
Datation relative par thermoluminescence Méthode D.A.T.E

L Langouet, Alvaro Roman, Angel Deza, Oscar Brito, Guido Concha, Carmen Asenjo de Roman

Résumé

En partant de la cinétique du remplissage-vidage du piège du quartz, caractérisé par le pic à 325°C, une méthode de datation relative par thermo luminescence a été élaborée et expérimentée. Une courbe générale d'étalonnage a été tracée à l'aide de mobiliers dates provenant de l'ouest et du Sud de la France et du Chili. La présente méthode ne nécessite pas de mesures dosimétriques ce qui facilite l'expérimentation.

Abstract

A method of relative dating by TL has been elaborated and experimented, from the cinetics of the filling-emptying of the quartz traps, characterised by the peak at 325 3C. A general calibration curve has been traced with the help of dated objects from western and southern France and from Chili. The present method does not require dosimetric measures, so that experimentation is made easier.

Citer ce document / Cite this document :

Langouet L, Roman Alvaro, Deza Angel, Brito Oscar, Concha Guido, Asenjo de Roman Carmen. Datation relative par thermoluminescence Méthode D.A.T.E. In: Revue d'Archéométrie, n°3, 1979. pp. 57-65;

doi : <https://doi.org/10.3406/arsci.1979.1100>

https://www.persee.fr/doc/arsci_0399-1237_1979_num_3_1_1100

Fichier pdf généré le 02/06/2022

DATATION RELATIVE PAR THERMOLUMINESCENCEMETHODE D.A.T.E

par

Loïc LANGOUET*, Alvaro ROMAN**, Angel DEZA**, Oscar BRITO**, Guido CONCHA***
et Carmen ASENJO DE ROMAN*

* Laboratoire d'Archéométrie, Université de Rennes
** Institut de Physique, Université Catholique du Chili, Santiago.
*** Institut de Sciences Chimiques, Université Catholique du Chili, Santiago

Depuis 1975, le Laboratoire d'Archéométrie du Département de Physique Cristalline de l'Université de Rennes s'est attaché à l'exploration d'une voie originale de datation relative par thermoluminescence. La nouvelle méthode, dénommée D.A.T.E (Différence des Atténuations Temporelles des Emissions), nécessite, comme pour la datation classique par thermoluminescence, des matériaux chauffés à plus de 500°C et contenant des minéraux de quartz. Plusieurs mémoires universitaires (1)(2)(3); présentés à l'Université de Rennes, ont permis d'améliorer la méthode D.A.T.E et d'en avoir fait une méthode de datation très simple; plusieurs équipes de recherche ont adopté, entre autres, l'emploi de cette méthode pour des datations archéologiques ou pour les expertises de faux. L'une d'entre elles, travaillant à Santiago du Chili, a bien voulu contribuer à la première présentation exhaustive des résultats dus à la méthode D.A.T.E.

Une constatation simple.

Pour déterminer la dose archéologique globale, reçue par un échantillon de céramique ou de matériau chauffé, par différentes méthodes, chaque expérimentateur est amené à comparer la thermoluminescence naturelle (TLN) et les thermoluminescences artificielles (TLA β) générées par des irradiations artificielles de β rads (4). Chacun de ces chercheurs a eu l'occasion de constater que les formes des courbes TLN et TLA β sont différentes dans le domaine des plus faibles températures, c'est à dire entre 20°C et 400°C. D'une manière classique, le test du plateau permet de matérialiser le rapport des courbes TLN et TLA β (4); mais accessoirement, la courbe ainsi obtenue présente une chute, généralement inutilisée, du côté des températures les plus faibles.

Les pièges les moins profonds ont pu se vider au cours de l'enfouissement archéologique, alors qu'ils n'ont pas eu le temps de le faire entre l'irradiation artificielle et le tracé de la courbe expérimentale TLA β . Dans le premier cas (TLN), on a eu un remplissage et un vidage, concurrentiels et simultanés, des pièges tout au long de l'enfouissement; dans le second cas, le vidage est beaucoup moins important et peut même devenir entièrement négligeable pour des pièges d'assez longue durée de vie à la température d'irradiation. La courbe TLN est apparemment affaiblie par rapport à la courbe TLA pour les températures les plus basses, ce qui correspond à la manifestation des pièges les moins profonds. La présente méthode D.A.T.E de datation relative repose sur l'utilisation de la cinétique de vidage des pièges qui intervient lors du stockage archéologique, mais n'a pas le temps de jouer de rôle lors de l'irradiation artificielle.

L'avantage de cette méthode qui repose sur des lois de déclin et non sur des lois linéaires d'accumulation réside surtout dans l'absence d'obligations de déterminer la dose annuelle par des méthodes dosimétriques ou par des mesures radioactives. Par contre l'emploi de cette méthode nécessite un étalonnage effectué avec des matériaux bien datés, soit par des observations archéologiques pour les périodes historiques, soit par d'autres méthodes telles que le radiocarbone pour les périodes préhistoriques.

Le remplissage-vidage d'un piège.

Pour une céramique immobilisée dans un contexte archéologique, ou constamment gardée en un lieu, la dose annuelle D_0 est une constante qui conditionne le remplissage progressif et régulier des pièges; on admettra cette linéarité en premier abord. En l'absence de vidage, ce remplissage interviendrait seul et définirait le nombre n_r des pièges occupés au bout d'un temps t :

$$dn_r = K.D_0.dt$$

où K est un simple facteur de proportionnalité. Par intégration, si les pièges étaient tous inoccupés à l'instant initial (par suite d'un chauffage archéologique, par exemple), on obtient:

$$n_r = K.D_0.t \quad (1)$$

Mais les pièges ont leur propre cinétique de vidage. En admettant que celle-ci est régie, à la température de conservation de la céramique, par une probabilité p par unité de temps, la variation dn_{rv} du nombre de pièges n_{rv} , à un instant donné t , durant un laps de temps dt , obéit à la relation définissant l'effet concurrentiel du remplissage et du vidage:

$$dn_{rv} = -p.n_{rv} + K.D_0.dt \quad (2)$$

L'intégration de cette équation différentielle simple, en supposant que tous les pièges étaient vides à l'instant initial, permet de déterminer le nombre de pièges réellement remplis n_{rv} à l'instant t :

$$n_{rv} = \frac{K.D_0}{p}(1 - e^{-pt}) \quad (3)$$

Le vidage qui se produit durant le remplissage entraîne une diminution du nombre de pièges occupés par rapport à ce qu'il serait en l'absence de vidage; au bout d'un temps t , cette diminution qui se traduira par une atténuation de l'intensité des maxima de thermoluminescence, surtout dans le domaine des plus basses températures, peut être mesurée par un facteur $g(t)$, obligatoirement inférieur à l'unité, ainsi défini:

$$g(t) = \frac{n_{rv}}{n_r} = \frac{1}{p.t} (1 - e^{-pt}) \quad (4)$$

Dans les processus monomoléculaires, la probabilité p peut être reliée à une durée de vie moyenne τ dans les pièges, pour une température fixe (5), d'où la formule:

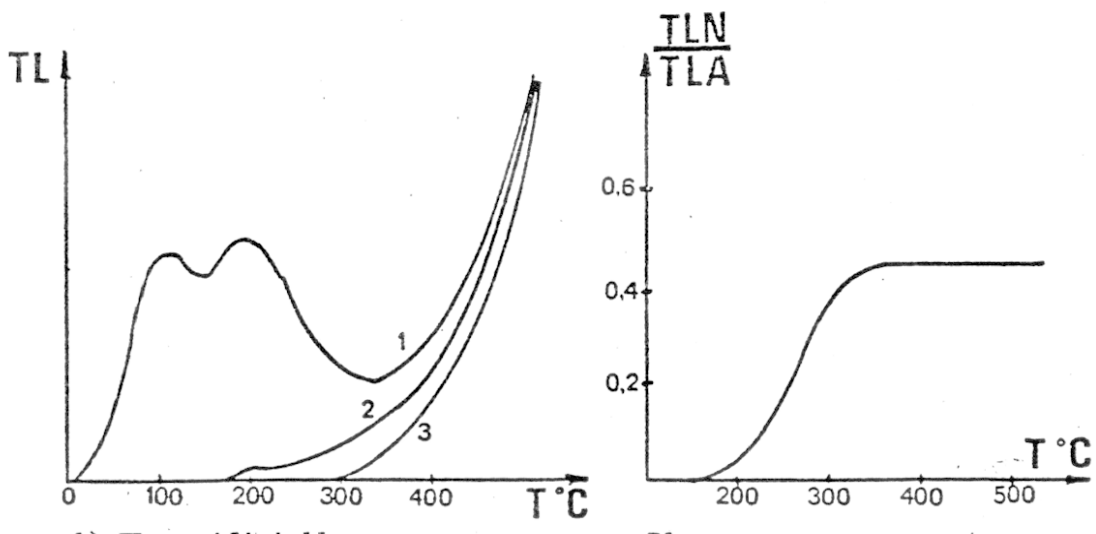
$$g(t) = \tau \frac{1 - e^{-t/\tau}}{t} \quad (5)$$

En fait, l'assimilation du processus de vidage à un processus monomoléculaire n'est qu'une approximation si le matériau est semi-conducteur; dans ce cas les lois de vidages sont hyperboliques et plus complexes (6).

Cependant, ce facteur d'atténuation $g(t)$ est toujours inférieur à l'unité. Si la durée de vie moyenne τ est courte, le facteur $g(t)$ est rapidement pratiquement nul, ce qui aboutit à la disparition de certains pics de thermoluminescence; c'est ce qui se produit pour les premiers pics des courbes de TLN. Ce facteur $g(t)$ prend les valeurs particulières suivantes:

$$\begin{array}{lll} t \text{ très petit} & & g(t) \approx 1 \\ t \text{ grand} & t \gg 3\tau & g(t) \approx \tau/t \end{array}$$

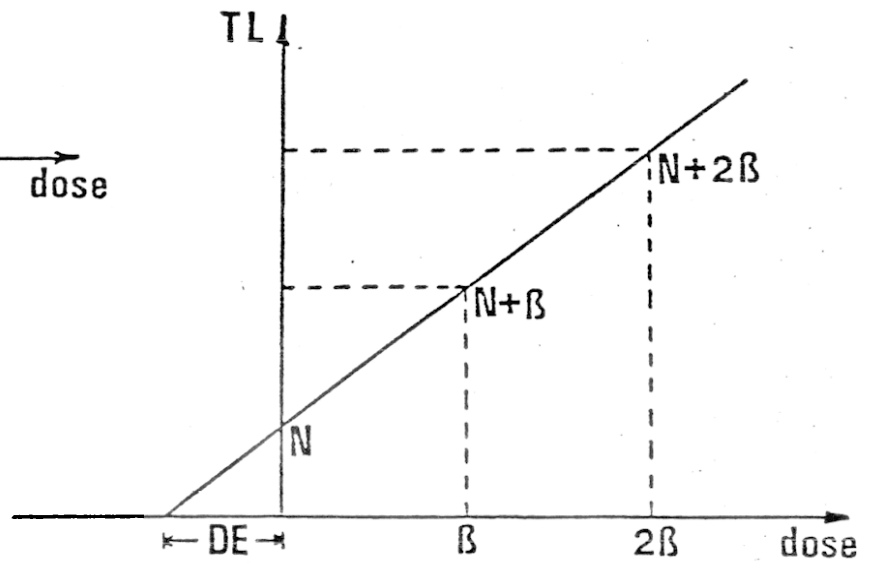
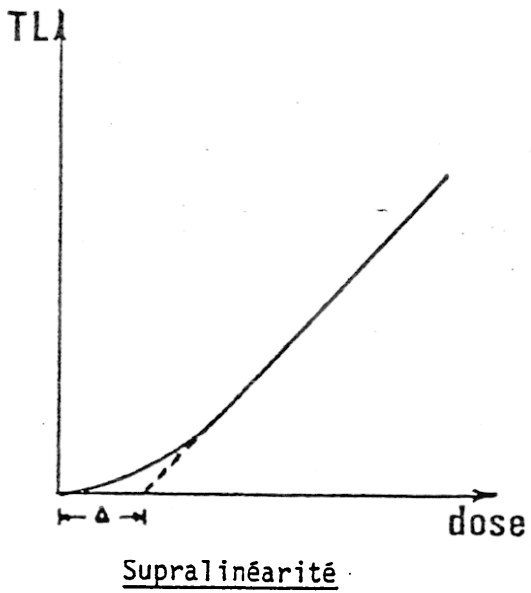
La méthode de datation relative, dénommée D.A.T.E., repose sur l'utilisation du facteur $g(t)$ pour des pièges d'assez longue durée de vie moyenne, permettant sa mesure.



- 1) TL artificielle
- 2) TL naturelle
- 3) Radiation thermique

Plateau

Méthode du Plateau



Méthode additive

La méthode D.A.T.E

La détermination de la dose annuelle est la partie la plus délicate d'une datation classique par thermoluminescence. La présente méthode permet d'éviter cette mesure qui nécessite des appareillages généralement très coûteux. Ce phénomène d'atténuation apparent de la TLN, lié au vidage des pièges les moins profonds, a été exploité à fond. On trouve cette même idée dans un travail de P.LAMARQUE (7) qui proposait, sur un exemple, un modèle exponentiel d'atténuation appliqué au pic à 325°C du quartz pour réaliser une datation relative.

A cause de changements de structures internes liés au chauffage imposé à chaque échantillon, on a voulu utiliser trois séries de trois échantillons chacune pour déterminer :

- l'intensité I_1 du pic de TLN survenant à la température T_1
- l'intensité I_2 du pic de TLN survenant à la température T_2
- l'intensité I'_1 du pic de TLA β survenant à la température T_1
- l'intensité I'_2 du pic de TLA β survenant à la température T_2

Dans nos expériences, on n'utilise qu'une fois chaque échantillon pour la détermination de l'atténuation et de la dose globale.

En plus de la courbe TLN, on utilise la courbe TLN β qui est fournie par un échantillon archéologique soumis à une irradiation complémentaire de β rads. Sur cette dernière courbe, en admettant des lois d'additivité, on peut déterminer directement un pseudo-facteur d'atténuation :

$$g'(t) = \frac{I_1}{I_1 + I'_1} \frac{I_2 + I'_2}{I_2} \quad (6)$$

Si on désigne par DA, la dose archéologique globale reçue par l'échantillon, et par Δ , le décalage de supralinéarité (8), on a les relations simples habituelles :

$$\frac{I_2}{I'_2} = \frac{DA - \Delta}{\beta - \Delta} \quad \frac{I_1}{I'_1} = g(t) \frac{DA - \Delta}{\beta - \Delta}$$

On en tire facilement l'expression générale qui est à la base de la détermination de $g(t)$:

$$g(t) = \frac{g'(t)}{1 + \frac{DA - \Delta}{\beta - \Delta} (1 - g'(t))} \quad (7)$$

La quantité $DA - \beta$ est dénommée habituellement DE, dose équivalente, et est déterminable par la méthode "additive" à partir des courbes TLN, TLN β et TLN2 β , cette dernière étant obtenue après l'irradiation artificielle d'un échantillon non chauffé avec une dose complémentaire de 2β rads. On détermine sur le même graphique la quantité Δ , en utilisant les courbes TLA β' obtenues avec des échantillons chauffés avant l'irradiation par une dose de β' rads. Enfin $g'(t)$ est mesuré à partir des courbes TLN et TLN β . La détermination de $g(t)$ résulte d'un calcul avec la formule (7).

Utilisation des minéraux de quartz.

Jusqu'à présent, on a effectué des datations par cette méthode sur des céramiques ou matériaux chauffés contenant des grains de quartz. En effet ce minéral donne sur les courbes de thermoluminescence deux pics, l'un à 325°C, l'autre à 375°C, entre autres. Ils sont souvent très proches pour des remontées thermiques de l'ordre de 20°/sec. Le piège auquel correspond le pic à 325°C a une durée de vie moyenne, estimée généralement

à quelques milliers d'années à la température ambiante ; par contre celui qui correspond au pic à 375°C a une durée de vie moyenne approximant 4.10^5 ans . Autant dire que le phénomène de vidage n'affecte pratiquement pas ce deuxième piège dans des datations ne dépassant pas 10^4 ans . Pour effectuer cette analyse quantitative de l'effet de vidage , on a choisi ces deux pics du quartz.

La stabilité relative du piège lié au pic à 375°C explique son utilisation pour la datation habituelle par thermoluminescence ; il se remplit théoriquement proportionnellement au temps . Par contre le piège lié à 325°C a une "fuite" et ne présente pas la stabilité souhaitée habituellement . Il convient par contre parfaitement pour la méthode D.A.T.E . Dans notre expérimentation , on compare des courbes de TLN et de TLN β ; aussi le phénomène d'extinction thermique mis en évidence par A.G.WINTLE sur ce pic à 325°C n'a pas d'influence sur le calcul de $g(t)$ (9).

Etablissement de la courbe d'étalonnage.

Pour disposer de données d'étalonnage très différentes , on a utilisé trois séries distinctes d'échantillons :

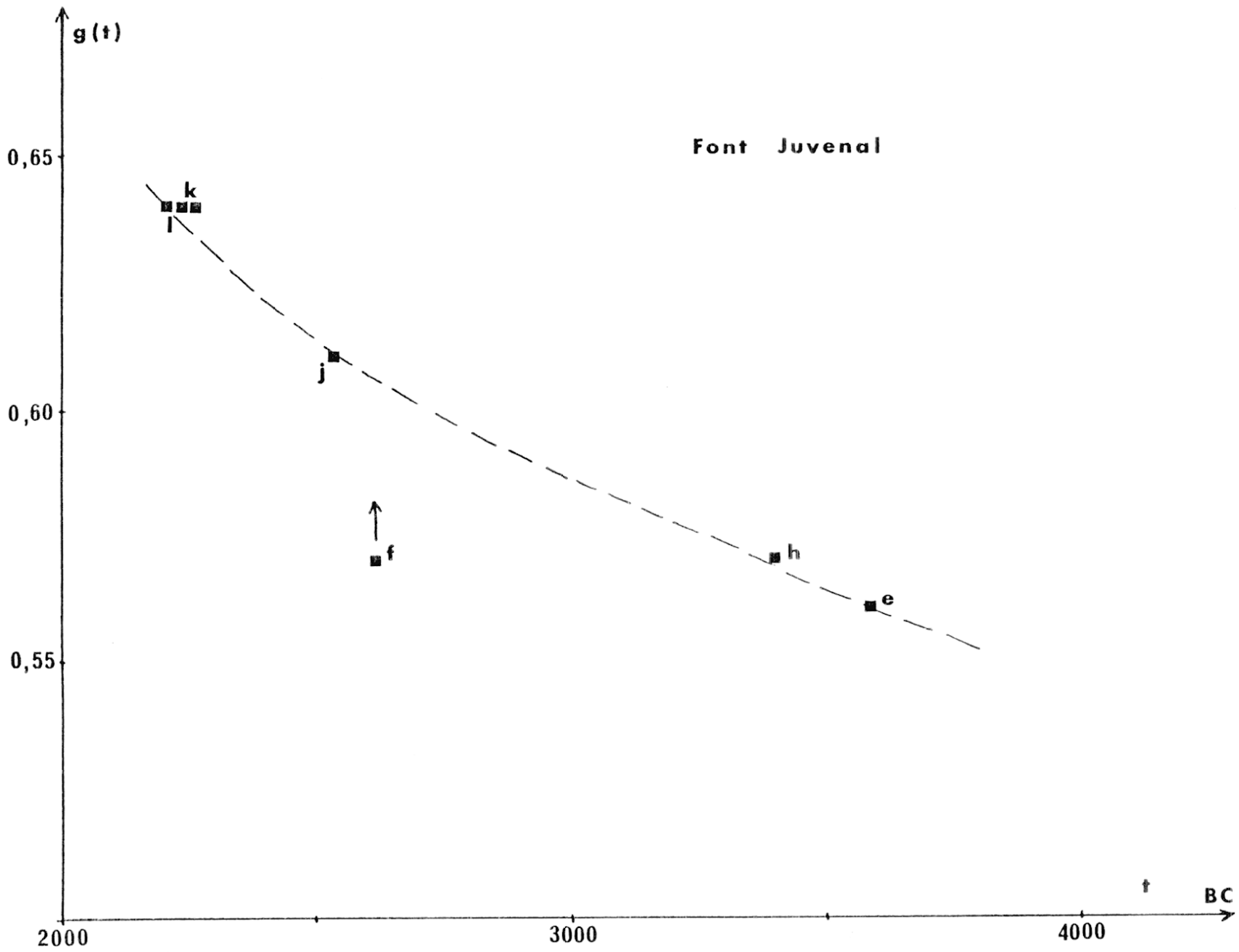
- une première série de céramiques ou briques datés , provenant de fouilles archéologiques bretonnes , surtout de la période historique , procurés soit par le Centre Régional Archéologique d'Alet , soit par Messieurs BRIARD et GIOT, préhistoriens du C.N.R.S à l'Université de Rennes.
- une deuxième série, constituée de céramiques préhistoriques , procurée par Monsieur J.GUILAINE . Ces céramiques généralement retrouvées dans des stratigraphies précises étaient indirectement datées par le radiocarbone.
- une troisième série de céramiques du Nord du Chili , datées par des données archéologiques ou par la méthode classique de thermoluminescence.

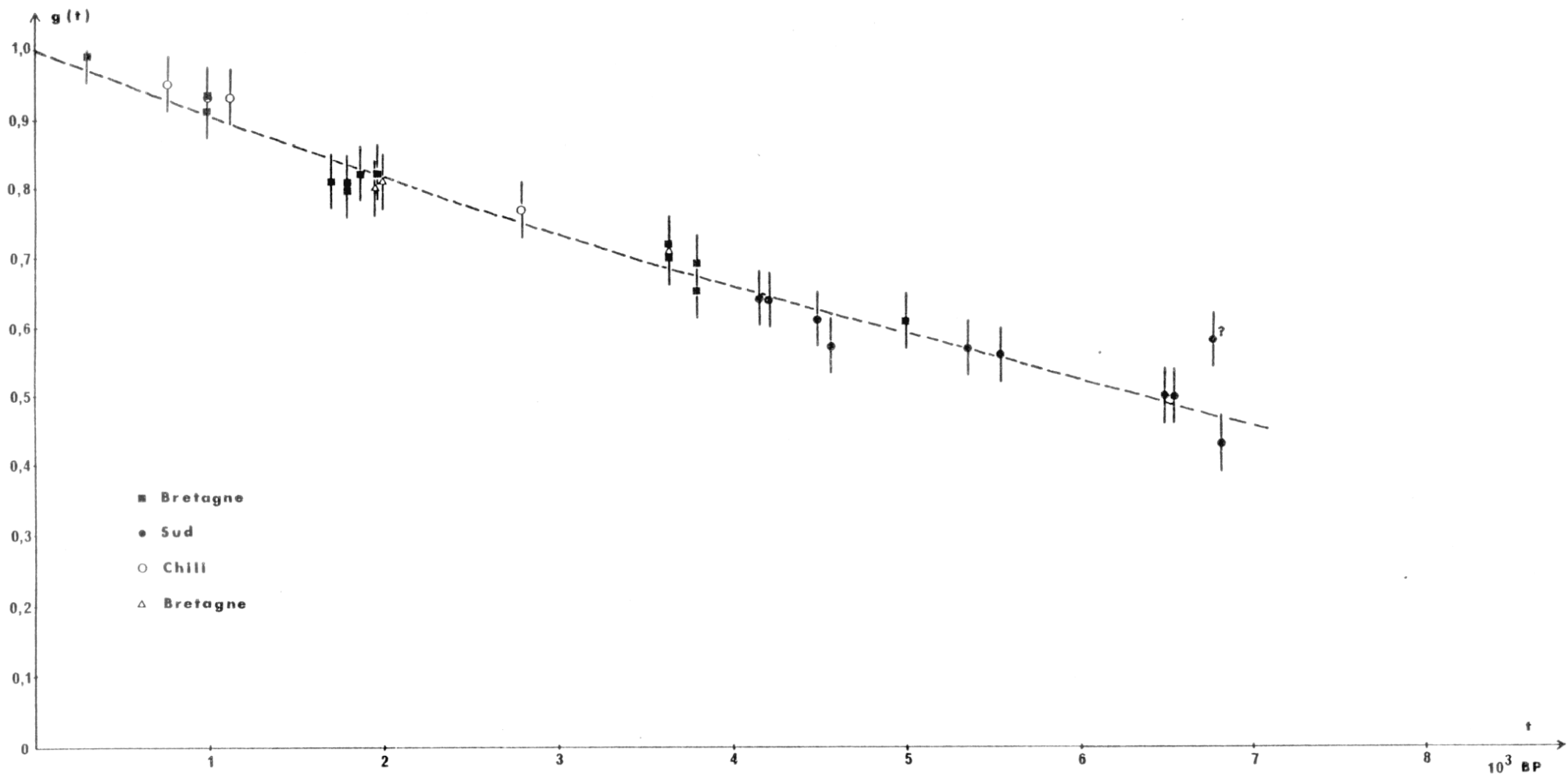
Les échantillons de la première série ont été préparés selon la technique préconisée par ZIMMERMAN (10) pour les grains fins . Pour chaque échantillon , douze disques identiques , d'un diamètre de 10 mm, étaient préparés simultanément par sédimentation lente dans l'acétone . Le montage de mesure de la thermoluminescence était un prototype élaboré par L.LANGQUET et A.ROMAN (1) . La dose artificielle unitaire était obtenue par une irradiation de 20 minutes à l'aide d'une source Sr 90 de 12 mCi , étalonnée ; soit une dose unitaire de 2100 rads. Certaines déterminations du facteur $g(t)$ ont été répétées et confirmées par R.GONZALES (2).

La deuxième série d'échantillons a été étudiée sur le montage mis en service par R.GONZALES (2) à l'Université de Rennes , celui-ci étant une reproduction autorisée de celui monté par G.VALLADAS et R.BROU (11) . Une amélioration de la préparation des échantillons , obtenue par C.ASENJO DE ROMAN (3) , consiste en un traitement à chaud avec de l'acide chlorhydrique ; la concentration en quartz des échantillons s'en trouve accrue , et aussi les émissions de la thermoluminescence . L'irradiation artificielle β était obtenue avec la même source radioactive que pour la première série.

La troisième série a été constituée de grains de quartz extraits des poteries chiliennes . Les mesures ont été effectuées sur un montage original construit à l'Université Catholique du Chili à SANTIAGO . Les échantillons ont été traités selon la technique des inclusions (12) . L'irradiation artificielle a été obtenue à partir d'une source Sr 90 de 10 mCi , avec une dose unitaire de 85 rad/min . Les datations D.A.T.E des céramiques étudiées ont parfois été comparées aux datations par thermoluminescence , obtenues par la méthode classique.

La première série de céramiques , armoricaines , étudiées plus particulièrement par A.ROMAN , n'a pas fait l'objet de la correction de supralinéarité ; mais lors de vérifications faites par R.GONZALES , il s'est avéré que cette correction n'était pas absolument nécessaire sur la plupart des échantillons . Par contre , avec la deuxième série, venant du Sud de la France , la supralinéarité a été systématiquement étudiée et déterminée ; des études plus détaillées ont été opérées sur des échantillons de cette seconde série de po-





teries préhistoriques.

Ainsi , dans l'échantillonnage des céramiques procurées par Monsieur J.GUILAINE et retrouvées dans le Sud de la France , une série provenant d'une fouille stratigraphique de l'abri de Font-Juvénal (I3) a fait l'objet d'études fines . Cette série de Font-Juvénal s'étale chronologiquement du Néolithique Moyen au Néolithique Final ; l'ensemble de ces échantillons retrouvés en fouille présentait en particulier un intérêt pour l'influence de la température de conservation sur la valeur du facteur $g(t)$. En effet, la durée de vie moyenne τ dépend théoriquement de cette température T selon la loi (5)

$$\frac{1}{\tau} = s.e^{-W/kT}$$

où W est la profondeur énergétique du piège considéré , sa la fréquence des tentatives de sortie des pièges et k la constante de BOLTZMANN . Autant les études avaient été initialement orientées vers des ensembles provenant de régions , même de pays , différents , où les températures moyennes de conservation auraient été différentes (Sud de la France , Bretagne , Chili , Pérou) , autant la série de FONT-JUVENAL était intéressante puisque les conditions de conservation ont été communes pour les échantillons durant au moins 2000 ans.

On a ainsi déterminé les valeurs de $g(t)$, selon la formulation (7) , pour sept échantillons prélevés dans les couches successives 11,10,6,5,3 et C2b de l'Abri de FONT-JUVENAL (I3) . Ces multiples déterminations ont permis de tracer une courbe partielle d'étalonnage (Cf graphique) . Seul , l'échantillon "f" , daté stratigraphiquement d'entre 2850 et 2540 BC , est manifestement hors de la courbe monotone régulière qui peut passer par tous les autres points . Cet écart permet de se rendre compte de l'incertitude sur la mesure de $g(t)$. En effet pour ramener ce point aberrant sur la courbe tracé en pointillé , il faut admettre une erreur relative de 7 % environ , pour cette période.

Sur quatre des échantillons chiliens , des datations par thermoluminescence , basées sur les méthodes du plateau ou additive , ont confirmé accessoirement les données archéologiques et ont donc contribué à caler les valeurs de $g(t)$ trouvées par ailleurs avec la méthode D.A.T.E. Pour déterminer la dose annuelle , indispensable dans la datation classique par thermoluminescence , les concentrations des traces radioactives de U,Th et K , présents dans l'argile et le sol environnant les céramiques , ont été déterminées dans le Département d'Analyse par Activation Neutronique du Réacteur Nucléaire de "LA REINA" à SANTIAGO . La contribution de chacun des éléments à la dose annuelle a été calculée en utilisant le mode préconisé par M.J.AITKEN (4) . On a ainsi obtenu les valeurs suivantes :

	$g(t)$	Datation TL Age moyen	Datation Archéologique
IFUC-2	0,93	1000	1000-1100
IFUC-3	0,93	1140	1075-1150
IFUC-5	0,95	770	800-800
IFUC	0,77	2760	2800

On a vainement recherché à distinguer l'influence de la température de conservation T à travers les origines des céramiques utilisées dans cet étalonnage. A présent , avec la précision atteinte , aucun effet de cette température n'a pu être mis en évidence. Aussi , à partir de toutes les mesures effectuées tant en France qu'au Chili une courbe d'étalonnage de la méthode D.A.T.E a pu être établie (Cf courbe) . La deuxième série étant initialement datée par le radiocarbone , les dates BP ont été conservées pour l'établir . Il en découle que toute utilisation ultérieure de cette courbe d'étalonnage débouche sur des dates BP , faisant donc abstraction de toute calibration. Ainsi cette courbe fournit des dates plus facilement comparables aux datations radiocarbone non calibrées.

Conclusions.

En tenant compte de la calibration , ramenant l'échelle du temps BP à l'échelle du temps réel , on a calculé une valeur relativement précise de la durée de vie moyenne τ , pour le pic à 325°C du quartz : 4500 ans.

La courbe d'étalonnage présentée ici , soit $g(t)$ en fonction du temps BP , a un caractère général , on peut même dire universel , dans les limites actuelles de la précision atteinte à ce jour . Cette courbe a déjà été utilisée pour la datation de céramiques , historiques et préhistoriques , françaises ou étrangères .

La méthode D.A.T.E repose sur un processus cristallin , interne au quartz ; elle est simple à mettre en oeuvre puisque elle ne nécessite pas de mesures de la dose annuelle , partie la plus délicate de la datation classique par thermoluminescence. Elle constitue aussi une nouvelle méthode d'identification des faux . En effet , même si on a fait subir une irradiation artificielle frauduleuse à une production céramique récente en vue de tromper les experts , le processus de vidage-remplissage du pic à 325°C n'a pu être falsifié et reste un test complémentaire de la détection des faux.

Cette simplicité d'utilisation et de mise en oeuvre a une contrepartie : celle d'une datation relative se référant indirectement à d'autres datations. On ne peut en effet utiliser la courbe d'étalonnage que si elle a pu être construite pour la période intéressante . L'extrapolation de cette courbe d'étalonnage selon la loi mathématique établie plus avant , tout en restant possible , reste limitée.

Le Laboratoire d'Archéométrie de l'Université de Rennes a exploré cette voie de datation relative et continuera avec l'idée d'utiliser cette technique à des problèmes de datations en série combinées à des déterminations archéomagnétiques.

Notes.

- (1) A.ROMAN , Thèse IIIème cycle , Rennes , 1975
- (2) R.GONZALES , Contribution théorique et expérimentale à l'étude de la méthode D.A.T.E , D.E.S,Rennes,1976
- (3) C.ASENJO DE ROMAN,Contribution à l'étude de la méthode de datation relative D.A.T.E , D.E.S , Rennes,1979
- (4) M.J.AITKEN , Physics and Archaeology , Clarendon Press , 1974,Chap. 3
- (5) D.CURIE,Luminescence Cristalline , Dunod,Paris,1960
- (6) L.LANGOUET,Lois de déclin pour des mécanismes monomoléculaires , Bull. Sc. Soc. Bret. 1965,t. 39 ,p. II-16
- (7) P.LAMARQUE,Thèse IIIème cycle , Bordeaux , 1975
- (8) S.A.FLEMMING,Dating in Archaeology , J.M.DENT et Sons,London , 1976,p. I23-I25.
- (9) A.G.WINTLE , Thermal quenching of TL in quartz , Geophys.J.R.Astr. Soc. , 1975,41, I07-II3
- (10) D.W.ZIMMERMAN , Archaeometry , 1961,I3,I,29-52
- (11) G.VALLADAS et R.BROU , Nuclear Instruments and Methods,1975,I27,I09-II3
- (12) S.A.FLEMMING , Archaeometry , I2,2,I33-I45
- (13) J.GUILAINE,J.VAQUER,J.GASCO et P.BARRIE , L'abri de Font-Juvénal , Carcassone,1976, I6 p.