

# DATATION PAR LA RESONANCE DE SPIN ÉLECTRONIQUE (E.S.R.) DE SÉDIMENTS QUATERNAIRES

Christophe Falguères, Yuji Yokoyama, Jean-Pierre Quaegebeur

▶ **To cite this version:**

Christophe Falguères, Yuji Yokoyama, Jean-Pierre Quaegebeur. DATATION PAR LA RESONANCE DE SPIN ÉLECTRONIQUE (E.S.R.) DE SÉDIMENTS QUATERNAIRES. Datation et Caractérisation des Milieux Pléistocènes, 1986, Clermont-Ferrand, France. pp.40-52. halshs-00443999

**HAL Id: halshs-00443999**
**https://shs.hal.science/halshs-00443999**

Submitted on 5 Jan 2010

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**Datation et Caractérisation des Milieux Pléistocènes**
**Actes des Symposiums 11 et 17 de la 11ème R.S.T., Clermont-Ferrand, 1986**
**Cahiers du Quaternaire N° 16**
**1991, p. 39 - 52, 8 fig., 5 tab.**

datation ESR . pdf

# DATATION PAR LA RÉSONANCE DE SPIN ÉLECTRONIQUE (E.S.R.) DE SÉDIMENTS QUATERNAIRES

## *Electron spin resonance dating (E.S.R.) of Quaternary sediments*

**Christophe FALGUÈRES**[1]
**Yuji YOKOYAMA**[1]
**Jean-Pierre QUAEGEBEUR**[2]

**Résumé**
Des grains de quartz ont été extraits de sédiments quaternaires d'origines différentes, à savoir :
— de sables éoliens (Caune de l'Arago)
— de sables de plages (site de Terra Amata)
— de sédiments cuits par les laves (Massif Central, France).
Ces quartz ont été étudiés pour la datation, par une technique de grain large, utilisant la méthode de la résonance de spin électronique (E.S.R.). Si au départ, nos efforts portaient essentiellement sur le centre aluminium, il s'est avéré possible par la suite d'établir des comparaisons de paléodoses et de stabilité thermique en étudiant d'autres centres tels que le titanium et le germanium.
Cet article est une synthèse des principaux résultats obtenus (âges et paléodoses) par cette méthode.

**Abstract**
Quartz grains have been extracted from Quaternary sediments from different origins :
— Eolian sands (Arago cave)
— Beach sands (Terra Amata site)
— Sediments baked by lava-flows (Massif Central, France).
These quartz grains have been studied by a large grain technique, using the Electron Spin Resonance (E.S.R.) dating method. In the beginning, the aluminium center was our main research goal, however it was later possible to determine palaeodoses and thermal stability comparisons by studying other centers such as titanium and germanium.
This article brings together our main results obtained (Palaeodoses and ages) using the E.S.R. technique.

## INTRODUCTION

Une tentative de datation par la résonance de spin électronique (E.S.R.) sur des grains de quartz a été effectuée. Pour ce faire, des échantillons extraits de sédiments quaternaires d'origines différentes ont été étudiés. Plusieurs types de centres, dont l'identification avait été faite par Mac Morris (1971), sont mis en évidence. Une étude détaillée, pour chaque type d'échantillon, a fait l'objet de deux articles (Yokoyama et al, 1985 ; Yokoyama et al, 1986).

(1) Centre des Faibles Radioactivités. Laboratoire mixte CNRS-CEA - 91190 Gif sur Yvette - France.
(2) CEA-IRDI, DESICP, Département de Physico-chimie, Centre d'Études Nucléaires de Saclay, 91191 Gif sur Yvette, Cedex France.

Les échantillons étudiés sont de trois types :
- sédiments éoliens
- sables de plage
- sédiments cuits par des laves.

Une étude comparative des centres (Al, Ti et Ge) a pu être faite en fonction de la nature des échantillons.

## SABLES ÉOLIENS ET SABLES DE PLAGE

Les échantillons étudiés proviennent de deux sites acheuléens : la Caune de l'Arago à Tautavel et le site de Terra Amata à Nice.

*Sable éolien (Arago)*

Le sédiment n°43 a été prélevé entre les sols E et F de l'ensemble III dans la zone la moins altérée (I-18). C'est un sédiment essentiellement composé de sable éolien.

*Sable de plage (Terra Amata)*

L'échantillon n°3155 a été extrait d'un ancien cordon littoral appartenant à l'ensemble Cla (zone F-19). C'est un sable de plage.

### *Les centres E' et aluminium*

*Le centre E' (g = 2.0005)*

Il présente l'avantage de pouvoir être observé à température ambiante. Mais son intensité diminue après une irradiation gamma par du cobalt 60, ce qui veut dire que ce centre est déjà saturé dans les échantillons naturels. De plus, la saturation microonde du centre E' s'observe à une puissance d'autant plus faible qu'elle se situe à la limite de notre appareil (P = 0.005 mW). Nous avons donc abandonné l'étude du centre E'.

*Le centre Al (g = 2.01)*

Il est caractérisé par une structure hyperfine que nous avons numérotée arbitrairement de 1 à 16 (figure 1). Cette structure est formée de six lignes hyperfines $^{27}Al$, chacune d'elles étant quadruplée.

Les signaux des centres Al sont observés à une température dans la cavité E.S.R. de 93°K. La résolution de la structure hyperfine s'améliore beaucoup lorsqu'on abaisse la température (77°K) mais les paléodoses obtenues à partir des spectres réalisés aux deux températures sont identiques.

Les courbes de croissance de chaque ligne hyperfine, en fonction des doses gamma, sont parallèles entre elles, à l'exception des lignes n°9 et 10 qui sont perturbées par d'autres signaux, vraisemblablement des signaux de Fer ($Fe^{3+}$).

### *Résultats obtenus*

*Dose équivalente (DE)*

La courbe de croissance d'un signal de centre Al de quartz de Terra Amata montre qu'une saturation apparaît vers 15 KGy (figure 2).

Ce type de courbe est représenté par une équation exponentielle de premier ordre cinétique, dont tous les détails sont donnés dans un article précédent (Yokoyama et al, 1985). Par ce procédé, on obtient une valeur de 1795 ± 103 Gy pour DE.

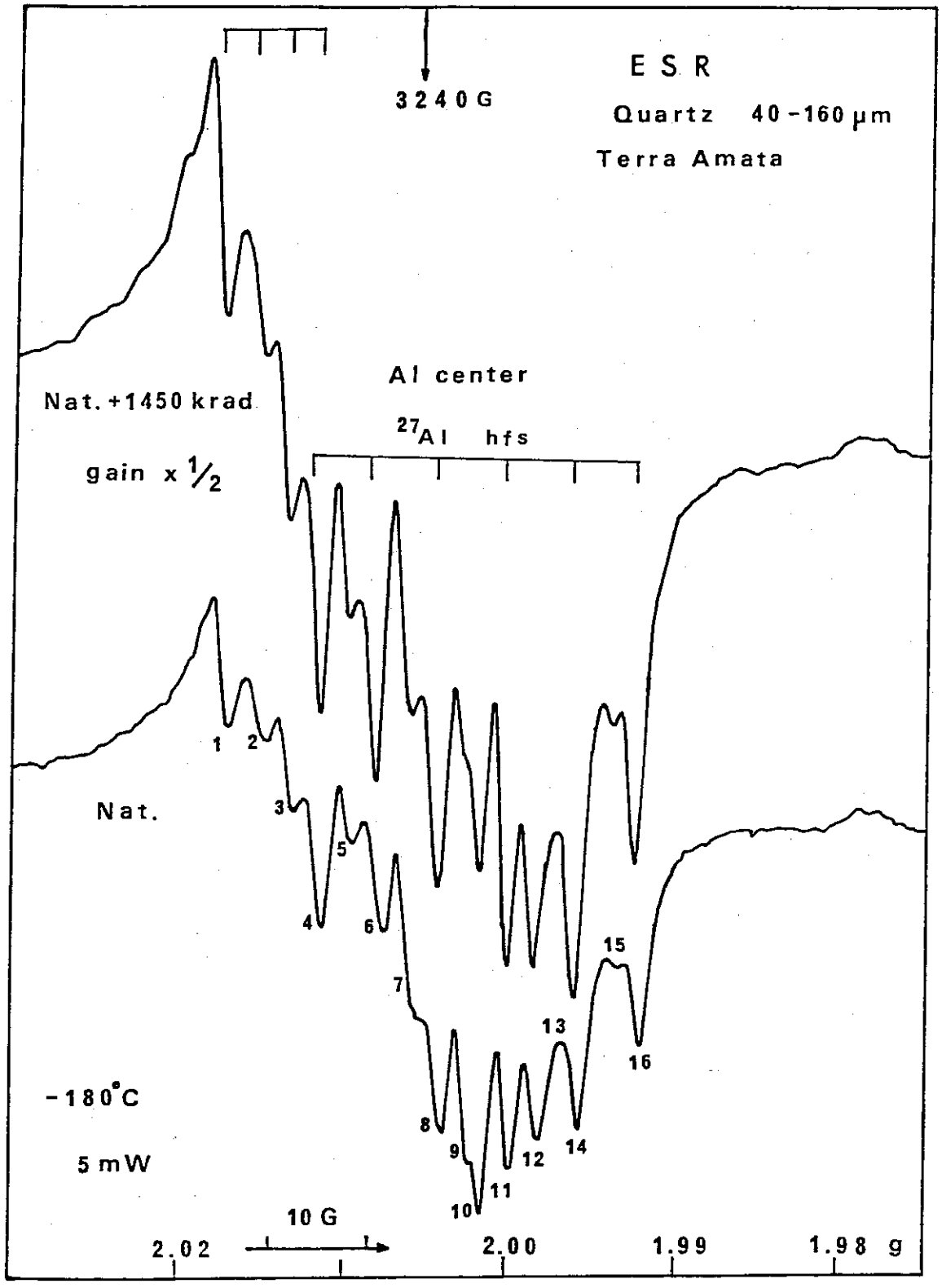



**Fig. 1** - *Signaux de centres aluminium de quartz (Terra Amata).*
*La hauteur du signal permettant de calculer la paléodose a été mesurée depuis le sommet du pic n°1 jusqu'à la base du pic n°16. Le spectre supérieur correspond à celui d'un échantillon irradié, tandis que l'inférieur représente celui d'un échantillon naturel.*

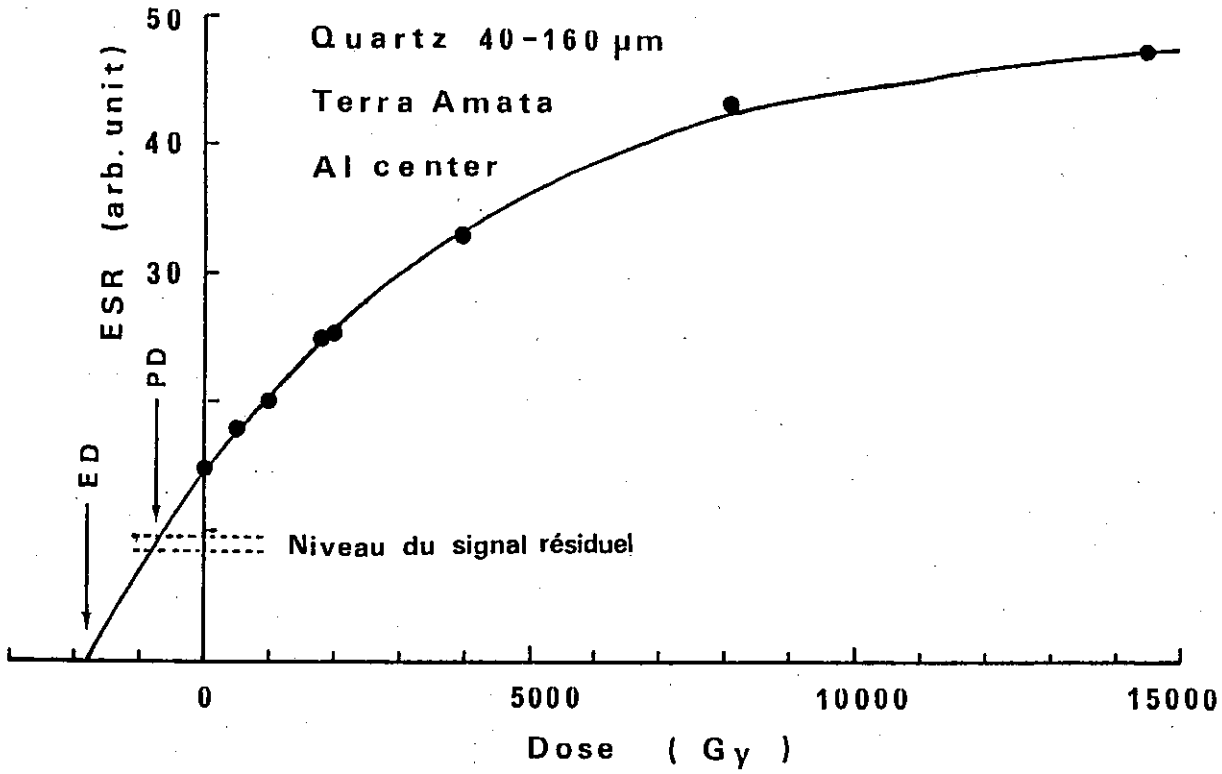



**Fig. 2** - *Courbe de paléodose d'un signal de centre Al de quartz de Terra Amata. DE est déterminée par une méthode des moindres carrés. PD est obtenue en soustrayant la dose obtenue par le signal résiduel à la dose équivalente.*

*Paléodose (PD)*

Sur la figure 2, la ligne en pointillé indique l'intensité du signal résiduel $D_0E$ déduite d'un échantillon "d'âge zéro" prélevé dans des sables d'une plage actuelle près de Terra Amata. L'intensité du signal de centre Al de ces échantillons correspond à 60 % ± 5 % de l'intensité de l'échantillon naturel de Terra Amata.

La paléodose PD, est obtenue par la soustraction de cette dose résiduelle à la dose totale DE :

$PD = DE - D_0E$

Le même principe est réalisé pour l'échantillon n°43 de l'Arago. Pour cela, des échantillons "d'âge zéro" sont prélevés dans des alluvions proches de la Caune de l'Arago.

Le tableau 1 résume les résultats concernant les paléodoses obtenues.

| | Terra Amata n° 3155 | Arago n° 43 |
|---|---|---|
| DE (Gy) | 1795 ± 103 | 2030 ± 140 |
| $D_0E$ (Gy) | 1045 ± (10 %) | 1020 ± (10 %) |
| $PD = DE - D_0E$ | 750 ± 147 | 1010 ± 149 |

**Tableau 1** - *Doses équivalentes, doses résiduelles et paléodoses obtenues pour les échantillons n°3155 (Terra Amata) et n°43 (Arago).*

L'ensemble des résultats concernant ces deux échantillons est regroupé dans le tableau 2.

| | Terra Amata n° 3155 | Arago n° 43 |
|---|---|---|
| Paléodoses (Gy) | 750 ± 147 | 1010 ± 149 |
| Doses annuelles (mGy/an) | | |
| Alpha | 0.15 ± 0.12 | 0.38 ± 0.30 |
| Beta | 1.20 ± 0.06 | 1.22 ± 0.06 |
| Gamma | 0.56 ± 0.04 | 0.70 ± 0.04 |
| Cosmique | 0.06 ± 0.01 | 0.04 ± 0.01 |
| Total | 1.97 ± 0.14 | 2.34 ± 0.31 |
| Âges ($10^3$ ans) | 380 ± 80 | 430 ± 85 |

**Tableau 2** - *Paléodoses, doses annuelles et âges des échantillons de Terra Amata et de l'Arago.*

*Les activités de $^{238}U$, $^{226}Ra$, $^{222}Rn$, $^{232}Th$ et $^{40}K$ de ces sédiments ont été déterminées par spectrométrie gamma, et les doses gamma et cosmiques mesurées in-situ (Yokoyama et al, 1981).*

## SÉDIMENTS BRÛLÉS PAR DES LAVES

Ces deux échantillons ont été prélevés dans le Massif Central près de Clermont-Ferrand.

*Beaumont (Cler13)*

C'est un sable de couleur claire, contenant quelques nodules de porcelanite (Miallier, 1982), ce qui indique une cuisson à haute température. Ce sédiment a pour origine une arène granitique.

*Neschers (TL44)*

C'est un sable de couleur rouge contenant quelques plaquettes de calcaire (Sanzelle et al, 1983). Ce sédiment dont l'origine est mal déterminée, pourrait appartenir à un horizon de surface (Raynal et al, 1985).

### *Centres Al, Ti et Ge*

La figure 3 montre que les centres Al et Ti ne sont pas superposés, ce qui nous a permis de réaliser une étude comparative pour ces deux centres.

Le centre Al a deux composantes principales à g = 2.01 et g = 2.06. Le calcul de paléodose à partir du signal du centre Al se fait pour g = 2.01.

Le centre Ti a trois composantes principales à g = 1.91, g = 1.93 et g = 1.98.

La hauteur du signal est mesurée depuis le sommet jusqu'à la base du signal à g = 1.93.

La figure 4 montre un signal de centre Ge pour un échantillon irradié. En effet, pour tous les échantillons étudiés dans ce travail (à l'exception des échantillons "d'âge zéro"), le signal de centre Ge n'apparaît dans aucun échantillon naturel ce qui rend impossible un éventuel calcul de paléodose. Mac Morris (1971) mentionnait cette absence qui ne peut être toutefois généralisée car Shimokawa et al (1985) ont utilisé le centre Ge pour dater par E.S.R. des quartz extraits de roches volcaniques. Cette absence du centre Ge dans les échantillons naturels, semble dépendre de la nature de la roche ainsi que du changement naturel de l'état de l'ion alkali associé au centre Ge, comme le soulignait Mac Morris (1971).

Cependant, la stabilité thermique de ces trois centres n'est pas très différent. Pour Cler13 et TL44, des échantillons irradiés ont été recuits à différentes températures pendant le même temps. La réduction de la hauteur du signal E.S.R. de ces trois centres, en fonction de la température de recuit pour ces deux échantillons (figures 5 et 6), montre une stabilité thermique similaire. Ce fait est compatible avec les résultats concernant les paléodoses obtenues à partir des centres Al et Ti. Par contre, l'absence du signal E.S.R. dû au centre Ge dans les échantillons naturels ne peut être expliquée par la stabilité thermique. Cette absence semble inhérente à la disparition du signal E.S.R., due à la modification du temps de relaxation par des ions alkali associés au centre Ge (Mac Morris, 1971).

### *Paléodoses*

Les paléodoses sont obtenues par la méthode de l'addition. Les comparaisons des centres Al et Ti, pour les deux échantillons (figure 7 et 8), montrent que la croissance du centre Al est linéaire tandis que celle du centre Ti a une légère tendance à s'incurver ce qui indique une saturation vers 1000 Gy pour ce dernier.

Les paléodoses obtenues pour ces deux centres sont en bon accord pour les deux échantillons étudiés.

## COMPARAISONS DES RÉSULTATS OBTENUS

### *Terra Amata*

Nous avons comparé nos résultats obtenus sur les quartz de Terra Amata avec ceux obtenus sur des silex brûlés, par TL, et trouvés également dans l'ensemble Cla (Wintle et Aitken, 1977), (tableau 3).

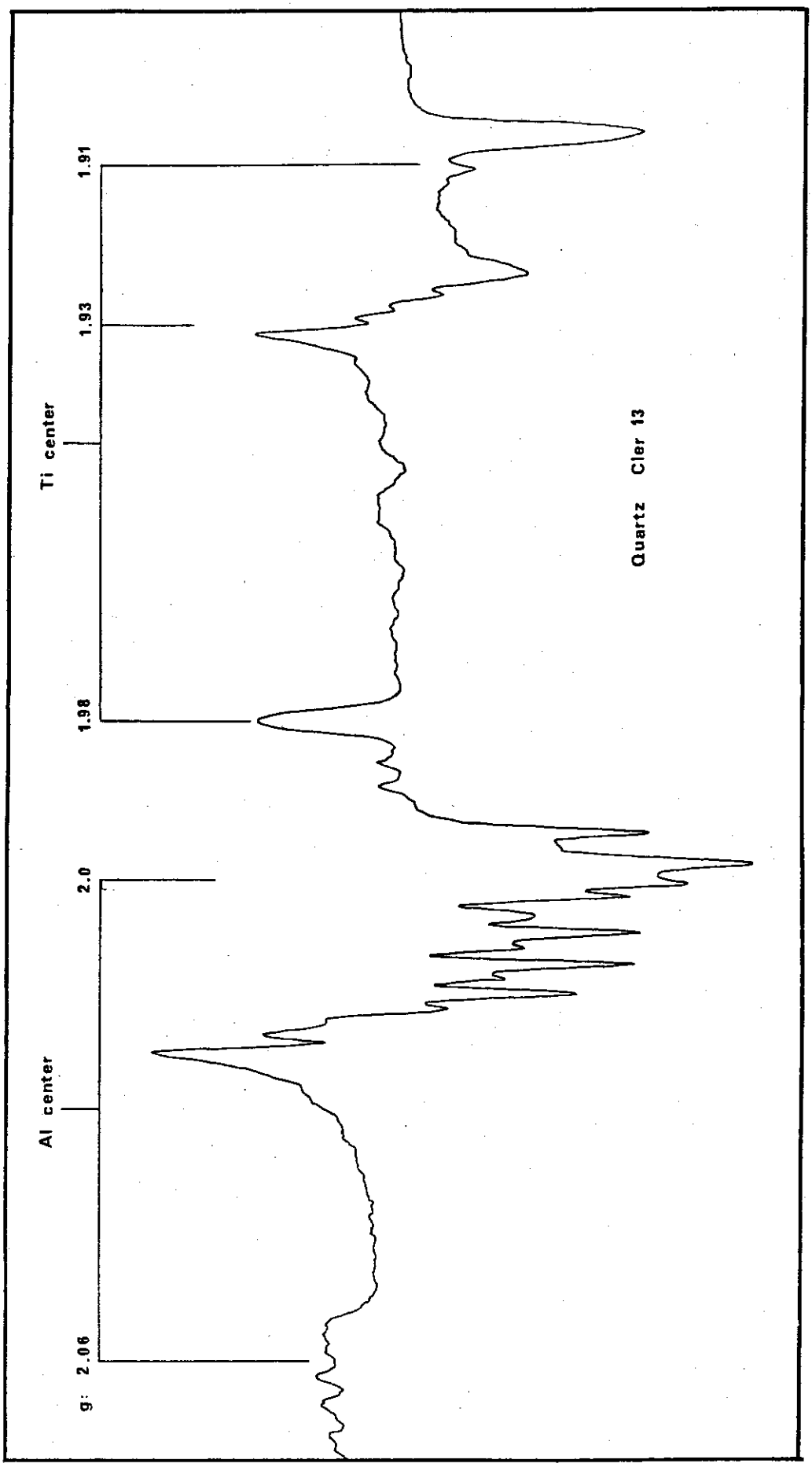



**Fig. 3** - *Spectres E.S.R. de centres Al et Ti de quartz (Cler13) enregistrés à une température de cavité de 93K.*

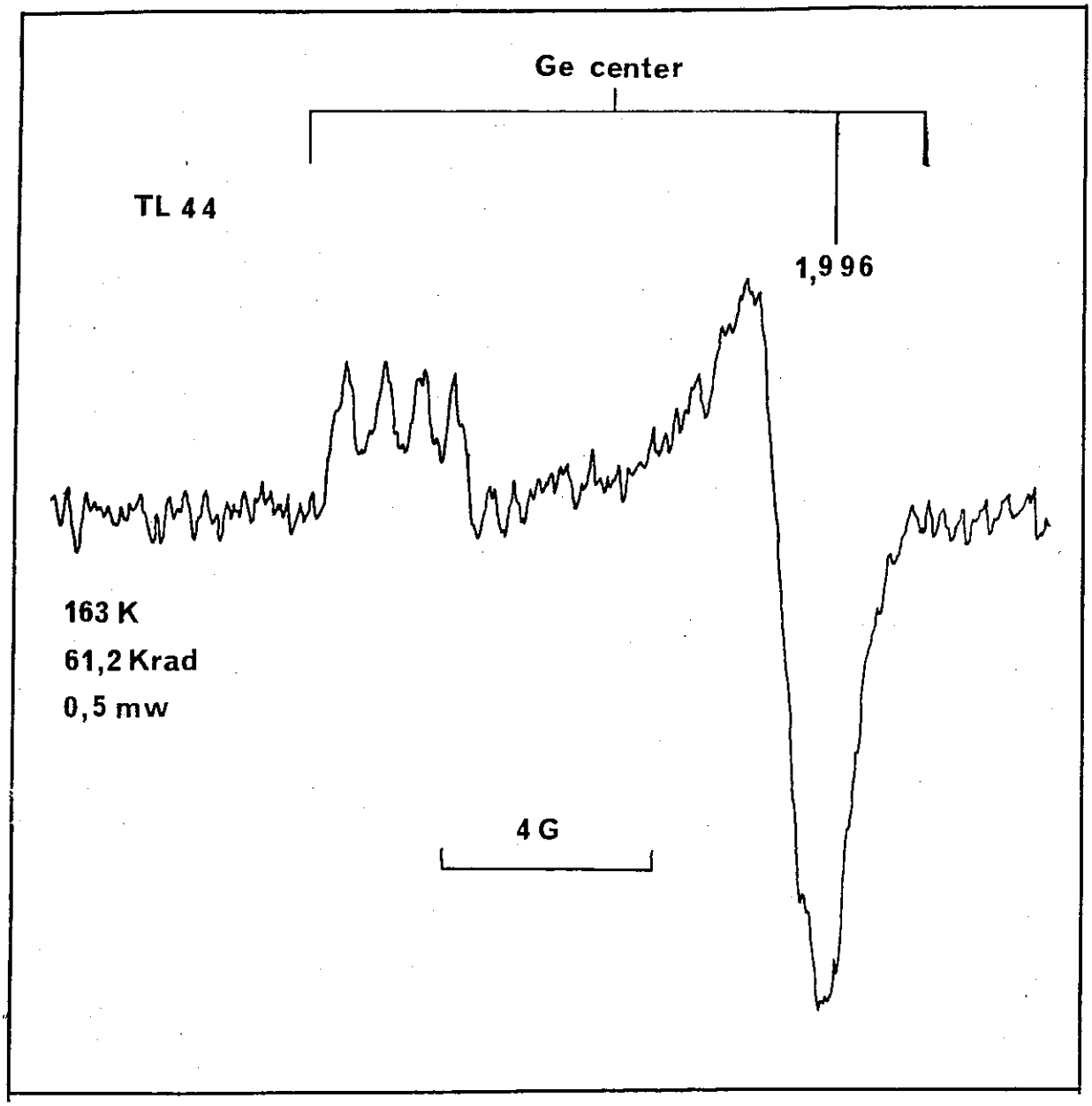



**Fig. 4** - *Spectre E.S.R. de centre Ge de quartz (TL44).*

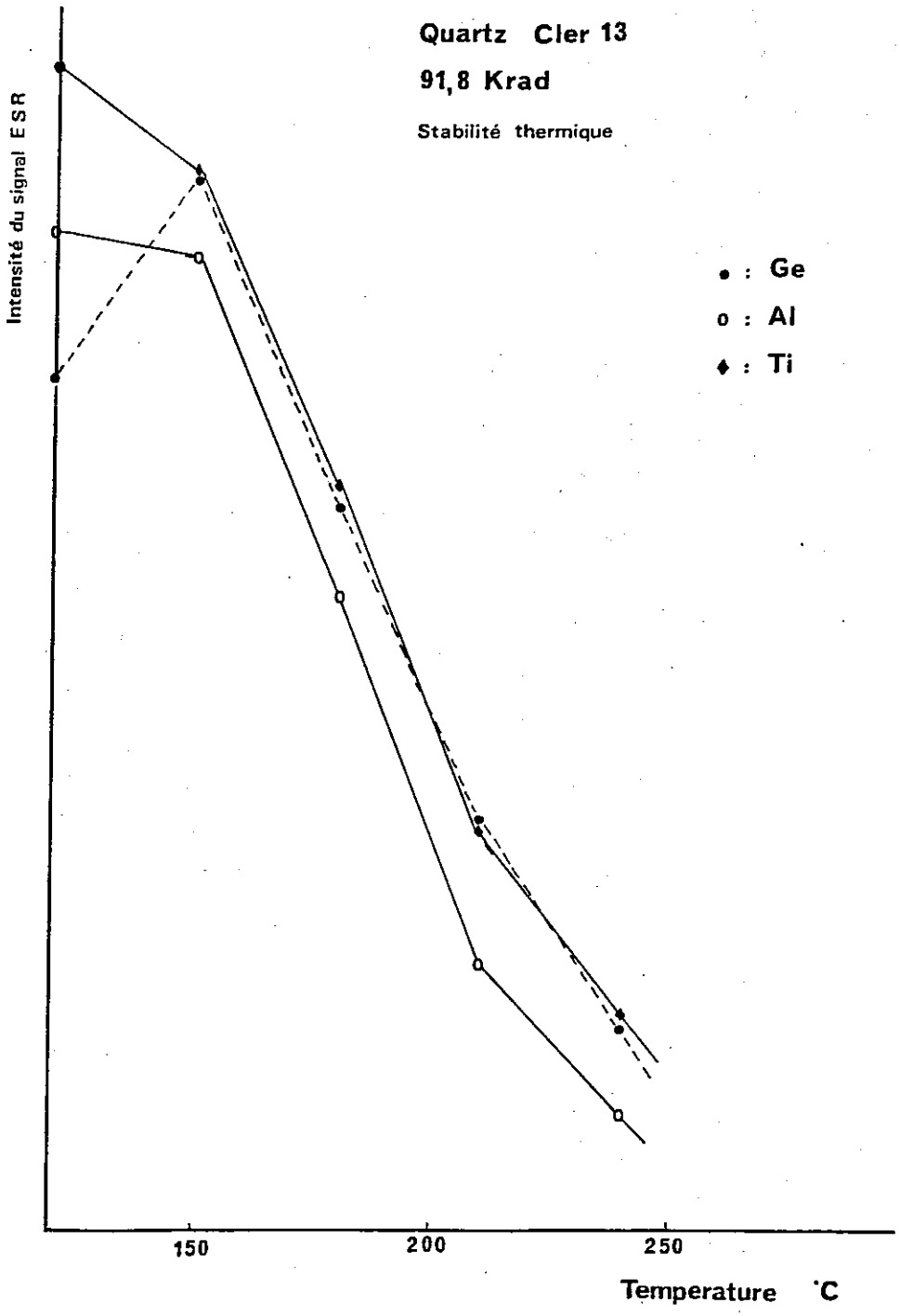



**Fig. 5** - *Isochrones de stabilité thermique, en fonction de la température, pour les centres Al, Ti et Ge pour Cler13.*

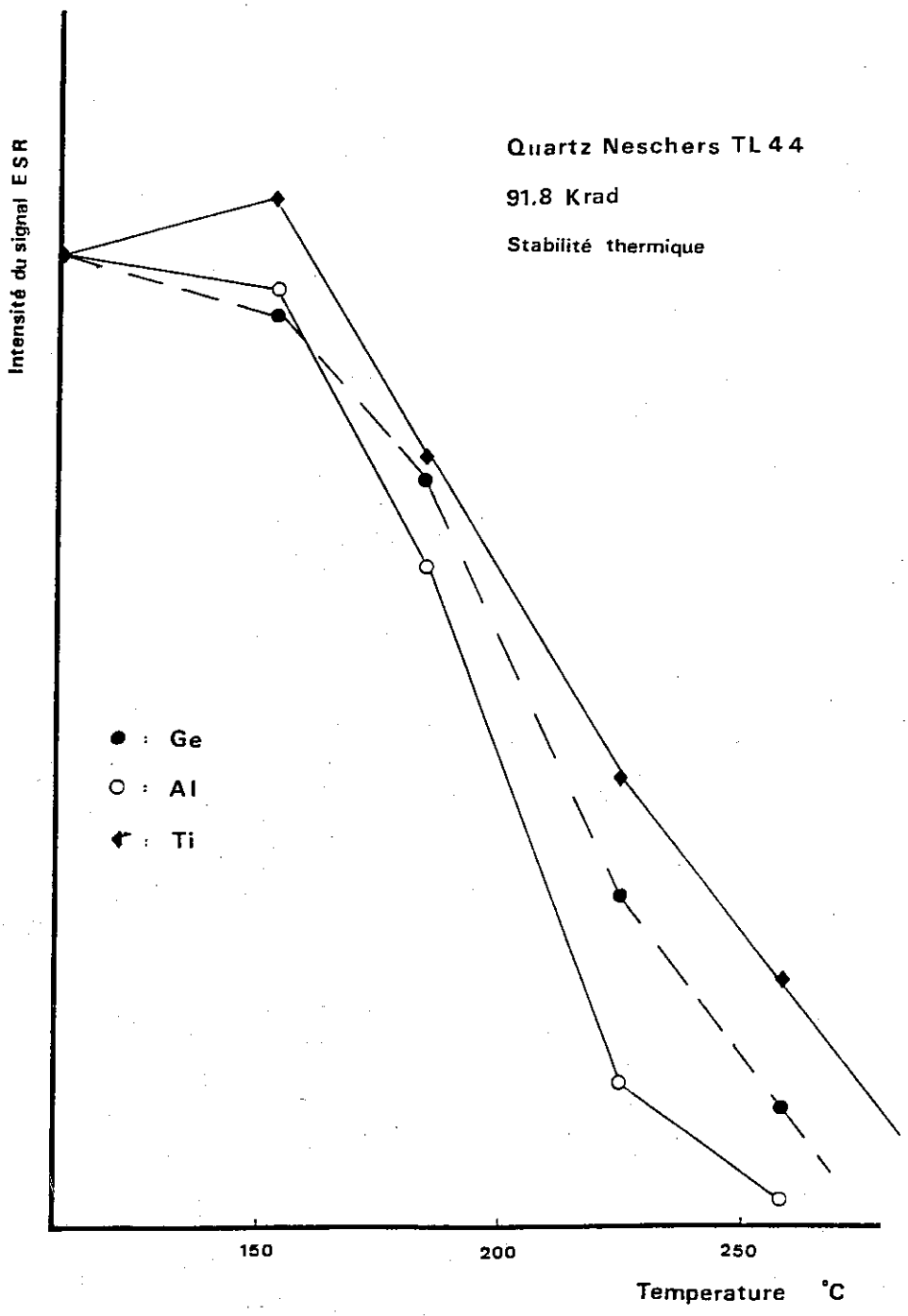



**Fig. 6** - *Isochrones de stabilité thermique, en fonction de la température, pour les centres Al, Ti et Ge pour TL44.*

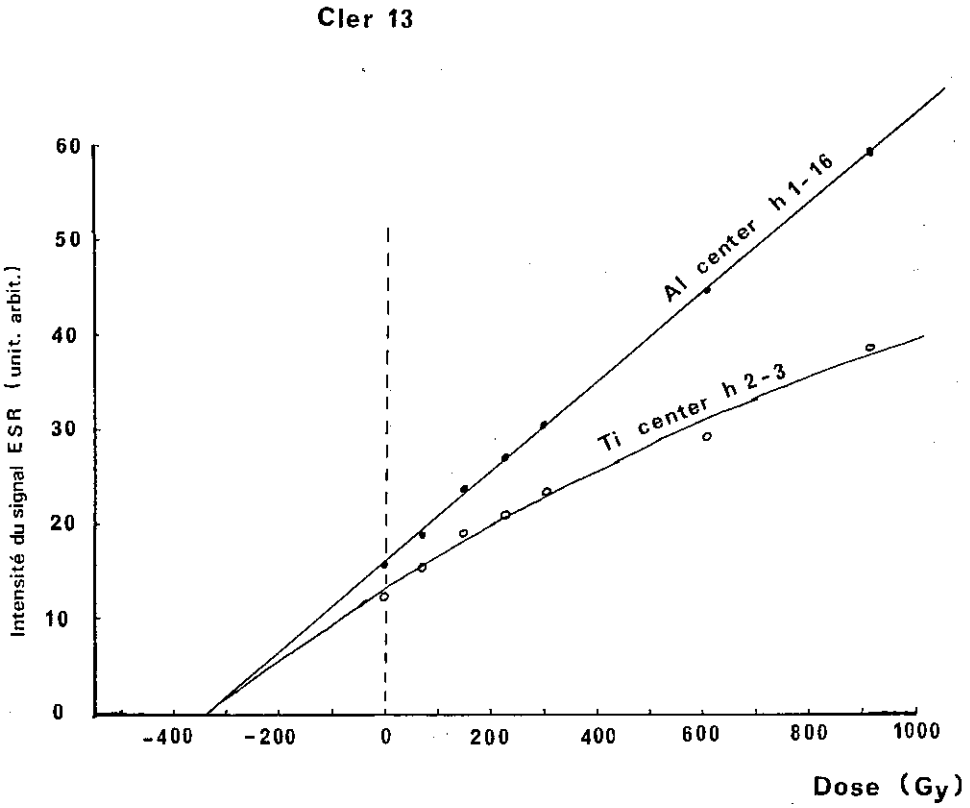



**Fig. 7** - *Courbes de paléodose des centres Al et Ti des quartz de Cler13. Les points correspondent aux valeurs expérimentales et les courbes sont tracées par la méthode des moindres carrés. Cette remarque est valable pour la figure 8.*

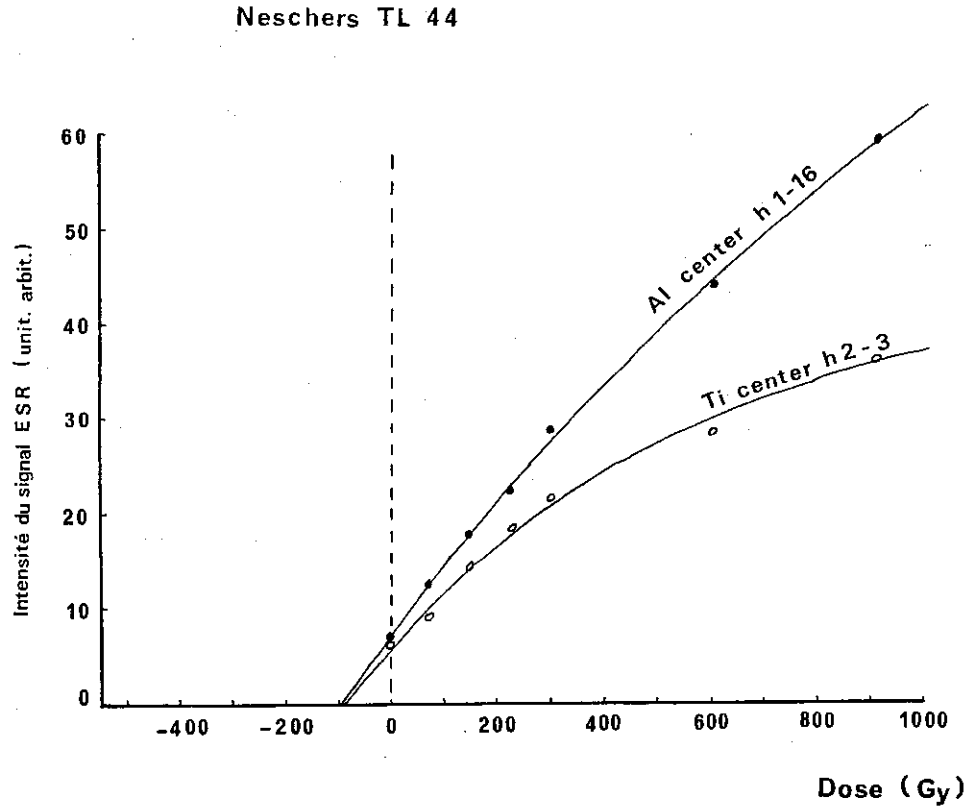



**Fig. 8** - *Courbes de paléodose des centres Al et Ti des quartz de TL44.*

| Terra Amata | E.S.R. Quartz* n° 3155 | TL Silex brulés** n° 195a3 | n° 195a10 |
|---|---|---|---|
| Paléodoses (Gy) | 750 ± 147 | 165 ± 32 | 148 ± 84 |
| Doses annuelles (mGy/an) | | | |
| alpha | 0.15 | 0.33 | 0.19 |
| beta | 1.20 | 0.12 | 0.11 |
| gamma+cosmique | 0.62 | 0.38 | 0.38 |
| total | 1.97 | 0.83 | 0.68 |
| Âges ($10^3$ ans) | 380 ± 80 | 214 | 244 |
| | | 230 ± 40 | |

* Ce travail.
** Wintle et Aitken (1977).

**Tableau 3 -** *Comparaisons, pour Terra Amata, des quartz (3155) et des silex brûlés (195a3 et 195a10).*

***Beaumont et Neschers***

Nous avons également comparé nos résultats obtenus sur Cler13 et TL44 avec plusieurs résultats obtenus par thermoluminescence.

Pour Neschers (tableau 4), les comparaisons se font avec des quartz issus du sédiment ainsi que des plagioclases prélevés dans la coulée de lave qui a cuit ce sédiment.

| | Sédiments TL44 Quartz | | | Lave Plagioclases | |
|---|---|---|---|---|---|
| | E.S.R. Ce travail | Sanzelle* | TL Guérin** | TL Guérin*** | |
| Paléodoses (Gy) Al | 96 | 125 | 75.7 | 110 | 109 |
| Paléodoses (Gy) Ti | 91 | | | | |
| dose annuelle (mGy/an) | 4.80 | 4.67 | 4.73 | 4.20 | 4.01 |
| Âges ($10^3$ ans) | 20 ± 3 | 27 ± 4 | 16 | 28.2 ± 2.3 | 27.2 ± 2.7 |

* Sanzelle et al (1983) : méthode "additive".
** Guérin (1983) *in litteris* : méthode de "normalisation".
*** Guérin (1983).

**Tableau 4 -** *Comparaison pour TL44.*

*Les activités de $^{238}U$, $^{226}Ra$, $^{222}Rn$, $^{228}Ra$ et $^{40}K$ de ces sédiments (TL44 et Cler13) ont été mesurées par spectrométrie gamma (détecteur de Germanium, haute pureté, GeHP). Compte tenu du traitement à l'acide fluorhydrique que ces échantillons ont subi (attaque à HF 40 % pendant 60 minutes), la dose alpha externe est considérée comme étant négligeable. En ce qui concerne la*

## BIBLIOGRAPHIE

GUÉRIN G. (1983) - La Thermoluminescence des plagioclases, méthode de datation du volcanisme : applications au domaine volcanique français : Chaîne des Puys, Mont-Dore et Cezallier, Bas Vivarais. *Thèse de Doctorat d'État Paris,* Université P. et M. Curie.

HUXTABLE J., AITKEN M.J. et BONHOMMET N. (1978) - Thermoluminescence dating of sediment baked by lava-flows of the Chaîne des Puys. *Nature, vol. 275,* 207-209.

Mc MORRIS D.W. (1971) - Impurity color centers in quartz and trapped electron dating : electron spin resonance, thermoluminescence studies. *J. Geophys. Res. 76,* 7875-7887.

MIALLIER D. (1982) - L'usage des détecteurs solides de traces dans le cadre de la datation par Thermoluminescence. *Thèse de troisième cycle,* Clermont-Ferrand.

RAYNAL J.P., PAQUEREAU M.M., DAUGAS J.P., MIALLIER D., FAÏN J. et SANZELLE S. (1985) - Contribution à la datation du volcanisme du Massif Central français par Thermoluminescence des inclusions de quartz et comparaison avec d'autres approches : implications chronostratigraphiques et paléoenvironnementales. *Bull. Assoc. Fr. Étude Quaternaire, 4,* 183-207.

SANZELLE S., FAÏN J. et MIALLIER D. (1983) - Datation par Thermoluminescence d'une coulée volcanique à Neschers (Puy de Dôme). *Physique corpusculaire Clermont Ferrand (PCCF),* rapport interne.

SHIMOKAWA K., IMAI N. et HIROTA H. (1985) - Dating of volcanic rock by E.S.R. *Isotope Geosci., 2,* 365-373.

WINTLE A.G. et AITKEN M.J. (1977) - Thermoluminescence dating of burnt flint : application to a lower paleolithic site, Terra Amata. *Archaeometry 19,* 111-130.

YOKOYAMA Y. et NGUYEN H.V. (1981) - Datation directe de l'Homme de Tautavel par la spectrométrie gamma, non destructive, du crâne humain fossile Arago XX1. *C.R. Acad. Sci. Paris 292,* Série III, 741-744.

YOKOYAMA Y., QUAEGEBEUR J.P. et FALGUÈRES C. (1985) - E.S.R. Dating of quartz from Quaternary sediments : First attempt. *Nuclear Tracks, Vol. 10,* n°4-6, 921-928.

YOKOYAMA Y., FALGUÈRES C. et QUAEGEBEUR J.P. (1986) - E.S.R. Dating of sediment baked by lava-flows : Comparison of palaeodoses for Al and Ti centers. *Proceedings First International Symposium on E.S.R. Dating and Dosimetry,* Ionics, Tokyo, 197-204.

*dose alpha interne, les chiffres utilisés par G. Guérin (1983) ont été repris, de même que pour la dose cosmique. Pour le calcul de la dose beta, nous avons tenu compte du départ du Radon (10 %).*

De même pour Cler13, les résultats obtenus par E.S.R. ont été comparés à des travaux faits par TL sur des quartz extraits du même sédiment (tableau 5). Les âges proposés par Huxtable et al (1978) sont considérés comme des tests d'ancienneté.

| | Sédiments Cler13 Quartz | | | |
|---|---|---|---|---|
| | E.S.R. | Thermoluminescence | | |
| | Ce travail | Miallier* | Huxtable** | |
| Paléodoses (Gy) Al | 325 ± 10 | 183 ± 15 | - | |
| Paléodoses (Gy) Ti | 343 ± 34 | | | |
| dose annuelle (mGy/an) | 4.86 ± 0.49 | 4.45 ± 0.50 | - | |
| Âges ($10^3$ ans) | 67 ± 7 | 41 ± 6 | 50 | 34 |

* Miallier (1982).
** Huxtable et al (1978).

**Tableau 5 -** *Comparaison pour Cler13.*

Pour ces deux échantillons, les doses annuelles calculées à partir des sédiments par les méthodes E.S.R. et TL, sont en bon accord.

## CONCLUSION

D'une façon générale, il apparaît que les âges obtenus par la méthode E.S.R. sont plus vieux que ceux calculés par TL, à l'exception toutefois de l'échantillon de Neschers. Cependant, la concordance des paléodoses obtenues à partir des centres Al et Ti permet d'accorder une bonne crédibilité à la méthode E.S.R. pour la datation des grains de quartz.

De plus, ce travail laisse entrevoir une possible corrélation entre les différents centres observés par E.S.R. et les pics de TL ce qui permettrait d'affiner les moyens de comparaisons entre ces deux méthodes.

## REMERCIEMENTS

Nous remercions H. de Lumley et ses collaborateurs ainsi que J. Faïn et D. Miallier de nous avoir fourni les échantillons.