

CBPF-NF-003/83

LES DATATIONS ARCHEOLOGIQUES PAR
THERMOLUMINESCENCE: UNE REVUE

G. Poupeau

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - CBPF/CNPq
Rua Xavier Sigaud, 150
22290 - Rio de Janeiro, RJ - Brasil

A paraître dans Revista de Arqueologia (Brésil)

LES DATATIONS ARCHEOLOGIQUES PAR THERMOLUMINESCENCE: UNE REVUE

G. Poupeau

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - CBPF/CNPq
Rua Xavier Sigaud, 150
22290 - Rio de Janeiro, Brésil

Janvier 1983

1. INTRODUCTION

La thermoluminescence (TL) consiste en l'émission de lumière d'un corps solide chauffé à des températures modérées. Une des plus anciennes descriptions de ce phénomène est certainement celle de Sir Robert Boyle (1663), à partir d'observations réalisées sur des diamants naturels. Ce que Robert Boyle ignorait, c'est que cette émission lumineuse n'est possible que pour des minéraux préalablement exposés à des radiations ionisantes. De fait, tout environnement naturel est constamment exposé à de telles radiations dont l'origine se trouve à la fois dans la radioactivité naturelle et la fraction du rayonnement cosmique qui atteint la surface de la terre. On doit donc s'attendre à ce que de nombreux minéraux présentent une thermoluminescence naturelle.

Bien que la thermoluminescence ait fait l'objet de nombreux travaux depuis l'époque de Robert Boyle, en particulier pour la dosimétrie des radiations ionisantes, son application à l'archéologie est relativement récente. C'est le physicien Farrington Daniels qui le premier, en 1953, suggéra que la thermoluminescence pourrait être utilisée pour la datation de matériaux géologiques et archéologiques. Il fallut près de vingt ans de travaux menés dans divers laboratoires, en particulier ceux du Research Laboratory for Archaeology and the History of Art, dirigé à l'Université d'Oxford par Martin Aitken, pour parvenir à mettre au point la datation par thermoluminescence.

Le démarrage de cette méthode est marqué par les deux thèses de doctorat de Fleming (1969) et Zimmermann (1970) à Oxford, qui proposèrent deux approches différentes pour la datation des céramiques archéologiques. Au cours des années 70, les datations par TL ont fait de nombreux progrès, avec d'une part divers raffinements apportés dans le traitement des céramiques, et d'autre part une extension importante à différents types de roches et de sédiments: sols et pierres de foyer, roches volcaniques, dépôts calcaires récents, etc.

Actuellement, il est possible de dater par thermoluminescence une grande variété d'objets est donc d'évènements, archéologiques aussi bien que géologiques. Sur de nombreux plans, les datations par TL apparaissent comme complémentaires de la géochronologie au radiocarbone. En particulier, elles présentent sur cette dernière l'avantage de pouvoir souvent couvrir une période de temps significativement supérieure, puisque certains minéraux permettraient de dater l'ensemble du quaternaire. C'est sans doute cette grande versatilité de la méthode qui peut expliquer le nombre croissant des laboratoires qui s'intéressent à ses applications géochronologiques. Ainsi, un recensement récent (1981) dénombrait 46 laboratoires dans le monde utilisant la TL à des fins de datations archéologiques.

Le but de cet article est de présenter une revue des applications de la TL à l'archéologie. Cette revue sera précédée d'un rappel des principes physiques utilisés dans cette méthode. Le lecteur intéressé essentiellement par les applications pourra cependant passer sans dommage au chapitre 3 et suivants.

2. DATATIONS PAR THERMOLUMINESCENCE

2.1- Le phénomène

Après une exposition à proximité d'une source radioactive, un certain nombre de minéraux naturels émettent de la lumière lorsqu'ils sont chauffés. Ils ne produisent cependant plus de lumière si on les chauffe une seconde fois. Exposés de nouveau à une source radioactive, ils sont encore capables d'émettre de la lumière si on les porte à une température suffisante (Figure 1). C'est ce phénomène d'émission lumineuse après une irradiation par des rayonnements ionisants que l'on appelle thermoluminescence.

Tout échantillon archéologique enfoui dans un sol est soumis à un flux de particules ionisantes: rayonnements α , β et γ du thorium, de l'uranium et de leurs descendants, rayonnements β et γ du potassium et du rubidium, auxquels s'ajoute un composant mineur dû au rayonnement cosmique. L'effet de ces rayonnements dans les minéraux est d'ioniser les atomes, c'est à dire d'en arracher les électrons périphériques. Après le passage d'une particule ionisante, la plupart des électrons retombent sur leur atomes, mais une très faible fraction d'entre eux, inférieure sans doute à 1 pour 1000, va être capturée par des défauts du réseau cristallin, d'où ils ne peuvent plus sortir sans un apport d'énergie. Pour certains de ces défauts ou "pièges" (irrégularités du réseau cristallin, présence d'impuretés chimiques, voir par exemple, Quéré,

1969), le calcul montre que, à des températures ambiantes inférieures à 30°C, les électrons peuvent être stables et demeurer "prisonniers" pour des durées supérieures, et parfois très largement, au million d'années. Avec le temps, le nombre d'électrons piégés sous l'influence de la radioactivité naturelle, va donc augmenter régulièrement, et ceci jusqu'à une valeur de saturation. En effet, le nombre de pièges disponibles dans un minéral donné n'est pas infini (voir ci-dessous 2.3). Si l'on fournit à ces électrons piégés une énergie d'agitation thermique suffisante par chauffage, ils vont se libérer pour revenir sur des atomes ayant perdu un électron. Eventuellement, dans ce processus, certains centres luminogènes (Schulman, 1969) peuvent être excités et des photons lumineux émis, la quantité totale de lumière ainsi produite étant fonction de la dose d'irradiation reçue.

Pour un matériel archéologique ou géologique, la température suffisante pour vider les pièges de leurs électrons varie d'environ 300 à 600°C selon la nature des minéraux. En d'autres termes, le passage au feu d'une céramique ou d'un artefact lithique à ces températures va purger toute la thermoluminescence géologique déjà acquise de ces échantillons (Fig.1). La thermoluminescence naturelle que l'on peut actuellement mesurer se réfère donc à la dose totale d'irradiation subie depuis le dernier réchauffement à 400°C d'une céramique ou d'un artefact lithique. Si l'on connaît par ailleurs la dose annuelle d'irradiation subie par un échantillon in situ dans le sol, on peut en déduire l'âge t du dernier réchauffement

suivant l'équation:

$$t = \frac{\text{Dose Naturelle}}{\text{Dose Annuelle}} \quad (1)$$

où t est exprimé en années et les doses d'irradiation en rads (ou quantité d'énergie déposée par gramme d'échantillon par la radioactivité naturelle et le rayonnement cosmique).

Ceci implique donc pour la détermination de l'âge TL d'un échantillon, la mesure d'une part de sa thermoluminescence naturelle, et d'autre part, de sa radioactivité ainsi que de la radioactivité de son environnement, au site de prélèvement, a fin de calculer la dose annuelle de radiations auxquelles il a été exposé.

2.2- Datations par TL

Il existe de nombreux articles de revue décrivant en détail les divers aspects théoriques et expérimentaux de la datation par TL des matériaux archéologiques. Le lecteur qui voudrait approfondir le bref résumé qui suit pourra consulter les livres et articles suivants: Aitken (1974, 1978a, 1978c, 1981), Aitken et Fleming (1972), Fleming (1976). Nous avons donc, dans ce qui suit, limité volontairement les références.

2.2.1- Détermination de la dose naturelle.

La détermination de la dose naturelle de l'équation 1 s'obtient au moyen d'une série de mesures en TL. La lecture de

cette TL s'effectue avec un appareil dont le principe est schématisé dans la figure 2. La figure 3a présente un spectre typique de TL de quartz naturel. Les courbes TLN et TLA de cette figure se réfèrent respectivement aux courbes de thermoluminescence naturelle (TLN) et artificielle (TLA), cette dernière obtenue à la suite d'une irradiation β effectuée après avoir "vidé" la TLN par chauffage jusque vers 500°C . On constate sur cette figure que la TLN n'est émise qu'à partir d'une certaine température (qui peut varier de 250°C à 300°C selon les échantillons), tandis que la TLA apparaît très rapidement lors du chauffage et présente un pic supplémentaire à 110°C . On observe également qu'à plus haute température existent 1 et parfois 2 autres pics présents à la fois dans la TLN et dans la TLA. L'absence de lumière émise à basse température dans la TLN résulte de ce qu'elle correspond à des pièges de faible "profondeur", d'où les électrons s'échappent rapidement, même à la température ambiante, par simple agitation thermique. Ainsi, si l'on attend plusieurs jours après une irradiation β , pour lire la TLA, le pic de 110°C aura déjà complètement disparu.

En général, c'est la lumière des pics de haute température qui est utilisée pour les datations en TL, car elle seule se réfère à des électrons piégés de façon stable. Cependant, le pic de 110°C du quartz possède une propriété remarquable, l'effet de prédose, qui fait que son intensité dans la TLA est proportionnelle à l'âge de l'échantillon. On utilise cet accroissement de la sensibilité du pic de 110°C du quartz avec l'âge dans la méthode de datation dite de la prédose, proposée par Fleming en 1973. Pour des raisons qui tiennent aux carac-

téristiques de saturation des pièges, on ne peut utiliser le pic de 110°C du quartz que pour des échantillons âgés de moins de 1000 ans environ. Pour l'exposé de cette méthode particulière, dont les applications ont été jusqu'à présent limitées aux céramiques récentes, nous renvoyons à Aitken (1974) et Fleming (1976). Nous nous limiterons donc, dans ce qui suit, à décrire le principe des méthodes de datation les plus générales, qui utilisent les pics de haute température ($\geq 250^\circ\text{C}$) et qui permettent de dater des échantillon âgés de plus de quelques centaines d'années, c'est à dire dont la TLN commence à sortir du bruit de fond de l'appareil de lecture de la figure 2. La limite supérieure de datation, sera précisée par la suite dans la revue des chapitres 3 à 8 pour chaque type de matériel.

En principe donc la simple mesure de la hauteur d'un pic de TLN et d'un pic de la TLA de haute température devrait suffire à déterminer la dose naturelle d'irradiation de l'équation (1), selon la relation:

$$\frac{\text{Hauteur du pic de TLN}}{\text{Hauteur du pic de TLA}} = \frac{\text{Dose Naturelle}}{\text{Dose de laboratoire}} \quad (2)$$

dans laquelle seule la dose naturelle est inconnue.

On ne pratique en réalité pas ainsi car on doit s'assurer avant tout (i) que la TLN de haute température d'un échantillon est réellement aussi stable qu'elle devrait l'être, (ii) que la TL de cet échantillon n'est pas saturée.

Le premier test de stabilité de la TL naturelle d'un échantillon est le test du plateau (Aitken, 1974). Il consiste, a-

près avoir obtenu un spectre de TLN et un spectre de TLA, à étudier l'évolution avec la température du rapport TLN/TLA. En principe, ce rapport, qui part de zéro pour des températures $< 200^{\circ}\text{C}$, augmente peu à peu ensuite jusqu'à une valeur constante à des températures $\gtrsim 300^{\circ}\text{C}$ (Fig. 3b). L'existence d'un palier à haute température garantit en principe que les électrons piégés sont retenus quantitativement dans les défauts des minéraux et que la TL émise à ces températures peut légitimement être utilisée en datation. Il arrive cependant que ce rapport croisse continuellement jusqu'aux températures d'observation les plus élevées: on a affaire dans ce cas à un échantillon présentant un phénomène de déclin important, de nature non thermique, de la TLN, c'est à dire où les électrons ne sont pas suffisamment stables dans leurs pièges pour permettre une datation. Des échantillons qui présentent cette absence de plateau ("anomalous fading") sont à rejeter immédiatement car ils produiraient des âges TL trop, et parfois beaucoup trop, jeunes. Nous verrons plus loin que, si l'obtention d'un plateau est une condition nécessaire pour dater un échantillon en TL, ce n'est pas une condition suffisante.

On doit ensuite vérifier que l'échantillon n'est pas parvenu à saturation. En effet, le nombre des pièges à électrons disponibles dans un minéral n'est pas infini, et en conséquence, au-delà d'une certaine dose d'irradiation, on ne peut plus accroître le nombre d'électrons piégés. Avec le temps, la TL géologique d'un échantillon atteint donc un niveau limite de saturation (Fig. 4). Afin de tenir compte directement de cet effet, on procède à la mesure de la dose naturelle par la méthode des doses additives. On étudie ainsi l'évolution de l'in

tensité du signal TLN de haute température lorsqu'on expose des aliquotes de l'échantillon à dater à des doses croissantes d'irradiation en laboratoire avant toute lecture de la TL. On peut ainsi, comme on le voit sur la figure 5, (i) vérifier la linéarité de la croissance de la courbe TLN + dose β avec la dose, (ii) obtenir par extrapolation une dose-équivalente β à la dose naturelle, ainsi dénommée car elle est obtenue généralement par irradiations successives par une source radioactive β (au contraire la TLN est le résultat d'actions plus complexes incluant rayonnements α , β et γ , d'où certaines complications, voir ci-dessous... 2.3, dans l'évaluation de la dose annuelle).

On doit enfin tenir compte d'un éventuel effet de supralinéarité comme décrit sur la figure 4b. Dans ce cas, on ne peut plus se contenter d'une simple extrapolation linéaire (courbe TLN + dose, figure 5) pour déterminer la dose naturelle d'un échantillon. On étudie donc également la croissance avec la dose de la TLA (figure 5) dont, par extrapolation, on peut extraire une correction de supralinéarité. La dose naturelle de l'équation 1 s'obtient alors en sommant les contributions de la dose-équivalente β et, si nécessaire, de la correction de supralinéarité, en tenant compte de la contribution relative des particules α , β et γ (voir 2.3). La procédure décrite dans la figure 5, qui suppose que les simulations pratiquées en laboratoire, où les échantillons sont irradiés par des flux de rayonnement plusieurs millions de fois plus intenses que dans la nature peuvent reproduire les processus naturels, est justifiée en pratique par la concordance entre les âges TL et les âges historiques ou ^{14}C d'échan

tillons bien connus étudiés dans une série de programmes tests (voir par ex. Fleming 1969, 1970, 1973,; ZIMMERMAN, 1971, etc...).

2.2.2- Détermination de la dose annuelle

La détermination de la dose annuelle d'irradiation subie par un échantillon peut se faire de différentes façons. Classiquement, pour un objet archéologique, (céramique, artefact brûlé), on peut atteindre la dose annuelle par la mesure de sa radioactivité propre et de celle du sol dans lequel il était enfoui. On en déduit par le calcul, à l'aide de tables standards, la dose d'irradiation annuelle subie par l'échantillon, en tenant compte de facteurs additionnels: degré d'équilibre des séries de l'uranium, et du thorium, degré d'hygrométrie du sol et de l'échantillon, etc...

L'expérience a montré que pour un fragment de céramique, la dose annuelle pouvait varier entre environ 0,1 et 1 rad. La table 1, extraite de Aitken, (1981) présente les différentes composantes de cette dose pour une potterie et un sol typiques, renferment 2.8ppm d'uranium, 10ppm de thorium et 2% de potassium. Dans ce cas, la dose annuelle est évaluée à 588 mrad (dernière ligne, dernière colonne de la table), pour un échantillon sec et où les séries de l'uranium et du thorium sont à l'équilibre. La table 1 montre les modifications de la dose annuelle lorsque des pertes par diffusion des termes gazeux de ces séries (radon 222, thoron) se produisent. Une perte totale de radon 222 et de ses produits-fils réduit ainsi la dose annuelle de 558 à 439 mrad. Ne pas tenir compte de cet effet dans une potterie d'où le radon 222 s'est continuelle-

ment échappé aboutirait à sous-évaluer son âge d'environ 25%, ce qui est considérable. Il est donc important d'évaluer, autant que possible, l'état de déséquilibre des séries de l'uranium et du thorium pour l'évaluation de la dose annuelle.

On trouvera dans Aitken et Fleming (1972) et Aitken (1978a) des exposés critiques de méthodes alternatives à celle décrite ci-dessus pour l'évaluation des doses annuelles combinant mesures de radioactivité et mesures de TL.

2.3- Problèmes annexes

Une fois en possession de la dose naturelle (ou plus exactement de cette dose exprimée en équivalent-irradiation β) et de la dose annuelle comme décrit ci-dessus, il semble légitime de calculer un âge à partir de la relation (1). Il est encore nécessaire auparavant de déterminer quelques autres paramètres et de prendre des précautions supplémentaires.

1. En ce qui concerne l'échantillon lui-même, le test du plateau permet de vérifier non seulement l'absence d'effacement notable de la TL naturelle mais aussi l'absence de lumière parasite, c'est à dire non-induite par irradiation, comme chemioluminescence et triboluminescence. La chemioluminescence est la TL induite par des réactions chimiques qui se produisent pendant le chauffage de l'échantillon. Elle accompagne toujours la TLN dans les échantillons qui renferment de la matière organique, et oblige donc à des purifications chimiques avant lecture de la TL (voir 8 ci-dessous pour les os). La triboluminescence est une lumière induite lors de la préparation de l'

échantillon. Habituellement, la lecture de la TL se fait sur de petites quantités (\lesssim 5 mg) de poudres obtenues par broyage. Ce broyage entraîne des contraintes mécaniques au niveau de la surface des grains, qui se manifestent au moment de la lecture de la TL par une émission de lumière parasite au-delà de 300°C. On peut éliminer, l'effet de triboluminescence soit en évitant de travailler avec des poudres de granulométrie très fine (la tribo-TL est un effet de surface et sera donc réduite dans ce cas) ou/et une dissolution chimique superficielle des grains, soit en remplaçant la poudre par une lamelle fine (d'épaisseur \lesssim 350 microns) taillée dans l'échantillon à dater.

Le test du plateau, comme signalé plus haut (2.2.1), n'est pas suffisant pour démontrer la stabilité de la TLN de haute température. On connaît des minéraux (Wintle, 1973) dont la TLA de haute température (\gtrsim 300°C) produite au laboratoire, décroît considérablement dans les quelques jours qui suivent l'irradiation même si l'échantillon présente un "bon" plateau. On doit donc compléter chaque datation par un test de stabilité de la TL induite. L'expérience ayant montré que cette décroissance non-thermique de la TL se produisait surtout dans les premières semaines après l'irradiation, il suffit d'étudier la stabilité de la TL induite au laboratoire sur une durée de 1 à 2 mois pour éliminer les échantillons susceptibles de donner un âge TL trop jeune.

2. Les différents types de particules ionisantes produites par la radioactivité naturelle n'ont pas toutes la même efficacité pour produire de la TL. Les particules α , en raison de

leur pouvoir d'ionisation très supérieur à celui des rayonnements α et γ , sont beaucoup moins efficaces que ceux-ci pour produire de la TL (Zimmermann, 1972). On doit donc, pour chaque échantillon, déterminer un facteur k (Zimmermann, 1971; facteur a de Aitken, 1978a), qui exprime l'efficacité relative des α par rapport aux β pour produire de la TL. La forme définitive de l'équation d'âge s'inscrit donc selon:

$$t = \frac{(\text{Dose naturelle})(\text{equivalent-}\beta)}{kD_{\alpha} + D_{\beta} + D_{\gamma} + D_{\text{CR}}} \quad (3)$$

où les doses sont toutes exprimées en equivalent- β , avec D_{α} , D_{β} , D_{γ} et D_{CR} respectivement doses annuelles α, β, γ et due au rayonnement cosmique, exprimées en rads.

3. Un dernier facteur doit être connu, ou ses limites estimées, pour l'application de l'équation (3). C'est la teneur en eau de l'échantillon et du sol environnant. L'eau est un absorbant efficace des rayonnements γ et par suite la présence ou l'absence d'eau dans un sol affecte le calcul de D_{γ} (équation 3), lorsque ce facteur est déduit des données de la table 1, calculée pour un matériau sec. Lorsque les facteurs $(D_{\gamma} + D_{\text{CR}})$ sont estimés directement à l'aide de dosimètres enfouis pendant plusieurs mois à un an au site à dater, le facteur hygrométrique est automatiquement corrigé. Cependant, même là, il ne s'agit que d'une mesure "instantanée", et on n'est pas toujours en mesure de faire des hypothèses raisonnables sur les variations de teneur en eau pour des durées archéologiques. Ceci peut introduire, pour les échantillons où D_{γ} représente une frac

tion importante de la dose annuelle (échantillons pauvres en éléments radioactifs tels que quartzites ou silex, un facteur d'incertitude qui peut être important.

3. CERAMIQUES

Dans les sites néolithiques, les céramiques comptent parmi les plus abondants des matériaux archéologiques. Ce sont souvent de bons marqueurs culturels et leur datation directe est donc de la plus grande importance. La fabrication d'une céramique à partir d'un matériau à matrice fine argileuse nécessite une cuisson à une température d'au moins 500°C (et pouvant aller jusque au-delà de 800°C). Dans ces conditions, la TL géologique du matériau des céramiques est éliminée (Fig. 1) et la TL naturelle maintenant observable dans un fragment de poterie permet de dater soit le moment de sa fabrication, soit celui de son dernier réchauffement au-delà de 500°C dans un foyer archéologique.

On dispose aujourd'hui d'au moins 5 techniques différentes de datation par TL des céramiques. On peut ainsi utiliser soit les grains fins de dimensions inférieures à 10 microns de la matrice des céramiques (Zimmermann, 1970), soit les gros cristaux de quartz (Fleming 1969, 1970) ou de feldspath (Mejdahl, 1972) de diamètre supérieur à 100 microns qui sont pratiquement toujours présents dans ce matériel. Ces deux méthodes de datation, par grains fins ou inclusions minérales plus grossières permettent d'obtenir une exactitude sur l'âge d'une céramique de $\pm 6\%$ à $\pm 10\%$. Elles s'appliquent à toute céramique âgée de plus de 200 à 1000 ans environ, cette limite inférieure

étant fonction de plusieurs paramètres, en particulier la teneur en éléments radioactifs de chaque céramique. Pour les céramiques récentes, la méthode dite de la pré-dose (Fleming, 1973) permet de couvrir les objets datant de moins d'un millier d'années avec une exactitude sur l'âge de $\pm 6\%$. Contrairement aux deux méthodes précédentes, qui utilisent les pics de haute température des minéraux (voir 2.2), la méthode de la pré-dose est basée sur l'augmentation de la sensibilité du pic du quartz à 110°C sous l'effet combiné de la dose naturelle et d'un chauffage au laboratoire à 500°C . On trouvera des exposés critiques de ces méthodes dans les livres de Aitken (1974) et Fleming (1976).

Il est donc toujours possible, en principe, de dater en TL une céramique, quel que soit son âge, avec une précision comprise entre ± 6 et $\pm 10\%$ selon les échantillons. Pour des raisons pratiques, il est douteux que l'on puisse parvenir à mieux que $\pm 5\%$ pour un échantillon individuel. Par contre, si un niveau archéologique comporte plusieurs fragments de céramique, on peut, en datant au minimum 5 à 6 fragments, améliorer la précision sur l'âge de ce niveau jusque vers $\pm 5\%$. On ne peut toutefois arriver à ce degré de précision que si les échantillons ont été prélevés dans le site archéologique suivant certaines précautions, décrites en annexe 1.

Il existe, dans de nombreuses collections scientifiques ou privées, un grand nombre de céramiques ou de fragments de potteries dont il serait important de connaître l'âge. La thermoluminescence permet ici encore d'obtenir des informations d'ordre temporel. En effet, une céramique peut être datée par TL,

mais avec une précision moindre, lorsque l'on ignore le contexte d'où elle a été prélevée. Cette perte de précision vient de ce que l'on ne connaît plus ni la radioactivité ni le degré d'hygrométrie du sol d'enfouissement, et que par conséquent on ne peut plus évaluer leur effet sur l'âge (voir ci-dessus 2.3). Dans ce cas, on ne peut plus obtenir qu'une précision de l'ordre de $\pm 20\%$ avec la méthode des grains fins, et plus faible encore avec celle des inclusions minérales. Mais là où ces deux méthodes peuvent être appliquées conjointement, on parvient à estimer l'âge d'une céramique indépendamment de son contexte d'échantillonnage, avec une précision qui peut atteindre, $\pm 10\%$, par la méthode dite de soustraction (Fleming et Stoneham, 1973).

Une dernière méthode permet de dater les céramiques provenant d'un contexte inconnu, celle des inclusions de zircons (Sutton et Zimmermann, 1976; Zimmermann, 1979). En effet, ce minéral est très riche en uranium et thorium, et sa thermoluminescence naturelle est pratiquement auto-activée, le milieu environnant, y compris la céramique elle-même, n'intervenant que de façon négligeable. Alors que les autres méthodes de datation des céramiques nécessitent en général l'utilisation de plusieurs centaines à plusieurs milliers de cristaux, la méthode des zircons est remarquable en ce qu'elle s'applique à des cristaux individuels, en raison de la valeur élevée de leur TLN. Un seul cristal de l'ordre de 0,1 millimètre est suffisant pour obtenir une datation (Sutton et Zimmermann, 1979). Cette méthode semble capable de produire des âges avec une précision de $\pm 6-7\%$ (Zimmermann, 1979) mais présente comme désavantage l'utilisation de plus grandes quantités de matériel

(le zircon est un minéral rare) et surtout est limitée en exactitude du fait d'une tendance de ce minéral à une perte non-thermique de thermoluminescence ("anomalous fading", (voir 2.3) et donc d'une propension à produire des âges trop jeunes. Il reste que selon Zimmermann, cette approche pourrait au minimum donner des résultats intéressants dans le domaine de l'authentification des oeuvres d'art (voir plus bas).

Pour les sites récents, la datation des céramiques par TL apparaît comme optionnelle de la chronologie au radiocarbone, lorsque aucun échantillon n'est disponible pour cette dernière méthode. Pour les sites où les deux approches sont possibles, on doit se souvenir que l'avantage de la datation d'une céramique est qu'il s'agit d'un objet culturel, souvent utilisé comme base d'une chronologie relative. Au contraire, la question de l'association d'un âge au carbone 14 avec celui d'un site archéologique n'est pas toujours simple. Ainsi, la datation d'un fragment de bois associé à un foyer archéologique se réfère non au moment de sa combustion à mais l'époque où ce bois était vivant, époque qui peut être antérieure de plusieurs centaines d'années à celle du site où il a été recueilli. De plus, l'évaluation de la contamination in situ d'un échantillon par du carbone récent (donc enrichi en ^{14}C) ou ancien (donc appauvri en ^{14}C , comme dans les pays calcaires), est souvent très délicate.

La complémentarité des datations en TL et au radiocarbone suppose que la précision de ces deux méthodes soit comparable. Nous avons déjà précisé plus haut que l'erreur totale (précision expérimentale + erreur systématiques) sur l'âge d'une céramique se situait dans la marge de ± 6 à $\pm 10\%$ (1σ) et que l'âge d'un niveau archéologique daté par plusieurs céramiques pour-

rait être déterminé à $\pm 4-5\%$. Cette exactitude peut paraître limitée au regard des précisions publiées des âges au ^{14}C . On doit déjà, pour interpréter ces derniers, tenir compte des remarques ci-dessus. De plus, on doit savoir que l'erreur reportée dans les âges au ^{14}C est une erreur conventionnelle, qui se réfère seulement à l'erreur statistique de comptage du taux de désintégration du ^{14}C dans un compteur proportionnel ou à scintillation. On sait aujourd'hui que cette erreur est inférieure d'un facteur d'environ 1.5 à 2 à l'erreur expérimentale totale, spécialement si l'on veut comparer des âges déterminés dans des laboratoires différents. Enfin, pour les âges ≥ 8500 ans, on ne dispose plus de la calibration de l'échelle au radiocarbone par la dendrochronologie (Ralph et al., 1973). Vogel (1981) estime que, dans ces conditions, l'exactitude réelle d'un âge au radiocarbone supérieur à 8500 ans ne saurait guère être meilleure que $\pm 10\%$. Malgré leur précision formelle moins grande, les âges TL des céramiques apparaissent donc comme compétitifs par rapport aux âges au ^{14}C , même pour certaines gammes d'âge où ces derniers sont bien calibrés par rapport à l'échelle dendrochronologique. Ainsi, par exemple, un âge au carbone 14 de 1660 ans AD peut correspondre à un échantillon d'âge réel 1610 ans AD, ou compris entre 1520 et 1580 ans AD, d'après la calibration dendrochronologique de l'échelle du radiocarbone de Ralph et al., (1973). Compte tenu des variations significatives du ^{14}C atmosphérique dans le passé (Suess, 1970 voir aussi la calibration plus récente de Stuiver, 1982 pour la période récente), Zimmermann (1979) considèrerait que, pour les âges plus récents que 1000 ans AD, la datation par TL de céramiques présente une exactitude supérieure à celle que peut fournir le ^{14}C .

Les méthodes de datation élaborées pour les céramiques ne s'appliquent pas seulement aux potteries portées au feu, mais à tout type de matériel semblable ayant été chauffé à des températures suffisamment élevées, tels que briques, sols de foyers, parois de four et figurines en terre cuite. On connaît ainsi des datations de fours médiévaux, utilisant les matériaux argileux des parois internes de ces constructions (H. Valladas, 1977; Wagner, 1979) ou des tuiles utilisées dans des foyers (Mejdahl, 1972), etc... Les figurines de terre cuite les plus anciennes datées par TL sont celles de Dolni Vestonice (Tchécoslovaquie) étudiées par Zimmermann et Huxtable, âgées de 27000 ans, en accord raisonnable avec une détermination au ^{14}C de 24000 ans pour ce site. En Amérique du nord, des boules d'argile cuites caractéristiques de la culture de Poverty Point ont été datées, pour cinq sites différents incluant le site de Poverty Point lui-même à 1000 ± 200 ans, sans qu'une chronologie relative de ces sites puisse être établie (Huxtable et al., 1972).

Une dernière extension importante des méthodes de datation des céramiques par TL concerne l'authentification des oeuvres d'art. Ceci concerne tout aussi bien les objets fabriqués en terre cuite, qu'il s'agisse de potteries ou de statuettes, que des statues de bronze qui renferment encore des fragments de moule sableux. Pour ces déterminations, il n'est plus en général besoin d'une précision aussi grande que pour une datation archéologique, et une précision relativement limitée sur l'âge d'un objet est souvent largement suffisante pour distinguer un objet ancien d'une contrefaçon. Un avantage de cette méthode est qu'elle n'exige cinquante de milligrammes de matériel. Compte-tenu du faible coût d'un examen par TL, ce procédé d'authen

tification tend à se développer de plus en plus.

4. PIERRES BRÛLEES

Le plupart des sites archéologiques renferment des pierres travaillées ou simplement apportées par les hommes. Certaines de ces pierres ont été chauffées intentionnellement comme les pierres de foyers, ou les "cooking stones" des cultures pré-céramiques. De même des artefacts lithiques peuvent avoir été, intentionnellement ou non, portés au feu. Là où les températures de réchauffement ont excédé environ 400°C, une datation par TL devient possible. Comme dans le cas des potteries, l'évènement daté est celui du dernier réchauffement au-delà de cette température critique. Les minéraux communs de roches de type grès, quartzite et granite semblent donner de bon résultats, soit avec la méthode des inclusions minérales, comme l'ont montré Mejdahl (1972) Poupeau et al. (1976, 1977) et Huxtable et al. (1976) à partir de cristaux de quartz ou de feldspath granitiques ou quartzitiques, soit avec celle des grains fins utilisée par Huxtable et al (1976) pour dater la matrice finement cristallisée de pierres de foyer en grès. Les roches brûlées sont en général plus difficiles à dater que les céramiques en raison de leur structure cristalline. En effet, grès et granites sont constitués de minéraux de formes et de dimensions variables, et de teneurs en éléments radioactifs très différentes les uns des autres. Les dimensions de ces minéraux étant le plus souvent nettement supérieures au parcours d'une particule α (environ 20 microns dans une roche silicatée) et même parfois à celui d'une particule β (environ 2 millimètres),

le calcul de la dose interne d'irradiation dans une phase minérale donnée peut se trouver singulièrement compliqué (Valladas, 1979). Les quelques résultats publiés à ce jour suggèrent cependant qu'une précision similaire à celle des céramiques peut être atteinte. Ceci n'est plus nécessairement vrai des pierres très pauvres en éléments radioactifs comme certaines quartzites ou cherts. Pour ces matériaux, la TL est essentiellement produite par le rayonnement γ du sol environnant, et les variations d'humidité de ce sol peuvent entraîner une incertitude de jusqu'à $\pm 20\%$ sur l'âge. Il est donc extrêmement important pour ce genre de pierres de disposer d'un maximum d'informations sur d'éventuelles variations d'humidité du site d'échantillonnage dans le passé. En ce qui concerne les granites et les quartzites, les données de laboratoire suggèrent qu'ils pourraient être utilisés jusque vers respectivement environ 50000 ans et plus de 100.000 ans.

Parmi les autres types de pierres brûlées des sites archéologiques, les silex apparaissent comme les plus intéressants: sur le plan archéologique d'une part, car le silex est un excellent matériau, souvent présent dans les industries lithiques; et sur le plan de la TL d'autre part, car si certains silex ne semblent pas pouvoir être utilisés au-delà de 50000 ans, d'autres seraient capable de permettre une géochronologie s'étendant sur le dernier demi-million d'années (GOKSU et al. 1974; Danon et al., 1972), c'est à dire pratiquement sur toute la période depuis laquelle l'homme a laissé des traces d'utilisation du feu.

Goksu et Fremlin, en 1972, ont les premiers tentés d'utiliser le silex pour dater par TL des sites archéologiques. De

vant les problèmes de lumière parasite (triboluminescence) rencontrés, ces auteurs ont proposé de réaliser les mesures de TL sur des lamelles fines (environ 350 microns) de silex, plutôt que comme traditionnellement, sur des poudres (GOKSU et al., 1974; Wintle et Aitken, 1976). Mais les problèmes posés par cette technique (évaluation du facteur k, voir 2.3, et Aitken et Wintle, 1977; inhomogénéité de la transparence optique des lamelles, etc...) ont fait revenir à une technologie plus simple. H. Valladas (1978), Danon et al, (1980) et Bowman (1980) ont montré qu'il était effectivement possible d'utiliser une technique dérivée de celle des inclusions minérales, voire même de celle des grains fins (Bowman, 1980) pour dater des silex brûlés.

On sait depuis longtemps que certaines cultures traditionnelles utilisaient (et parfois encore très récemment, voir Mandeville, 1973), pour fabriquer des outils, des silex prétraités au feu. Ce traitement avait pour but d'améliorer les qualités mécaniques de la pierre, et d'en obtenir de meilleurs outils. Diverses expériences de simulation en laboratoire (Crabtree et Butler, 1964; Purdy et Brooks, 1971; Inizan et al., 1975; Tixier, communication personnelle) ont suggéré que les températures nécessaires à l'amélioration des conditions de travail du silex sont en général de l'ordre de 200 à moins de 400°C. Nos propres résultats sur de nombreux artefacts de silex archéologiquement prétraités au feu du site Alice Boer, dans l'état de São Paulo (Danon et al., 1980; Beltrão et al., 1981; Beltrão, da Cunha, Danon et Poupeau, données non publiées, 1982) ont montré que le traitement thermique utilisé par les paléoindiens du Rio Claro pour préparer la taille d'artefacts de silex, était lui aussi nettement inférieur à 400°C. Sur plus de 60 artefacts, prétra

tés au feu de ce site seuls 9 avaient été réchauffés au-delà de cette température et ont pu être datés en TL (Beltrão et al. 1981). Les auteurs en conclurent (Beltrão et al., 1982) que ces 9 silex avaient dû être portés non-intentionnellement au feu, après (et possiblement très longtemps après) avoir été façonnés.

5. ROCHES VOLCANIQUES

La mesure de l'âge des roches volcaniques récentes pose encore, pour des raisons diverses, de nombreux problèmes (Ficht, 1972) même si certaines présentent des conditions favorables à une datation directe par K-Ar (Cassignol et Gillot, 1981) ou traces de fission de l'uranium (Poupeau 1979, 1982), ou indirecte, par ^{14}C là où des bois ou des sols, se sont trouvés fossilisés par le passage d'une coulée de lave ou des projections de cendres volcaniques. Leur datation peut se révéler intéressante dans divers contextes archéologiques, qu'il s'agisse soit de retrouver la provenance d'outils fabriqués à partir d'un matériel volcanique (obsidiennes, soit de dater indirectement des sites archéologiques dans une stratigraphie volcano-sédimentaire comme dans le rift est-africain.

Le seul minéral omni-présent des roches volcaniques qui donne une TL naturelle non négligeable est le feldspath. Malheureusement, aux températures classiques d'utilisation de la TL, c'est à dire jusque vers 500°C , ce minéral est affecté d'un "anomalous fading" important (section 2.3) qui le rend tout à fait impropre à la datation absolue des roches volcaniques (Wintle,

1973). May (1977) toutefois a montré que, pour certains types de laves, une datation relative était possible. Grâce à l'utilisation d'un appareil permettant d'étudier la TL émise par un échantillon jusque vers une température de 700°C, Valladas et al (1977) ont mis en évidence l'existence d'un pic de TL vers 550°C à 600°C présentant des caractéristiques favorables à la datation. Ce groupe a par la suite montré que les feldspaths plagioclases des roches volcaniques donnaient des âges TL significatifs entre au moins 3000 et 300000 ans (Gillot et al., 1979; Valladas et al., 1979; Guérin et Valladas, 1980) avec une précision légèrement inférieure à $\pm 10\%$. Le même groupe a par ailleurs montré (Gillot et al., 1979) que l'utilisation de matériaux repris dans une lave et donc recuits à une température élevée pouvait donner un moyen supplémentaire de dater une coulée volcanique (galets de granite dans un basalte, Valladas et Gillot, 1978).

L'utilisation de sols brûlés sous coulée, lorsqu'ils sont accessibles, fournit un ultime moyen de datation des roches volcaniques, soit en utilisant l'argile recuite par la lave (Huxtable et al., 1978), soit des grains de sable (SUTTON, 1978), ou même des galets de quartz (Gillot et al., 1979) suffisamment réchauffés.

Les roches volcaniques vitreuses de type obsidienne présentent un intérêt particulier en archéologie, car ce sont de bons matériaux pour l'industrie lithique. On ne disposait, jusqu'à présent, pour la datation des plus récentes, que de la méthode des traces de fission (Bigazzi et Bonnadonna, 1973). Un travail de Bechtel et al. (1979) suggère que ces roches pour

raient être datées par TL sans difficulté majeure dans un avenir proche. Par ailleurs plusieurs auteurs (Carriveau et Nievens, 1979; Goksu et Turetken, 1979) ont proposé d'utiliser la forme des courbes de thermoluminescence de différentes obsidiennes pour caractériser la provenance d'artefacts archéologiques taillés dans ce type de roche (voir Carriveau et al. pour des obsidiennes du Guatemala).

6. CALCITE

La calcite se trouve associée à de nombreux dépôts archéologiques. C'est le cas par exemple dans les cavernes, avec les stalagmites et stalagmites, les niveaux de travertins ("flow rocks"); dans les milieux deltaïques et lacustres, avec niveaux de calcretes, stromatolithes; au voisinage des côtes, dépôts de coquilles, formations récifales, etc... C'est donc à des paléoenvironnements humains très divers que des dépôts carbonatés peuvent être couplés. L'évènement daté dans les carbonates récents, est celui de leur formation ou plus précisément de la cristallisation de la calcite qui les constitue.

L'un des intérêts majeurs de la calcite tient au fait que ce minéral semble capable d'applications géochronologiques sur au moins les cinq derniers millions d'années, en raison de la grande "profondeur" du piège responsable de son pic d'émission principal vers 280°C (Wintle, 1978), voire sur les 10 derniers millions d'années si les résultats obtenus par Ikeya en résonance paramagnétique électronique sur des coquilles fossiles sont extrapolables à la TL (Ikeya et Ohmura, 1981). L'utilisa

tion de formations calcaire associées à des niveaux archéologiques, ou qui leur sont de peu antérieures ou postérieures, serait fondamentale pour l'encadrement de l'âge de fossiles humains importants trop vieux pour être datés par des méthodes plus conventionnelles. Ainsi, dans le rift est-africain, de l'Ethiopie à la Tanzanie, de nombreux sites à Hominidés stratigraphiquement associés à des niveaux de calcretes et autres dépôts carbonatés fluviatiles à lacustres, pourraient être datés beaucoup plus directement qu'avec les techniques actuelles (lesquelles n'utilisent que les roches volcaniques qui ne sont souvent présentes que de loin en loin dans les colonnes stratigraphiques d'intérêt et posent souvent de grands problèmes de corrélation avec les sites anthropologiques). Des tentatives d'utilisation de ce type de dépôt sont d'ailleurs en cours par exemple à partir de formations algaires encroûtantes (stromatolithes) ou de concrétions calcaires, pour différents sites de Tanzanie (Poupeau et coll., non publié).

L'étude de la calcite en TL a longtemps été limitée par la triboluminescence (voir 2.3) typique de ce minéral. Néanmoins ce problème paraît actuellement en grande partie dominé (Wintle, 1975; Aitken et Bussel, 1980; H. Valladas, et al., 1981) et la calcite est l'un des minéraux dont on attend beaucoup pour la géochronologie du quaternaire en général, dans les régions de formations carbonatées récentes (régions côtières par exemple). Un autre avantage de la calcite est qu'elle donne un bon signal de résonance paramagnétique électronique (RPE) des électrons piégés utilisés en TL. Ce signal de RPE est lui même proportionnel à la dose radiations reçue et constitue le

fondement d'une autre méthode de datation (IKEYA, 1978; Yokoyama et al., 1982a). L'utilisation conjointe de la TL et de la RPE pour ce minéral permettra donc le futur des contrôles méthodologiques et d'interprétation sur les âges obtenus par la calcite et des travaux dans ce sens ont déjà été entrepris dans quelques laboratoires, (TURETKEN et al., 1979; Poupeau et al., travaux en cours). Un dernier obstacle à une large utilisation de la calcite pour les datations par TL résulte actuellement, du moins pour les stalagmites, de problèmes de dosimétrie d'environnement (Valladas et al., 1981) et de microdosimétrie de la calcite elle-même (Walton et Debenham, 1980). Il ne fait aucun doute qu'une fois ces problèmes compris et résolus, les datations par TL de la calcite seront très utilisées pour la chronologie du quaternaire.

7. SEDIMENTS

C'est là l'une des grandes promesses de la TL pour la géochronologie du quaternaire récent. Comme pour la calcite, ce domaine vient de s'ouvrir très récemment. Pour le moment, les seuls essais positifs concernent les sédiments de type éolien: partie fine (granulométrie inférieure à 10 microns) des sédiments océaniques, ou sédiments continentaux de type loess ou dunes de sable fossiles. Ici il s'agit donc de travailler sur des minéraux anciens, formés parfois il y a des centaines de millions d'années ou plus (quartz des dunes de régions désertiques ou côtières). Il faut donc qu'il y ait eu intervention d'un phénomène de "vidage" de la TL géologique accumulée par ces ma

tériaux (chapitre 2). Dans ce cas, un chauffage naturel à haute température est à exclure. Le phénomène qui intervient est la lumière solaire elle-même, dont les photons les plus durs (ultra-violets) vont fournir assez d'énergie aux électrons piégés pour retourner sur des atomes au nuage électronique incomplet. Des tests en laboratoire ont montré qu'une exposition pendant quelques centaines d'heures à la lumière solaire suffisaient à éliminer environ 80% de la TL émise normalement par des cristaux de quartz extraits de sables dunaires exposé préalablement à une source radioactive (Singvhi et al., 1982).

La datation des sédiments continentaux intéresse plus particulièrement l'archéologie. Ainsi, il semble bien que l'on puisse dater des dunes d'origine éolienne par TL, avec une précision de l'ordre de $\pm 10\%$ à 15% , à partir soit des grains les plus fins (< 10 microns) qu'elles renferment, soit des cristaux de quartz plus grossiers ($\sim 100-400$ microns) qui constituent en général l'élément minéralogiquement dominant de ce type de dépôt. Le seul travail publié dans ce domaine est celui du groupe d'A. Singvhi au Physical Research Laboratory (Ahmedabad) (Singvhi et al., 1982) où des contrôles par des âges TL sur céramiques et ^{14}C sur charbons confirme la validité de l'utilisation de matériel dunaire pour les datations par TL. Au Brésil, ce type d'approche pourrait se révéler fructueux pour la datation des sambaquis et de leur environnement immédiat.

La datation des loess continentaux vient, de son côté, d'être développée par A. Wintle, à partir de loess récents des formations périglaciaires du sud de l'Angleterre. Wintle (1981) a montré qu'il était possible, malgré une précision des âges

TL limitée à environ $\pm 20\%$, d'établir une chronologie des dépôts loessiques de cette région. Le même auteur (Wintle et Brunacker, 1982) a également daté certains tuffs volcaniques de la vallée du Rhin, en Allemagne, par les niveaux de loess entre lesquels on les trouve dans la stratigraphie.

Un dernier type de sédiment continental, les dépôts glaciaires, pourrait relever de la datation par TL. Cette autre innovation, annoncée récemment par des chercheurs soviétiques (Hutt et al., 1979) et chinois, demande encore confirmation.

8.OS

La datation des os fossiles par TL a déjà été considérée depuis de nombreuses années, mais la présence constante de lumière parasite, à la fois chemiluminescence (produite lors de réactions de décomposition de l'os lorsque la température est supérieure à $\sim 180^{\circ}\text{C}$) et triboluminescence, ont découragé les premiers essais (Jasinska et Niewiadomski, 1970; Christotoulides et Flemlin, 1971). Récemment, Driver (1979) a repris le problème en tentant de supprimer respectivement la triboluminescence par l'emploi de lamelles à la place de poudres d'os, et la chimie-luminescence, en tentant d'éliminer toute trace de matière organique à l'aide d'un traitement chimique approprié avant lecture de la TL. Les potentialités de cette méthode de préparation des os fossiles pour les datations par TL demeurent toutefois encore à prouver.

La nouvelle approche de datation par RPE, déjà signalée plus haut à propos de la calcite, pourrait apporter une solu-

tion radicale au problème de la datation des os par électrons piégés, car insensible aux effets de triboluminescence et ne modifiant pas la structure de l'os (on travaille ici à température ambiante), elle permet une lecture beaucoup plus directe de ce nombre d'électrons. Testée favorablement dans certains environnements (IKEYA et MIKI, 1980), elle pourrait, malgré divers problèmes (Yokoyama et al., 1980, 1982b) couvrir au moins les cinq derniers millions d'années, c'est à dire permettre une datation directe, sur les fossiles eux-mêmes (elle n'exige que peu de matériel) des vitesses d'évolution récentes des vertébrés et du phylum humain lui-même.

9. CONCLUSION

Au cours des dix dernières années, un intérêt croissant s'est porté vers les applications à la datation de matériels archéologiques et géologiques par la TL. Des progrès importants ont été réalisés, avec l'introduction de nouvelles techniques et une meilleure compréhension de certains des mécanismes physiques intervenant dans la production de la TL, qui ont permis d'élargir les possibilités de cette méthode. De nouvelles directions sont en cours d'exploration. Ainsi, la datation par thermoluminescence phototransférée (PTTL), phénomène déjà connu et étudié depuis longtemps, pourrait permettre d'utiliser des électrons de pièges très profonds, non accessible aux méthodes traditionnelles (sauf, en partie par TL à haute température, Gillot et al., 1979). Les résultats obtenus récemment par Bowman (1979), Mobbs (1979) et Rasidharan et al., (1979)

dans ce sens sont déjà très encourageants. Il pourrait en outre y avoir là une solution à la datation de matériaux qui se décomposent à haute température comme les os, par l'utilisation de PTTL émis à des températures notablement inférieures à 200°C.

Malgré ces développements spectaculaires, les datations par TL demeurent encore très éloignées d'un travail de routine, chaque échantillon posant des problèmes particuliers, parfois même dans le cas des plus classiques, les céramiques. C'est d'ailleurs une des raisons pour lesquelles la plupart des laboratoires de datation par TL combinent études appliquées et travaux de méthodologie.

Au cours des dernières années, les travaux expérimentaux ont progressé beaucoup plus rapidement que la connaissance théorique des mécanismes qui induisent et contrôlent la production de la thermoluminescence des matériaux naturels. Le développement des méthodes de datation par TL semble actuellement limité par cette insuffisance. On doit donc s'attendre à ce qu'une amélioration future de nos connaissances théoriques permette encore des améliorations notables dans le domaine des applications en géochronologie de la thermoluminescence.

REFERENCES

AITKEN M.J.(1974)

Physics and Archaeology, Clarendon Press, Londres, 291 p.

AITKEN M.J.(1978a)

Dose-rate evaluation, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 2, 18-33

AITKEN M.J.(1978b)

Radon loss Evaluation by Alpha counting, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 2, 104-114

AITKEN M.J.(1978c)

Archaeological involvements of physics, Physics Report, 40, 277-351

AITKEN M.J.(1981)

TL dating: techniques and problems, in Applied thermoluminescence Dosimetry, Eds. M.Oberhojer et A.Scharmann, ECSC, Bruxelles, 361-381

AITKEN M.J. et FLEMING S.J.(1972)

Thermoluminescence dosimetry in archaeological dating, in Topics in Radiation Dosimetry, Suppl.1, Ed. F.A.Hix, Academic Press, New York, 1-78.

AITKEN M.J. et BUSSEL G.D.(1978)

Dating of fallen stalagmites, A Apecialist seminar on thermoluminescence dating, Oxford, Juillet 1978, présentation orale

AITKEN M.J. et WINTLE A.G.(1976)

Thermoluminescence dating of calcite and burnt flint: the age relation for slices, Archaeometry, 19, 100-105

BECHTEL F., SCHVOERER M., ROUANET J.F. et GALLOIS B.(1979)

Extension à la préhistoire, à l'océanographie et à la

volcanologie de la méthode de datation par thermoluminescence, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 3, 481-492

BELTRÃO M.M.C., ENRIQUEZ C.R., DANON J. ZULETA E. et POUPEAU G. (1981)

Thermoluminescence dating of burnt cherts from the Alice Boer site (Brazil) preprint, 32 p.

BELTRÃO M.M.C., DANON J., ENRIQUEZ C.R., POUPEAU G. et ZULETA E. (1982)

Sur l'arrivée de l'homme en Amérique: datations par thermoluminescence des silex brûlés du site archéologique Alice Boer (Brésil), C.R. Acad. Sci. Paris, série II 295, 629-632.

BIGAZZI G. et BONNADONNA F. (1973)

Fission track dating of the obsidian of Lipari Islands (Italy), Nature, 242, 322-323

BOWMAN S.G.E. (1979)

Phototransfer thermoluminescence in quartz and its potential use in dating, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 3, 381-400

BOWMAN S.G.E. et SEELEY M.A. (1978)

The British Museum flint dating project, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 2, 151-164.

CARRIVEAU Gr.W. et NIEVENS M. (1979)

Guatemala obsidien source characterisation by thermoluminescence, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 3, 506-509

CASSIGNOL C. et GILLOT P.Y. (1981)

in Numerical Dating in Stratigraphy, Wiley, sous presse

CHRISTOTOULIDES C. et FREMLIN J.H. (1971)

Thermoluminescence of biological materials, Nature, 323, 257-258.

CRABTREE D. et BUTLER B. (1964)

Notes on experiments in flint knapping: 1, heat treatment of silica materials, Tebiwa, 7, 1-6.

DANIELS F., BOYD C.A. et SAUNDERS D.F.(1953)

Science, 117, 345-349.

DANON J., ENRIQUEZ C.R., ZULETA E., BELTRÃO M.M.C. et POUPEAU G.
(1980)

Thermoluminescence dating of archaeologically heated cherts.
A case study: the Alice Boer site, Revue PACT, Conseil de l'Europe sous presse

DRIVER H.S.T. (1979)

The preparation of thin slices of bone and shell for thermoluminescence, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 3, 135-146.

FITCH F.J.(1972)

Selection of suitable materials for dating and the assessment of geological error in potassium-argon age determinations, in Calibration of Hominoid Evolution, Scottish Academic Press, Edinburgh, 77-92

FLEMING S.J.(1969)

The acquisition of radioluminescence by ancient ceramics, D. Phil. thesis, université d'oxford

FLEMING S.J.(1970)

Thermoluminescence dating: refinement of the quartz inclusion method, Archaeometry, 12, 133-146

FLEMING R.J.(1973)

The pre-dose technique: a new TL dating method, Archaeometry, 15, 13-30

FLEMING S.J.(1976)

Dating in Archaeology, J.M.Dent, London, 272 p.

FLEMING S.J. et STONEHAM D.(1973)

The subtraction technique of TL dating, Archaeometry, 15, 229-238

- GILLOT P.Y., VALLADAS G. et REYSS J.L.(1978)
Dating of lava flow using a granitic enclave: Application to the Laschamp magnetic event, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 2, 165-173
- GILLOT P.Y. LABEYRIE J., LAJ C. VALLADAS G. GUERIN G., POUPEAU G. et DELIBRIAS Y.(1979)
Age of the Laschamp paleomagnetic excursion revisited, Earth Planet. Sci. Letters, 42, 444-450
- GOKSU H.Y. et FREMLIN J.H.(1972)
Thermoluminescence from unirradiated flints: regeneration thermoluminescence, Archaeometry, 14, 127-132
- GOKSU H.Y. et TURETKEN N. (1979)
Source identification of obsidien tools by thermoluminescence, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 3, 356-359
- GOKSU H.Y., FREMLIN J.H. IRWIN H.T. et FRYXELL R.(1974)
Age determination of burned flint by a thermoluminescent method, Science, 183, 651-654
- GUERIN G. et VALLADAS G. (1980)
Thermoluminescence dating of volcanic plagioclases Nature, 286, 697-699
- HUXTABLE J., AITKEN M.J., et WEBER J.C.(1972)
Thermoluminescence dating of baked clay balls of the Poverty Point Culture, Archaeometry, 14, 269-275
- HUXTABLE J., AITKEN M.J., HEDGES J.W. et RENFREW A.C.(1976)
Dating a settlement pattern by thermoluminescence: the burnt mounds of Orkney, Archaeometry, 18, 5-17
- HUXTABLE J., AITKEN M.J. et BONHOMMET N.(1979)
Thermoluminescence dating of sediments baked by lava flows of the chaîne des Puys, Nature, 275, 207-209

HUTT G, SMIRNOV A., et TALE J.(1979)

On the application of natural quartz to the study of geochronology of sedimentary deposits, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 3, 362-273.

IKEYA M.(1978)

Electron spin resonance as a method of dating, Archaeometry, 20, 147-158.

YKEYA M. et MIKI T.(1980)

Electron spin resonance dating of animal and human bones, Science, 207, 977-979.

IKEYA M. et OHMURA K.(1981)

Dating of fossil shells with electron spin resonance, J.Geol. 89, 247-251

INIZAN M.L., ROCHE H. et TIXIER J.(1975)

Avantages d'un traitement thermique pour la taille des roches siliceuses, Quaternaria, 19, 1-18. P

JASINKA M., et NIEWIADOMSKI T.(1970)

Thermoluminescence of biological materials, Nature, 227, 1159-1160

MANDEVILLE M.D.(1973)

A consideration of the thermal pre-treatment of cherts, Plains Anthropologist, 18, 177-202

MAY R.J.(1977)

Thermoluminescence dating of Hawaiian basalts, J. Geophys. Res. 82, 3023-3029.

MEJDAHL V.(1972)

Progress in TL dating at Riso, Archaeometry, 14, 245-258

MOBBS S.F.(1979)

Phototransfer at low temperatures, Revue PACT, Conseil de

l'Europe 3, 407-413.

POUPEAU G.(1979)

Les datations par traces de fission de l'uranium. Principes et applications aux problèmes du quaternaire, Bull. Assoc. Fr. Etude Quater., n° 1-2, 15-26.

POUPEAU G.(1982)

Precision, accuracy and meaning of fission-track ages, Proc. Indian Acad. of Sci., Earth Planet. Sci., 90, 403-436.

POUPEAU G., SUTTON S., WALKER R.M. et ZIMMERMAN D.W.(1976)

Thermoluminescent dating of burned rocks: Application to the site of Pricevent, France, présenté au IXTh Congress of Pre-historical and Protohistorical Sciences Union, Nice, 1976, 10p.

POUPEAU G., SUTTON S., WALKER R.M. et ZIMMERMAN D.W.(1977)

Thermoluminescence dating of heated rocks, Symp. Archaeometry and Archaeological Prospection, Edinburgh, Ed. H.M. Kerrel, résumé

PURDY B.A. et BROOKS H.X.(1971)

Thermal alteration of silica minerals: An archaeological approach, Science, 173, 322-325.

QUERE Y.(1969)

Introduction to crystal defects, (1969) in Solid State Dosimetry, Gordon and Breach, New York, 3-42.

RALPH E.K., MICHAEL H.N. at HAN H.C.(1973)

Radiocarbon dates reality, MASCA Newsletter, 9, 1-19

SASIDHARAN R., SUNTA C.M. et NAMBI K.S.V.(1979)

Phototransfer method for determining archaeological dose of Pottery sherds, Revue PACT, 3, 401-406.

SCHULMAN J.L.(1969)

Theory of luminescence, in Solid State Dosimetry, Gordon and Breach, New York, 107-152

- SINGHVI A.K., SHARMA Y.P. et AGRAWAL D.P. (1982a)
Thermoluminescence dating of sand dunes in Rajasthan, India, Nature, 295,
313-313
- STUIVER M. (1982)
A high precision calibration of the AD radiocarbon time scale, radiocarbon,
mars issue.
- SJES H.E.(1970)
The three causes of the secular carbon-14 fluctuations, their amplitudes
and time constants, in Radiocarbon variations and Absolute Chronology,
Wiley, New York, 303-312.
- SUTTON S.(1978)
TL dating of lava flows using backed soils: application to the Idaho Rift
system, U.S.A. Revue PACT, Conseil de l'Europe. 2, 179, résumé.
- SUTTON S. et ZIMMERNAN D.W.(1976)
TL-dating using zircons grains from archaeological ceramics, Archaeometry,
18, 125-134
- SUTTON S. et ZIMMERMAN D.W.(1979)
The zircon natural method: Initial results and low level thermoluminescen-
ce measurements, Revue PACT, Conseil de l'Europe, 3, 465, résumé.
- TURETKEN N. OZER A.M., KOLAT. A. et GOKSU Y. (1979)
Thermoluminescence and electron spin resonance of stalagmites from a
cave in the southern part of Turkey, Revue PACT, Conseil de l'Europa, 3,
266-280
- VALLADAS H.(1977)
On the magnetic separation of quartz for the thermolumines-
cence dating of an ancient kiln, Archaeometry, 19, 88
- VALLADAS G.(1979)
La datation des roches par la thermoluminescence. Applications
Bull. Assoc. Fr. Etude Quaternaire, n°1-2, 43-52
- VALLADAS G., GILLOT P.Y. et GUERIN G. (1979)
Dating plagioclase? Revue PACT, Conseil de l'Europa, 3,
251-257

- VALLADAS G., POUPEAU G., GILLOT P.Y. et REYSS J.L.(1977)
Thermoluminescence dating of recent volcanic rocks. Laschamp magnetic event. Vth European Congress of Geochronology, Cosmochronology and Isotope Geology, Pise, (Italie), 5-10 septembre, résumé.
- VALLADAS H., HOANG C.T., MASSOT J.C. et PETIT R.H.(1981)
Tentative de datation de quelques planchers stalagmitiques de la Caune de l'Arago par la thermoluminescence, la résonance paramagnétique électronique et la méthode $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$, preprint.
- VOGEL J.C.(1981)
Radiocarbon dates of the palaeolithic, in Colloquio sobre as Tecnicas de Datacion on el Paleolitico, Congresso X, UICPP, Mexico oct. 19-24, 67-88.
- WAGNER G.A.(1979)
TL-dating am Töpferofon Koberg 15 in Lübeck, Lübecker Schriften Archaeol. Vorgeschichte, 3, 83.
- WINTLE A.(1973)
Anomalous fading of TL in mineral samples, Nature, 245, 143-144
- WINTLE A.G.(1975)
Effect of sample preparation on the TL characteristics of calcite, Modern Geology, 5, 165 -167.
- WINTLE A.G.(1978)
A thermoluminescence dating study of some quaternary calcites: potentials and problems, Can. J. Earth Sci., 15, 1977-1986
- WINTLE A.G.(1981)
Thermoluminescence dating of late devansian loeses in southern England Nature, 289, 479-480
- WINTLE A.G. et AITKEN M.J.(1977)
Thermoluminescence dating of burnt flint: Application to a

lower palaeolithic site, Terra Amata, Archaeometry, 19, 111-130.

WALTON A.J. et DEBENHAM N.C.(1980)

Spatial distribution studies of thermoluminescence using a high-gain image intensifier, Nature, 284, 42-44

WINTLE A. et BRUNNACKER K.(1982)

Ages of volcanic tuff in Rheinessen obtained by thermoluminescence dating of loess, Naturwissenschaften, 695, 181

YOKOYAMA Y., NGUYEN H.Y., QUAGEBEUR J.P., et POUPEAU G.(1980)

Some problems encountered in the estimation of annual dose rate in the ESR dating of fossil bones, Revue PACT, Conseil de l'Europe, sous presse.

YOKOYAMA Y., QUAGEBEUR J.P., BIBRON R., LEGER C., NGUYEN H.V. et POUPEAU G. (1982a)

Datation du site de Tautavel par la résonance de spin électronique, C.R. Acad. Sci. Paris, Série II, 294, 759-764

YOKOYAMA Y., QUAGEBEUR J.P., BIBRON R. LEGER C., NGUYEN H.Y. et POUPEAU G.(1982b)

Electron spin resonance (ESR) dating of bones of the Caune de l'Arago at Tautavel. in Datations absolues et analyses isotopiques em Préhistoire: Méthodes et limites, CNRS, Paris, Prétirage, 457-493.

ZIMMERMAN D. W. (1970)

D. Phil. Thesis, Université d'Oxford

ZIMMERMAN D.W.(1971)

Thermoluminescence dating using fine grains from potteries, Archaeometry, 13, 29-52

ZIMMERMAN D.W.(1972)

Relative thermoluminescence effects of alpha and beta radiations, Radiation Effects, 14, 81-92

ZIMMERMAN D.W.(1979)

Dating of recent North American archaeological sites,
Revue PACT, Conseil de l'Europe, 3, 359, résumé

ZIMMERMAN D.W.(1979)

Thermoluminescence dating using zircons, Revue PACT, Conseil
de l'Europe, 3, 458-465.

ZIMMERMAN D.W. et HUXTABLE J.(1971)

Thermoluminescent dating of upper palaeolithic fired clay
from Dolni Vestonice, Archaeometry, 13, 53-57.

ANNEXE 1

Notes sur les précautions à prendre pour l'échantillonnage de céramiques et de pierres brûlées pour les datation en TL.

(adapté d'après Aitken, 1974)

ECHANTILLONS

1. Nombre: - céramiques: une série de 3 à 12 fragments pour chaque contexte.
- pierres brûlées. Le nombre de pierres peut être beaucoup plus élevé, car contrairement aux céramiques, on n'est pas toujours certain d'avoir atteint une température supérieure à 500°C dans un foyer archéologique. Ainsi pour le site d'Alice Boer (Rio claro), sur plus de 60 artefacts de silex brûlé étudiés seuls 9 avaient été chauffés suffisamment pour permettre une datation en TL (Beltrão et.al.,1982 et données non publiées).
2. Dimensions. Au moins 5mm d'épaisseur et environ 25 x 25mm de côté. De plus grands fragments sont toutefois souhaitables.
3. Type. Si possible prendre des pierres et des potteries de matériaux différents.
4. Contexte. (i) Seuls les échantillons qui ont été enfouis au minimum à 30cm de la surface de sol pendant la majeure partie du temps depuis leur abandon archéologique sont acceptables. Ceci signifie, au niveau

du site, que les échantillons pris dans des creux naturels ou faits par l'homme, qui ont donc été enfouis parmi les premiers, sont les plus intéressants.

- (ii) Autant que possible les échantillons doivent être pris à au moins 30cm de toute discontinuité: par exemple, débris rocheux ou de construction, amas d'os ou de pierres, limite d'une excavation, etc...
- (iii) La meilleure situation est celle dans laquelle pierres brûlées et fragments de potteries sont dispersés dans un sol uniforme relativement libre d'autres débris (os, coquilles, pierres, etc...). La présence d'autres objets n'est pas compromettante si l'on peut encore choisir des pièces qui ne soient pas trop proches de ces derniers. En particulier, plus gros sont les fragments rocheux et plus grande est leur effet sur l'évaluation de la radioactivité naturelle au niveau de l'échantillon.

TRAITEMENT

- 5. Éviter autant que possible une exposition directe à la lumière du soleil
- 6. Eviter de porter les échantillons à une température trop élevée. On doit rester au-dessous de 100°C

7. Eviter toute exposition aux rayonnements ultra-violet, X, beta ou gamma.
8. (i) Pour les sites où il y a peu de doute à propos de la saturation en eau (par exemple sites proches du niveau de la nappe phréatique) aucune précaution supplémentaire n'est nécessaire - Simplement, n'utiliser ni détergent ni additif d'aucune sorte pour nettoyer les échantillons. Sécher pierres et céramiques à l'abri du soleil.
(ii) Pour les sites où il y a un doute à propos du degré de saturation en eau (par exemple: sites de régions bien drainées et en altitude; sites de régimes pluviaux irréguliers, et...), ne pas laver les céramiques, mais les enfermer dans un sac plastique dès le prélèvement. Ce sac doit être fermé le plus hermétiquement possible, et être lui-même placé dans un second sac plastique avec les mêmes précautions. Ceci permettra ultérieurement, au laboratoire, de mesurer la quantité d'eau renfermée par la potterie sur son site.

LE SOL D'ENFOUISSEMENT

9. Environ 300 grammes de sol typique de celui dans lequel était situé l'échantillon sont nécessaires. On doit prendre les mêmes précautions qu'en 8(ii) pour transporter ce sol - Le meilleur échantillon de sol est celui qui était en contact même avec

- la pierre ou le fragment de potterie prélevés
10. Aucune précaution n'est nécessaire vis à vis de l'exposition à la lumière naturelle ou d'autres rayonnements. Ne pas laisser porter le sol dans son sac à des températures élevées, pour éviter tout effet d'évaporation de l'eau qu'il contient et le départ de vapeur d'eau.
 11. Un échantillonnage représentatif des autres objets enfouis dans le sol à moins de 30cm de l'échantillon à dater doit être également pris (pierres, os, etc...)

PRECAUTIONS GENERALES

12. L'âge d'une céramique est celui de son dernier réchauffement au-delà de 400°C. Par conséquent, on date, le plus souvent, la date de sa fabrication mais parfois aussi celle de son dernier réchauffement dans un foyer. Par conséquent des fragments de potterie manifestement plus anciens que le site considéré, ne permettront en général pas de le dater
13. Des informations précises sur les conditions d'enfouissement sont nécessaires - Ceci inclut au minimum un schéma (et idéalement des photos) montrant exactement les conditions de prélèvement de l'échantillon et son environnement jusqu'à une distance de 30cm.
14. Dans le cas d'un site du type 8(ii), donner toutes les informations disponibles sur les variations saisonnières d'humidité, les variations sur le site même avec la profondeur (exemple: "quoique les os fossiles soient secs sur le site

en surface, dans ces conditions climatiques chaudes, à une profondeur de 2 mètres, le sol se trouve pratiquement saturé en eau"). Indiquer si le niveau de la nappe phréatique est proche de celui du site; si l'on connaît ses variations de niveau dans le passé, les variations temporelles du régime des pluies, etc...

15. Notez bien: les fragments de potterie sont détruits au cours de la datation.

LEGENDES DES FIGURES

Figure 1: Evolution de la TL dans un échantillon archéologique (céramique, pierre de foyer, etc...) brûlé.

- A. Avant la cuisson, l'échantillon présente une TL géologique constante (valeur de saturation). Une cuisson archéologique au-dessus de 400°C élimine cette TL.
- B. Immédiatement après la cuisson, il n'y a plus d'électrons dans les "pièges" structuraux de l'échantillon. Cependant, sous l'effet de la radioactivité naturelle (ionisation), les pièges vont à nouveau se repeupler peu à peu, proportionnellement au temps. Le point TLN (TL Naturelle) correspond à l'intensité de la TL que l'on peut mesurer actuellement dans cet échantillon.
- C. La TLA (TL Artificielle) produite en laboratoire après exposition à des sources radioactives très intenses d'un échantillon préalablement "vidé" de sa TLN, peut reproduire en des temps courts les niveaux de lumière de cette dernière.

Figure 2: Schéma de principe d'un lecteur de TL. L'élément essentiel est constitué d'un four pour chauffer l'échantillon jusque vers 500°C et d'un tube photomultiplicateur (PM) pour mesurer la TL émise. Le tube PM est fixé sur le four au niveau d'une fenêtre en verre. L'échantillon est soit réduit en poudre et exposé dans une coupelle

sur une résistance chauffante, soit découpé en lamelles fines déposées directement sur l'élément chauffant. Le four lui-même est étanche à la lumière et fonctionne en atmosphère neutre au moyen d'une circulation continue d'argon ou d'azote. La vitesse de montée en température du four, généralement linéaire (et de l'ordre de 10°C/seconde), est contrôlée par un thermocouple au niveau de la résistance chauffante. Le tube PM détecte les photons lumineux émis au cours de la chauffe, qui après amplification, sont comptabilisés en fonction du temps. Une table traçante imprime enfin un signal proportionnel à l'intensité de la TL émise en fonction de la température.

Figure 3: TLN, TLA et test du plateau

- a. Courbes caractéristiques de TLN et TLA d'un quartz brûlé archéologique. Les courbes 1 à 4 ont été enregistrées selon la séquence suivante:
- Courbe 1: lecture de la TLN de l'échantillon
- Courbe 2: second chauffage. La lumière émise au-dessus de 400°C provient du four lui-même ("radiation du corps noir")
- Courbe 3: chauffage consécutif à une irradiation β par une source de ^{90}Sr
- Courbe 4: dernier chauffage - L'échantillon étant de nouveau vidé de sa TL, on retrouve la courbe 2.
- b. Test du plateau: pour chaque température, on calcule le rapport TLN/TLA. Par exemple, à 430°C, le

rapport des longueurs AB/AC. Le palier atteint au-delà de 350°C garantit, en principe (voir texte) que, si l'échantillon n'est pas saturé, la TLN au-delà de cette température est restée stable et permet donc une datation.

Figure 4: Evolution du signal TL d'un échantillon en fonction de sa dose d'irradiation. La plupart des minéraux utilisés en datation par thermoluminescence présentent deux types de croissance avec la dose,

- a. croissance linéaire jusqu'à un niveau limite de saturation (occupation de tous les sites disponibles par des électrons non apparentés). On néglige ici l'effet de création de défauts (pièges). Par irradiation à fortes doses)
- b. croissance d'abord supra-linéaire, où la sensibilité croît avec la dose, suivie comme précédemment d'une partie linéaire avant saturation.

C'est principalement la partie linéaire de la courbe de réponse à la dose qui est utilisée pour la datation.

Figure 5: Détermination de la dose naturelle. Pour une température donnée de la TL, prise sur le plateau (c'est à dire au-delà de 350°C dans la figure 3), on mesure la croissance de la TL avec la dose d'irradiation. Lorsque la TLN est encore loin de la saturation, la courbe TLN + dose est linéaire et permet d'obtenir par extrapolation la "dose équivalente β " ainsi dé-

nommée car les doses additionnelles à la TLN sont fournies par une source radioactive β . Afin de tenir compte d'un éventuel effet de supralinéarité (figure 4), on procède à une étude similaire de la TLA, d'où l'on peut déduire un composant supplémentaire (SL dans la figure) de la dose naturelle (Aitken, 1974). La dose naturelle s'obtient alors en sommant la dose-équivalente- β et la dose de supralinéarité (SL). Cette dernière correction n'est possible que lorsque le premier chauffage nécessaire à l'obtention de la TLN ne modifie pas la sensibilité de l'échantillon (c'est à dire lorsque les droites de croissance de la TLN et de la TLA ont la même pente).

TABLE 1

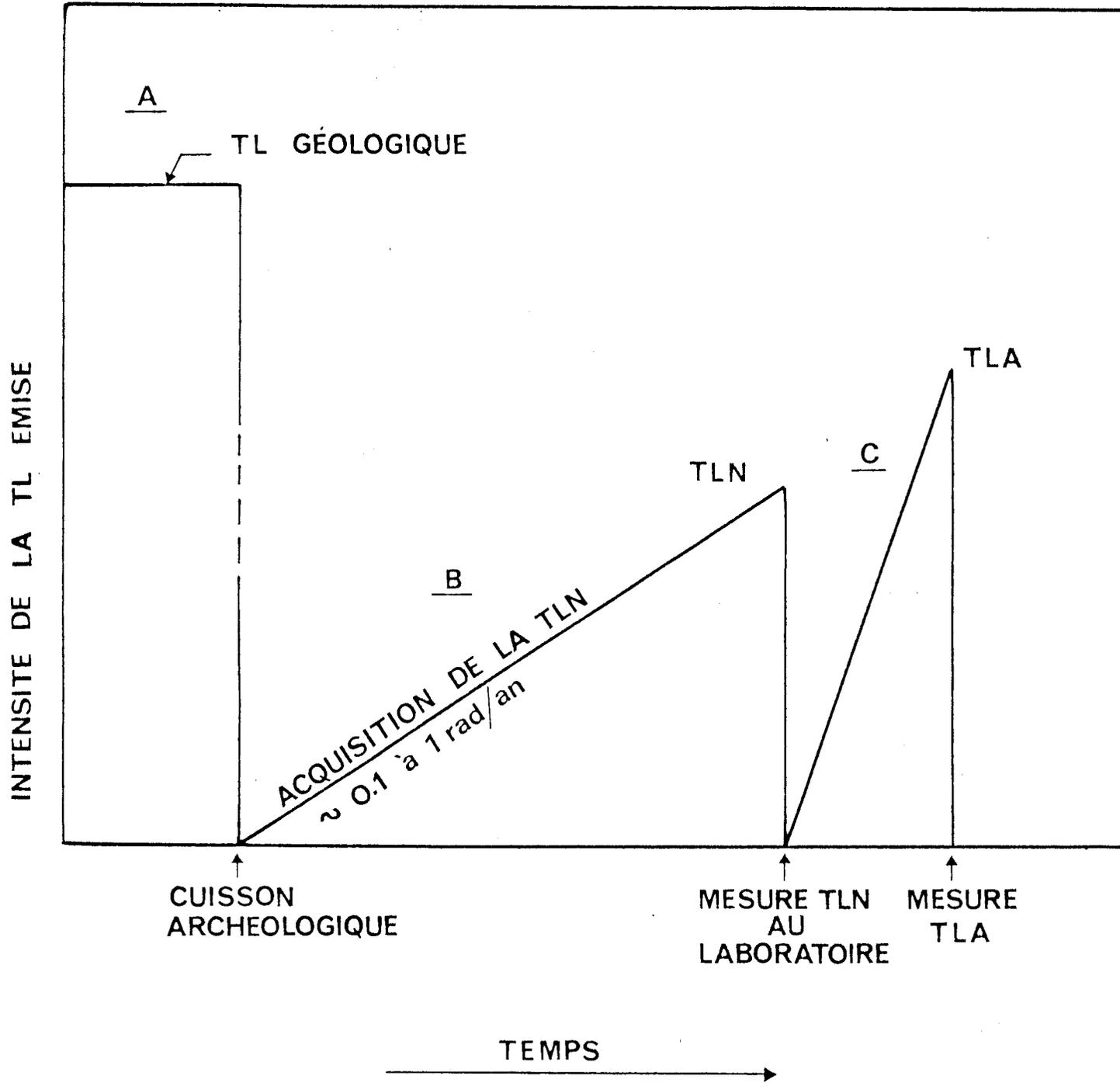
Composition de la dose annuelle d'irradiation pour un sol ou une potterie typiques⁺

Radio-élément	α	β	γ	Total	Total effectif [§]
<u>Série de ^{232}Th</u>					
radio-isotopes avant thoron	309	10.3	20.8	818	191
thoron et produit-fils	429	18.3	30.6		
	} 738	} 28.6	} 51.4		
<u>Série de ^{238}U</u>					
Radio-isotopes avant radon	353	17.0	1.6	852	190
radon et produits fils	426	23.9	30.6		
	} 779	} 40.9	} 32.1		
Potassium-40	-	136.4	41	177	177
Totaux	1517	206	124	1848	-
doses annuelles effectives	227	206	124	-	558
	(41%)	(37%)	(22%)		

⁺Calculée en millirads/an pour les conditions suivantes: teneur en uranium, 2,8 ppm; thorium, 10 ppm; potassium (en K_2O), 2%.

[§]Calculée pour un matériel sec, avec $k = 0.15$ (voir texte)

Fig. 1



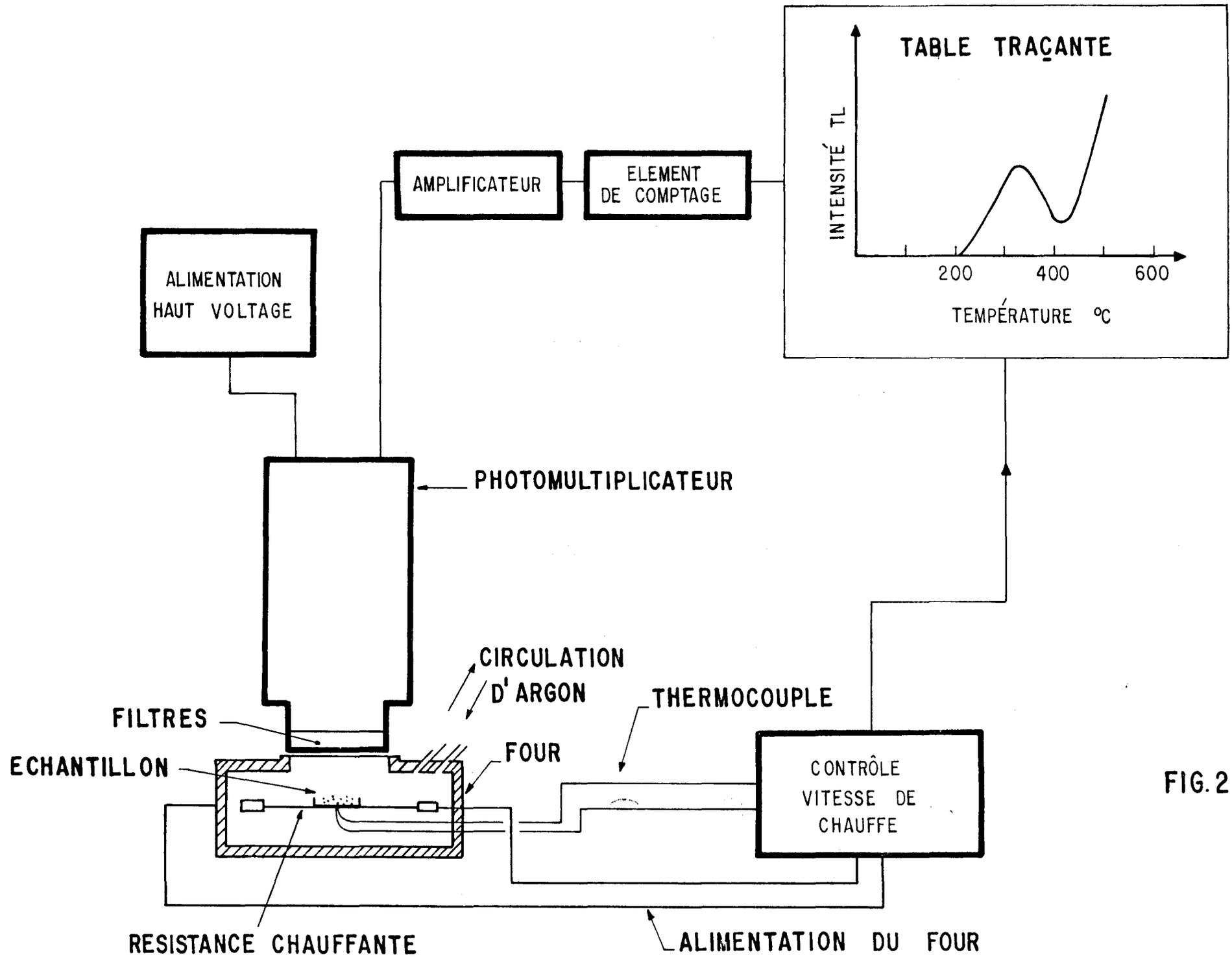


FIG. 2

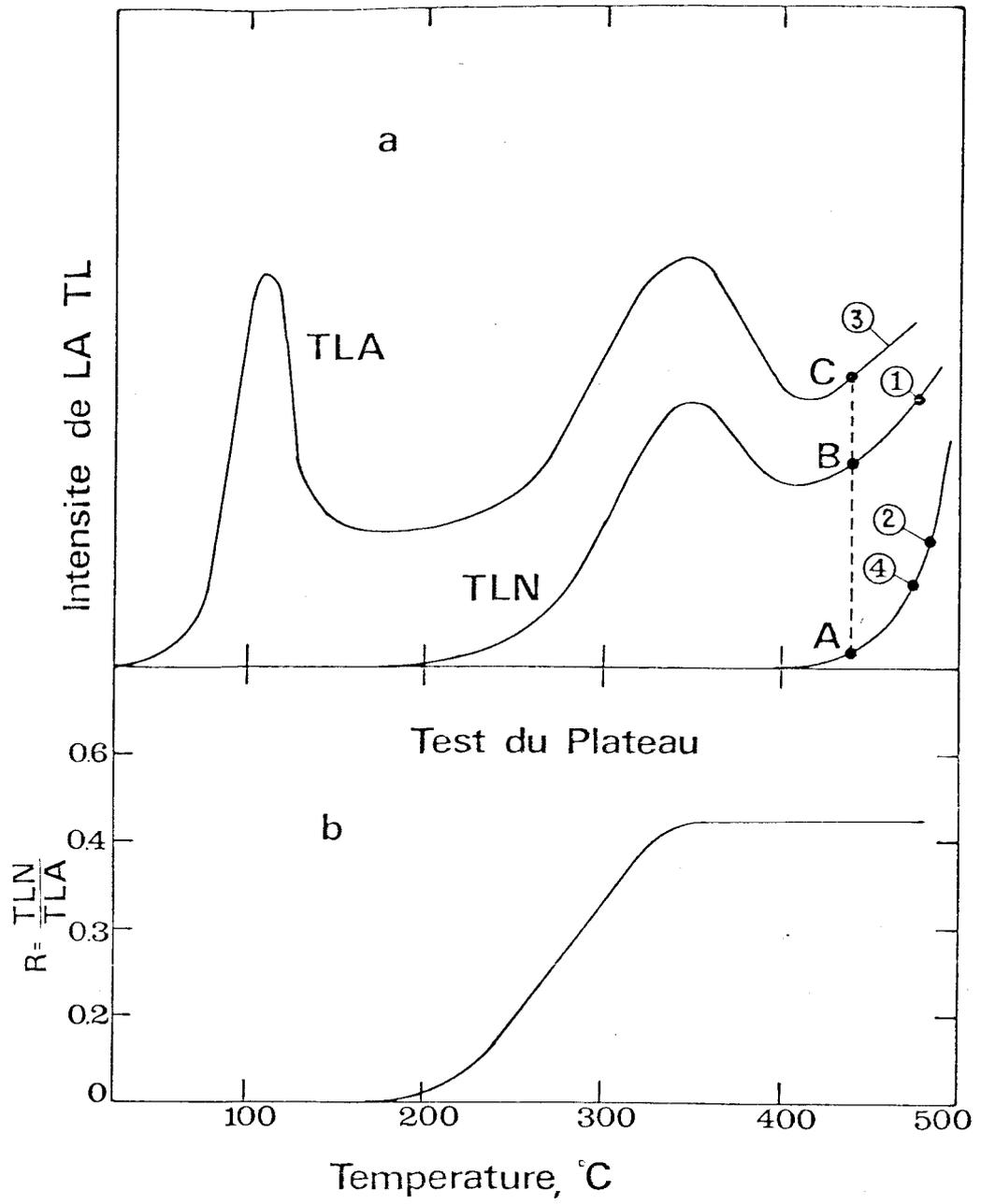


Fig. 3

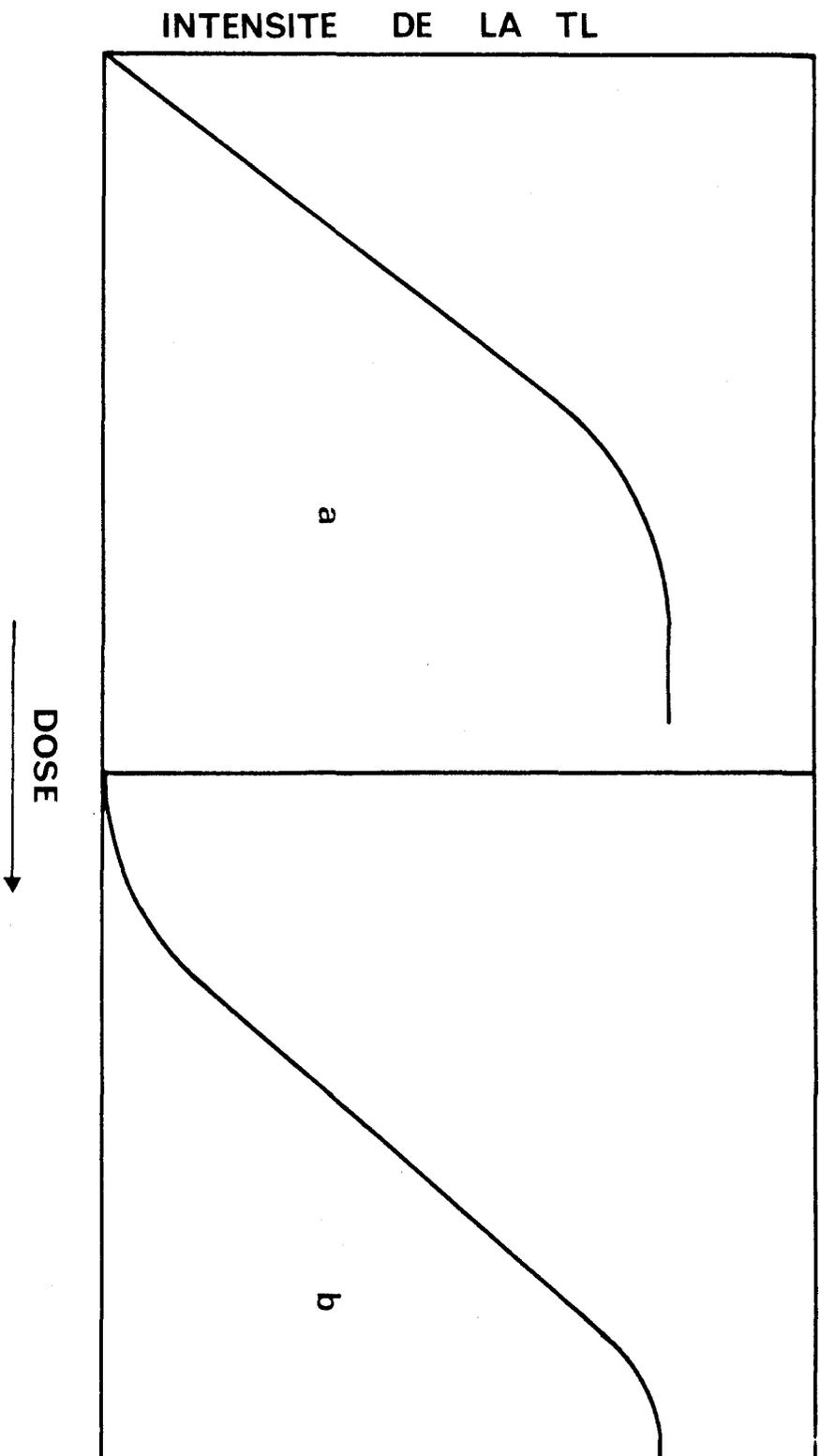


Fig. 4

Fig. 5

