minéraux aux différentes longueurs d'onde et aux vitesses de blanchiment des différents signaux ont aussi permis de définir les conditions de prélèvement et de préparation des échantillons au laboratoire. Sur le terrain, et afin d'éviter toute exposition même brève du sédiment à la lumière, les échantillons sont généralement prélevés sous la forme de carottes de sédiment en introduisant un tube dans la coupe sédimentaire. Au laboratoire, les faces exposées à la lumière sont ensuite éliminées. Cette étape et les suivantes sont réalisées en lumière contrôlée : pendant longtemps, les lumières rouges analogues à celles utilisées dans les laboratoires photographiques ont été préférées mais aujourd'hui, elles sont remplacées par des lampes à sodium (lumière jaune) car celles-ci présentent l'avantage, bien que l'énergie des photons soit plus élevée, de limiter la densité lumineuse en mettant à profit la forte sensibilité de l'œil humain au jaune par rapport à la lumière rouge.

3 - LES TECHNIQUES D'ÉVALUATION DE LA PALÉODOSE EN OSL ET IRSL

L'approche « additive » en aliquotes multiples

Déterminer la paléodose de grains de quartz ou de feldspaths extraits d'un sédiment nécessite de mesurer le signal de luminescence naturel (OSL ou IRSL) et de le comparer au signal régénéré au moyen d'une dose artificielle délivrée par une source de laboratoire. Dans le principe, cette approche est simple puisqu'elle est réalisable sur une seule fraction de l'échantillon étudié, mais dans les faits, tant que le signal TL était utilisé pour les datations, elle ne pouvait être sereinement mise en œuvre, car la chauffe nécessaire à la mesure du signal naturel engendre très souvent une modification de la sensibilité du matériau à la dose, si bien que le signal induit artificiellement n'est pas comparable au signal naturel. Pour contourner cette difficulté, les chercheurs ont utilisé une approche développée pour les matériaux chauffés qui consiste à irradier avec des doses artificielles croissantes plusieurs fractions de l'échantillon – d'où le nom d'approche additive à aliquotes multiples (*MAA : Multiple Aliquot Additive*). La mesure des signaux de luminescence de ces fractions permet alors, par extrapolation à l'origine du signal, d'évaluer une paléodose.

Cette approche peut être appliquée au signal de TL ou d'OSL / IRSL mais elle présente néanmoins plusieurs inconvénients dont le plus important est lié à l'hétérogénéité du matériau. En effet, contrairement aux grains de

quartz chauffés extraits par exemple de poteries, les quartz sédimentaires possèdent des sensibilités à la dose extrêmement variées ce qui oblige à normaliser les aliquotes analysées. Différentes techniques de normalisation ont alors été testées (au signal naturel – «*short shine*» –, à une dose, ...) mais elles s'avèrent peu efficaces car il est fait l'hypothèse que les grains constituant les parties aliquotes ont atteint un niveau de blanchiment homogène. Or, nous verrons par la suite que ce critère n'est généralement pas vérifié.

Par ailleurs, toute approche additive impose d'extrapoler à l'origine la courbe de croissance du signal avec la dose afin de déterminer la paléodose. Pour cela, deux approches sont possibles : soit en définissant un modèle théorique représentant cette courbe, soit en essayant de la reproduire en laboratoire. La première approche est très discutée car elle n'offre que peu de contrôle sur la paléodose obtenue. Dans la seconde, la courbe de croissance peut être obtenue en travaillant sur une autre fraction de l'échantillon dont le signal de luminescence a été totalement effacé – par une chauffe dans un four ou un éclairage soutenu au laboratoire –, puis régénéré par des doses artificielles (fig. 4). Plusieurs variantes de cette approche ont été proposées à la fin des années 90 (*the Australian slide method*, Prescott & Robertson, 1997 ou MARA, Folz & Mercier, 1999) mais du fait de sa mise en œuvre lourde et des hypothèses sous-jacentes qui restent mal maîtrisées, elle est aujourd'hui peu souvent employée, la méthode de l'aliquote unique lui étant souvent préférée.

L'approche « régénérative » et le protocole SAR

Nous avons vu que la chauffe destinée à la mesure d'un pic TL situé à haute température (typiquement le pic à 325°C du quartz) induit souvent un fort changement de sensibilité à la dose du matériau. Il en est tout autrement lorsque le matériau est stimulé optiquement (en OSL ou IRSL) : dans ce cas, les changements de sensibilité sont généralement faibles ce qui permet de mesurer sur la même partie aliquote le signal de luminescence naturel et, dans un deuxième temps, le signal régénéré induit par une irradiation artificielle. Cette approche régénérative a été et continue d'être appliquée sur des aliquotes multiples : on parle ainsi de la technique MAR (pour *Multiple Aliquot Regenerative*). Elle présente néanmoins deux inconvénients majeurs : les aliquotes sont supposées être de vraies parties aliquotes, ayant donc des caractéristiques de luminescence identiques ; par ailleurs, les changements de sensibilité à la dose sont supposés faibles et ne sont pas pris en compte.

L'approche régénérative peut aussi, comme l'a montré Duller (1991), être appliquée à une aliquote unique. Cette technique permet alors d'éviter les inconvénients associés à l'approche des aliquotes multiples : d'une part, aucune normalisation n'est nécessaire puisque la paléodose est calculée à partir de signaux émis par la même fraction d'échantillon ; d'autre part, il n'est plus utile de réaliser une extrapolation du signal à l'origine comme dans le cas de l'approche MAA, ce qui élimine les hypothèses liées à la définition du modèle de croissance du signal avec la dose, et de fait, les incerti-

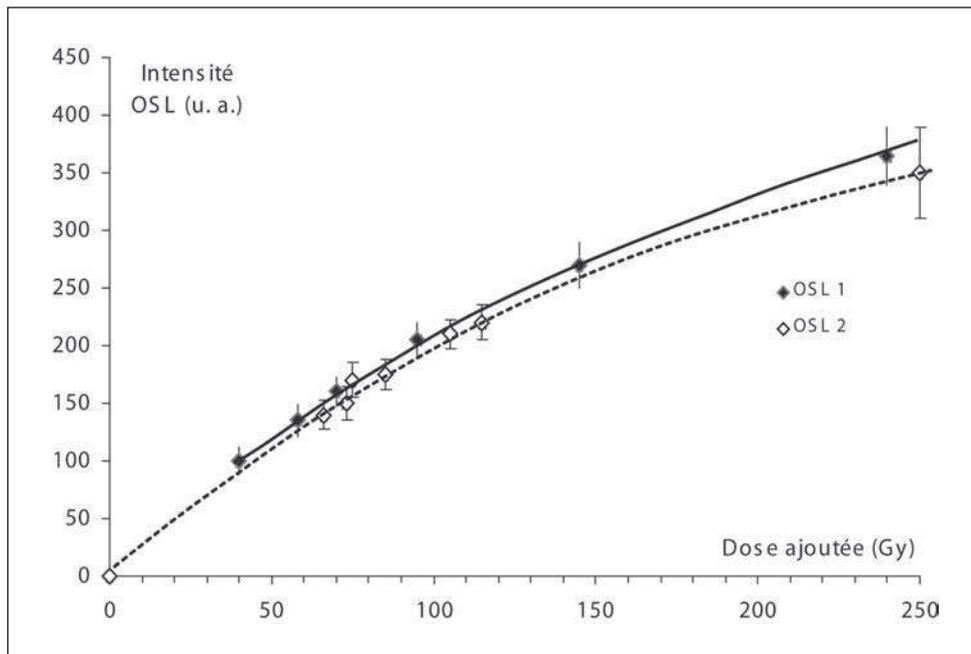


Fig. 4 : Détermination de la paléodose par une approche additive à aliquotes multiples (protocole MARA) sur un échantillon de quartz provenant d'une dune sableuse, à Sable-d'Or-les-Pins (Baie de Saint-Brieuc, France - Folz & Mercier, 1999). Les aliquotes naturelles ont été réparties en plusieurs groupes et irradiées artificiellement : chaque signal mesuré comporte une fraction due à l'irradiation naturelle et une autre induite par la dose ajoutée au laboratoire (courbe OSL1). Malgré la normalisation des signaux de luminescence, la dispersion des mesures reste importante indiquant un blanchiment hétérogène lors du dépôt. La courbe OSL2 est la courbe régénérée de croissance de la luminescence obtenue à partir d'une autre fraction de l'échantillon. Elle est utile comme modèle de croissance de la courbe OSL1, de l'origine des doses à la valeur de la paléodose.

Fig. 4: Equivalent dose determination in using a multiple-aliquot additive dose approach (MARA protocol) for a quartz sample coming from a sandy dune at Sable-d'Or-les-Pins (Baie de Saint-Brieuc, France - Folz & Mercier, 1999). The natural aliquots were divided into several groups and artificially irradiated: hence, each measured signal has a fraction due to the natural irradiation and another induced by the laboratory dose (curve OSL1). In spite of the luminescence signals normalization, the scatter of measurements remains important indicating a heterogeneous bleaching at the time of deposition. Curve OSL2 is the regenerated luminescence growth curve obtained from another fraction of the sample. It is useful as a growth model for curve OSL1, from the origin to the equivalent dose value.

tudes associées, ou bien, de supposer que les changements de sensibilité sont inexistantes comme dans le cas de MAR.

Toutefois, l'approche régénérative à une aliquote n'est pas directement applicable sous cette forme simple car l'irradiation artificielle conduit à un remplissage des pièges électroniques situés à basse température ($< 300^{\circ}\text{C}$) qui, rappelons-le, sont instables sur les échelles de temps qui nous intéressent dans le cadre d'une datation de sédiments quaternaires. Une préchauffe est donc nécessaire pour vider ces pièges instables avant la mesure d'un signal OSL ou IRSL (fig. 5). Cette préchauffe, même si elle se situe à une température relativement basse, induit cependant un changement de sensibilité du matériau. Pour en corriger les effets, une dose dite test est alors administrée à l'échantillon après la mesure du signal naturel et de tout autre signal régénéré. Les signaux naturel et régénérés peuvent ainsi être normalisés un à un au signal de dose test associé.

Ce protocole appelé SAR (pour *Single-Aliquot Regenerative*, Murray & Wintle, 2000) a été défini à l'origine pour le quartz mais a depuis été adapté à l'analyse des feldspaths (ex : Stokes *et al.*, 2003). Cette dénomination SAR est donc générique car elle concerne aussi bien les quartz (en OSL) que les feldspaths (en IRSL).

Par ailleurs, des variantes ont été développées car ce protocole doit être adapté aux caractéristiques de chaque échantillon (par l'ajustement de la température de préchauffe des doses de régénération, de la dose test, par l'ajout parfois d'un cycle de drainage des charges –Murray & Wintle, 2003,...). Ainsi, il est essentiel de valider ces adaptations pour chaque échantillon, ce qui est réalisé en simulant artificiellement une paléodose et en cherchant à la retrouver. Ce test et les contrôles internes au protocole que nous ne détaillerons pas, constituent ainsi une avancée importante par rapport à toutes les approches que nous avons évoquées précédemment car ils permettent, dès lors, d'évaluer la pertinence de la paléodose obtenue sur une fraction donnée d'échantillon.

En raison des nombreux avantages qu'il procure, le protocole SAR est aujourd'hui largement utilisé : pour chaque échantillon, plusieurs parties sont analysées indépendamment donnant ainsi autant de paléodoses (fig. 6). Rappelons-le, chaque partie est constituée de plusieurs centaines, voire de milliers, de grains de quartz ou de feldspaths. Chaque paléodose correspond par conséquent à la dose moyenne absorbée par les grains constituant la fraction analysée, depuis leur enfouissement. Cette approche est ainsi bien adaptée aux échantillons dont le blanchiment a été homogène,

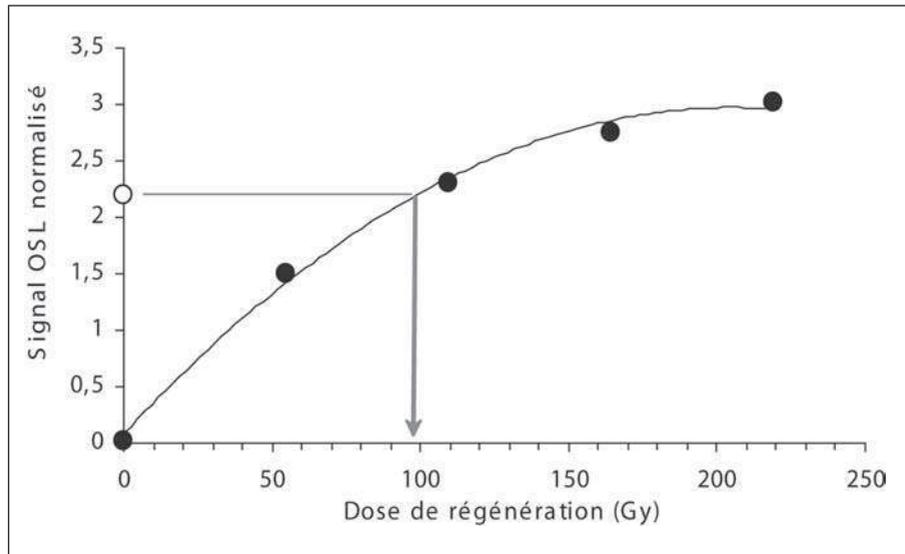


Fig. 5: Courbe de croissance des signaux OSL normalisés obtenu pour du quartz extrait d'un dépôt du gisement archéologique de La Quina (Charentes, France). La normalisation a été réalisée grâce au signal de la dose test. La paléodose a été obtenue par interpolation du signal OSL naturel normalisé (cercle vide sur l'axe vertical) sur la courbe de croissance. L'incertitude associée à la paléodose dépend essentiellement de la statistique de comptage, donc de l'intensité des signaux OSL.

Fig. 5: Normalized OSL signals growth curve for quartz grains extracted from an archaeological deposit at La Quina (Charentes, France). Normalization was carried out thanks to the signal of a test dose. The equivalent dose was obtained by interpolating the natural OSL signal (empty circle on the vertical axis) onto the growth curve. Uncertainty associated with the equivalent dose depends mainly on counting statistics, and therefore on OSL signals intensity.

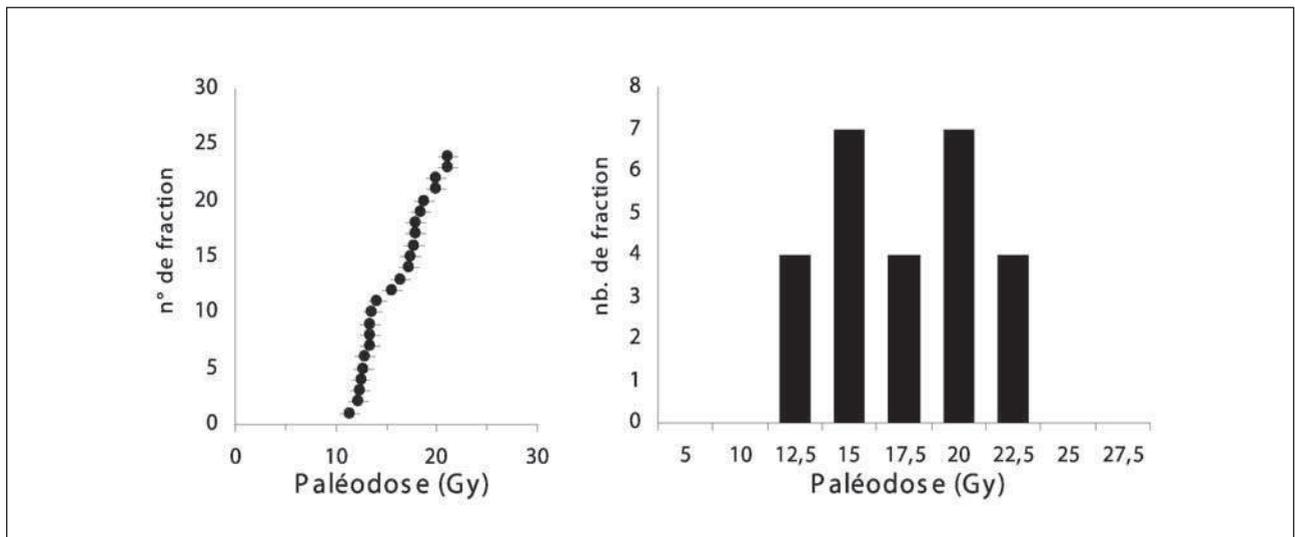


Fig. 6: Paléodoses OSL obtenues à l'aide du protocole SAR sur 24 fractions de quartz d'un échantillon du gisement de La Quina (Charentes, France). Deux types de représentation sont donnés: par classement des paléodoses en ordre croissant et sous forme d'histogramme. Un étalement des paléodoses est observable indiquant un blanchiment hétérogène des grains de quartz. Compte-tenu du mode de dépôt du sédiment analysé (dépôt de débordement de rivière), il est fait l'hypothèse que les grains présentant les plus basses paléodoses étaient les mieux blanchis: une paléodose moyenne de ~12 Gy a ainsi été retenue.

Fig. 6: OSL equivalent doses obtained using the SAR protocol for 24 aliquots of quartz from the La Quina site (Charentes, France). Two types of representation are given: equivalent doses are displayed in increasing order and in the form of a histogram. The observable scatter of equivalent doses may indicate a heterogeneous bleaching of quartz grains. Taking into account the mode of deposition of the analyzed sediment (fluvial deposit of overflow), it is supposed that the lowest equivalent doses were obtained for the best bleached grains: an average equivalent dose of ~12 Gy was thus deduced.

mais elle atteint ses limites lorsque ce critère n'est pas vérifié. C'est le cas de l'échantillon de la figure 6 pour lequel les paléodoses s'étalent de 12 à 20 Gy environ. Dans ce cas précis, l'âge OSL le plus probable est obtenu pour une paléodose de 12 Gy (la valeur minimale de la distribution) puisque les fractions ayant donné cette valeur sont constituées des grains les mieux blanchis lors du dépôt.

Les analyses mono-grain

Les développements du protocole SAR et des équipements de stimulation et de mesure des signaux de luminescence (Duller *et al.*, 1999) ont ouvert la voie à l'analyse de grains individuels: il est donc en principe possible aujourd'hui d'obtenir la paléodose d'un grain unique. La figure 7 montre une représentation radiale des paléodoses obtenues sur des grains individuels de quartz

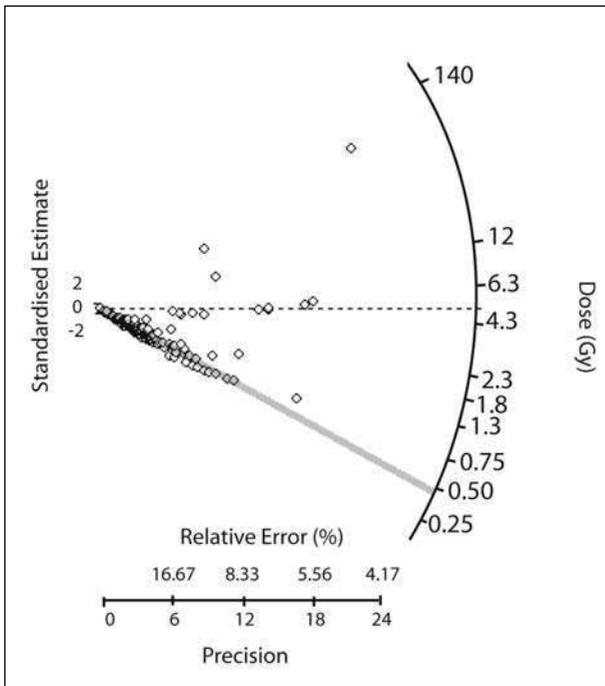


Fig. 7: Représentation radiale («Radial plot») des paléodoses individuelles obtenues pour 202 grains de quartz provenant du gisement holocène de Songona 1 (Mali). La bande grisée indique la paléodose représentative de l'âge du dépôt (0.4 Gy). Grâce à l'analyse mono-grain, les grains dont la paléodose est de 10 fois (i.e. ~5 Gy) à 200 fois (~100 Gy) plus grande ont pu être détectés et écartés du calcul de l'âge OSL.

Fig. 7: Radial plot of individual equivalent doses obtained for 202 quartz grains coming from the Holocene layer of Songona 1 (Mali). The grayed band indicates the equivalent dose representative of the age of the deposit (0.4 Gy). Thanks to the mono-grain analysis, grains whose equivalent dose is of 10 times (i.e. ~5 Gy) to 200 times (~100 Gy) larger could be detected and isolated before the OSL age calculation.

extraits d'un dépôt holocène (site de Songona 1, Mali). La majorité des grains (90% environ) a une paléodose voisine de 0.4 Gy mais les 10% restants ont une paléodose 10 à 200 fois plus élevée. Ces derniers proviennent de niveaux sous-jacents et leur présence dans l'échantillon est liée à l'activité d'animaux fouisseurs. Grâce à cette technique, ils peuvent ainsi être identifiés et exclus du calcul de l'âge OSL. L'analyse OSL mono-grain est donc un outil puissant qui permet d'obtenir de l'information sur l'état de blanchiment du sédiment lors de sa mise en place, mais aussi sur les processus post-dépositionnels qui l'ont affecté.

Pour le quartz, les limites actuelles de l'analyse mono-grain sont liées à la grande variabilité de l'intensité des émissions OSL observées à partir des grains individuels: en effet, seule une petite fraction (< 10% de manière générale) des grains livre un signal OSL mesurable; pour les autres, il n'est actuellement pas possible de déterminer leur paléodose. Pour les feldspaths, ces proportions sont inversées d'où l'intérêt porté à ce support. Mais ce matériau est affecté par le processus de l'«anomalous fading» qui conduit à une perte des électrons piégés au cours de l'enfouissement (Wintle, 1973), phénomène distinct du fading thermique (ou normal) qui lui est fonction de la température. Plusieurs voies de recherches méthodologiques

sont actuellement développées, soit pour contourner le problème du fading anomal (Denby *et al.*, 2006; Li *et al.*, 2007), soit pour le corriger (Huntley & Lamothe, 2001; Auclair *et al.*, 2003).

Analyse et interprétation des distributions

L'avènement de la technique du mono-grain a conduit à développer des recherches sur l'analyse et l'interprétation des distributions de paléodoses. Ces recherches ont pour objectif principal d'identifier les grains qui sont caractéristiques de l'âge de l'échantillon, c'est-à-dire de son dépôt. Pour modéliser une distribution, il est alors essentiel de disposer d'informations sur le sédiment lui-même, son mode de dépôt et son histoire post-dépositionnelle. Ainsi, pour un sédiment éolien à l'image de celui présenté en figure 7, le modèle cherche-t-il à identifier la composante qui fournira l'âge minimal (c'est le *Minimum Age Model*: Galbraith *et al.*, 1999) car il est fait l'hypothèse que la majorité des grains était bien blanchie au moment du dépôt et que seuls quelques grains d'âges différents sont présents dans l'échantillon. Des situations plus complexes sont envisageables, par exemple, dans le cas d'échantillons bioturbés ou lorsque les prélèvements sont réalisés au contact de deux couches d'âge (et donc de paléodoses moyennes) différents. Il est alors nécessaire d'évaluer le nombre de composantes caractéristiques de l'échantillon analysé et d'utiliser un modèle dit de mélange (*Mixture Age Model*: Roberts *et al.*, 2000) pour identifier ces composantes et leurs paléodoses moyennes respectives.

Lorsque plusieurs échantillons sont prélevés le long d'une coupe stratigraphique, les données des modèles peuvent elles-mêmes être analysées à l'aide de méthodes bayésiennes dans le but d'affiner la chronologie proposée grâce aux informations stratigraphiques (Rhodes *et al.*, 2003; Millard, 2006).

L'analyse à l'échelle du grain est donc une avancée importante qui doit en principe conduire à l'obtention d'âges dont la fiabilité est accrue. Néanmoins, en ce qui concerne la précision sur l'âge, il convient dès lors de prendre en compte les effets dosimétriques à cette même échelle. Les variations de débit de dose sur de très courtes distances (de l'ordre du millimètre, voire moins) sont en effet responsables d'une partie de la dispersion des paléodoses même lorsque celles-ci résultent de l'analyse de grains bien blanchis ayant le même âge de dépôt (Jacobs *et al.*, 2008). Dans l'absolu, il serait donc nécessaire d'évaluer pour chaque grain le débit qu'il a réellement reçu, mais jusqu'à présent, les techniques permettant d'obtenir cette information dosimétrique restent délicates à mettre en œuvre (cf. Kalchgruber *et al.*, 2003).

4 - LIMITES ACTUELLES ET DÉVELOPPEMENTS EN COURS

La composante du signal OSL du quartz, liée au pic TL à 325°C dont le blanchiment est extrêmement rapide (RPB), est aujourd'hui largement utilisée pour la data-

tion des dépôts quaternaires dont l'âge n'excède pas 150.000-200.000 ans, selon le débit de dose. Mais pour dater au-delà, il est nécessaire d'exploiter d'autres signaux OSL dont le niveau de saturation est plus élevé, même s'ils sont moins aisément blanchis à la lumière. Wang *et al.* (2006) ont utilisé le signal de «récupération» (Re-OSL) des quartz pour dater des dépôts lœssiques de Chine dont l'âge était contrôlé par des données magnétostratigraphiques. Ils ont ainsi obtenu des âges compris entre ~750.000 et 800.000 ans sur des échantillons prélevés de part et d'autre de la limite Brunhes-Matuyama. Le signal utilisé correspond à des charges électroniques qui migrent entre les différents pièges présents au sein du réseau cristallin : ainsi, lorsqu'en laboratoire le quartz est chauffé après avoir été fortement stimulé optiquement lors d'une première vidange du piège OSL, des charges sont transférées dans les pièges associés au pic à 325°C et conduisent donc à l'émission d'un nouveau signal OSL lors d'une seconde stimulation optique, d'où le nom de signal de récupération. Ce signal Re-OSL est intéressant pour l'étude des dépôts très anciens (du Pléistocène moyen, voire inférieur) du fait de son niveau de saturation élevé, mais ses caractéristiques devront être étudiées plus en détails avant qu'il ne puisse être utilisé indépendamment de tout contrôle chronologique.

De leur côté, Choi *et al.* (2006) ont montré qu'une autre composante du signal OSL, mesurée en utilisant la technique LM-OSL, permettait de dater des quartz ne possédant pas de composante RPB. Ce résultat ouvre également une voie de recherche à ne pas négliger puisque, comme nous l'avons indiqué, la majorité des grains de quartz n'émettent pas de composante RPB dans leur signal OSL.

Pour les feldspaths, des avancées méthodologiques importantes ont aussi été réalisées sur la compréhension des mécanismes du fading anomal (Lamothe *et al.*, 2003) laissant espérer que ces minéraux, dont les signaux IRSL présentent des niveaux de saturation élevés par rapport à la composante RPB du quartz, permettront à l'avenir de dater des dépôts vieux de plusieurs centaines de milliers d'années.

5 - CONCLUSION

Les recherches méthodologiques ainsi que le développement des techniques et des équipements de mesure ont radicalement changé, en moins de vingt ans, les possibilités offertes pour dater, par les méthodes de la luminescence, les dépôts quaternaires. Cette évolution se poursuit avec comme objectifs d'accroître d'une part la précision et la fiabilité des méthodes aujourd'hui bien éprouvées, et d'étendre d'autre part leurs champs d'application.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- AITKEN M.J., 1985 - *Thermoluminescence Dating*. Academic Press, London, 359 p.
- AUCLAIR M., LAMOTHE M., & HUOT S., 2003 - Measurement of anomalous fading for feldspar IRSL using SAR. *Radiation Measurements*, **37**, 487-492.
- BØTTER-JENSEN L., DULLER G.A.T., & POOLTON N.R.J., 1994 - Excitation and emission spectrometry of stimulated luminescence from quartz and feldspars. *Radiation Measurements*, **23**, 613-616.
- CHOI J.H., DULLER G.A.T., WINTLE A.G., & CHEONG C.S., 2006 - Luminescence characteristics of quartz from the Southern Kenyan Rift Valley: Dose estimation using LM-OSL SAR. *Radiation Measurements*, **41**, 847-854.
- DENBY P.M., BØTTER-JENSEN L., MURRAY A.S., THOMSEN K.J., & MOSKA P., 2006 - Application of pulsed OSL to the separation of the luminescence components from a mixed quartz/feldspar sample. *Radiation Measurements*, **41**, 774-779.
- DULLER G.A.T., 1991 - Equivalent dose determination using single aliquots. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **18**, 371-378.
- DULLER G.A.T., BØTTER-JENSEN L., KOHSIEK P., & MURRAY A.S., 1999 - A high-sensitivity optically stimulated luminescence scanning system for measurement of single sand-sized grains. *Radiation Protection Dosimetry*, **84**, 325-330.
- FLEMING S.J., 1970 - Thermoluminescence dating: refinement of the quartz inclusion technique. *Archaeometry*, **12**, 133-145.
- FOLZ E., & MERCIER N., 1999 - Use a new procedure to determine paleodose in the OSL dating of quartz: the MARA protocol. *Quaternary Science Reviews*, **18**, 859-864.
- FRECHEN M., HORVATH E., & GABRIS G., 1997 - Geochronology of Middle and Upper Pleistocene loess sections in Hungary. *Quaternary Research*, **48**, 291-312.
- GALBRAITH R.F., ROBERTS R.G., LASLETT G.M., YOSHIDA H., & OLLEY J.M., 1999 - Optical dating of the single and multiple grains of quartz from Jimmum Rock Shelter, northern Australia: part I, experimental design and statistical models. *Archaeometry*, **41**, 339-364.
- GODFREY-SMITH D.I., HUNTLEY D.J., & CHEN W.H., 1988 - Optical dating studies of quartz and feldspar sediment extracts. *Quaternary Science Reviews*, **7**, 373-380.
- HUNTLEY D.J., & LAMOTHE M., 2001 - Ubiquity of anomalous fading in K-feldspars and the measurement and correction for it in optical dating. *Canadian Journal of Earth Sciences*, **38**, 1093-1106.
- JACOBS Z., WINTLE A.G., ROBERTS R.G., & DULLER G.A.T., 2008 - Equivalent dose distributions from single grains of quartz at Sibudu, South Africa: context, causes and consequences for optical dating of archaeological deposits. *Journal of Archaeological Science*, **35**, 1808-1820.
- KALCHGRUBER R., FUCHS M., MURRAY A.S., & WAGNER G.A., 2003 - Evaluating dose-rate distributions in natural sediments using alpha-Al₂O₃:C grains. *Radiation Measurements*, **37**, 293-297.
- LAMOTHE M., AUCLAIR M., HAMZAOUI C., & HUOT S., 2003 - Towards a prediction of long-term anomalous fading of feldspar IRSL. *Radiation Measurements*, **37**, 493-498.
- LI B., LI S.H., WINTLE A.G., & ZHAO H., 2007 - Isochron measurements of naturally irradiated K-feldspar grains. *Radiation Measurements*, **42**, 1315-1327.
- MEJDAHL V., 1988 - Long-term stability of the TL signal in alkali feldspars. *Quaternary Science Reviews*, **7**, 357-360.
- MILLARD A.R., 2006 - Bayesian analysis of Pleistocene chronometric methods. *Archaeometry*, **48**, 359-375.
- MURRAY A.S., & WINTLE A.G., 2000 - Luminescence dating of quartz using an improved regenerative-dose single-aliquot protocol. *Radiation Measurements*, **32**, 57-73.
- MURRAY A.S., & WINTLE A.G., 2003 - The single aliquot regenerative dose protocol: potential for improvements in reliability. *Radiation Measurements*, **37**, 377-381.
- PRESCOTT J.R., & ROBERTSON G.B., 1997 - Sediment dating by luminescence: a review. *Radiation Measurements*, **27**, 893-922.
- RHODES E.J., BRONK RANMSEY C., OUTRAM Z., BATT C., WILLIS L., DOCKRILL S., & BOND J., 2003 - Bayesian methods applied to the interpretation of multiple OSL dates: high precision sediment ages from Old Scatness Broch excavations, Shetland isles. *Quaternary Science Reviews*, **22**, 1231-1244.
- ROBERTS R.G., GALBRAITH R.F., YOSHIDA H., LASLETT G.M., & OLLEY J.M., 2000 - Distinguishing dose populations in sediment mixtures: a test of single-grain optical dating procedures using mixtures of laboratory-dosed quartz. *Radiation Measurements*, **32**, 459-465.
- SINGARAYER J.S., & BAILEY R.M., 2003 - Further investigations of the quartz optically stimulated luminescence components using linear modulation. *Radiation Measurements*, **37**, 451-458.
- STOKES S., HETZEL R., BAILEY R.M., & MINGXIN T., 2003 - Combined IRSL-OSL single aliquot regeneration (SAR) equivalent

- dose (De) estimates from source proximal Chinese loess. *Quaternary Science Reviews*, **22**, 975-983.
- WANG X.L., LU Y.C., & WINTLE A.G., 2006** - Recuperated OSL dating of fine-grained quartz in Chinese loess. *Quaternary Geochronology*, **1**, 89-100.
- WINTLE A.G., 1981** - Thermoluminescence dating of late Devensian loesses in southern England. *Nature*, **289**, 479-480.
- WINTLE A.G., 1973** - Anomalous fading of thermoluminescence in mineral samples. *Nature*, **245**, 143-144.
- WINTLE A.G., & HUNTLEY D.J., 1979** - Thermoluminescence dating of a deep-sea sediment core. *Nature*, **279**, 710-712.
- WINTLE A.G., & MURRAY A.S., 1997** - The relationship between quartz thermoluminescence, photo-transferred thermoluminescence, and optically stimulated luminescence. *Radiation Measurements*, **27**, 611-624.