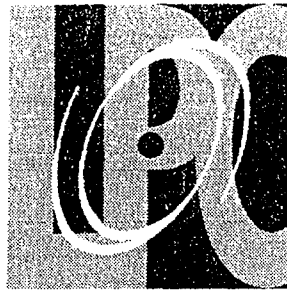




FR0005906



Gestion INIS
Doc. Enreg. le 28/7/2000
N° TRN F.R.000.590.6

Laboratoire de Physique Corpusculaire
de Clermont-Ferrand

Datation par thermoluminescence d'un niveau de Tephra du volcan « TOYA » (Hokkaido, Japon)

S. Sanzelle, Th. Pilleyre, D. Miallier, J. Faïn

*Laboratoire de Physique Corpusculaire de Clermont-Ferrand
IN2P3/CNRS - Université Blaise Pascal, 63177 AUBIERE Cedex France*

Y. Ganzawa

*Hokkaido University of Education, Hakodate
1-2 Hachiman-cho, Hakodate 040, Japan*

32 / 05

PCCF RI 0006

DATATION PAR THERMOLUMINESCENCE D'UN NIVEAU DE TEPHRA DU VOLCAN « TOYA » (Hokkaido, Japon)

S. SANZELLE, Th. PILLEYRE, D. MIALLIER, J. FAÏN
Laboratoire de Physique Corpusculaire
Université Blaise Pascal - IN2P3 - CNRS 63177 Aubière Cedex France.

Yoshihiro GANZAWA
Hokkaido University of Education, Hakodate
1-2 Hachiman-cho, Hakodate 040
Japan

ABSTRACT

Toya caldera which has a diameter of about 10km and a hexagonal form is situated in the southern part of Hokkaido, northern Japan. The water level of the caldera lake is 84 m and the highest altitude of the central dome in the lake, Nakajima is 454 m.

The volume of the volcanic products is estimated to be 20 km³ for the ash fall deposits and 150 km³ for the pyroclastic flows, respectively. The pyroclastic flow deposits cover the surrounding area of the caldera, piling thickly in the north west and south east area.

The volcanic activity is divided into 4 stages of the Toya Pyroclastic Flow Deposits 1 to 4. The final activity of the Toya Pyroclastic Flow Deposits 4 is supposed to be the largest eruption indicating 7 grade of the Volcanic Explosivity Index. The ash fall deposits which have the same source as the Pyroclastic Flow Deposit 4 covers a wide area of the northern part of Japan: over 900x400 km².

This tephra is composed of rhyolitic ash which is rich in glass and associated with hornblende, pyroxene and quartz. The refractive index of glass shards shows a low value between 1.494-1.498 and eulite crystals of one of the orthopyroxene group also indicate a range value of 1.758-1.761.

In a previous work, the age of eruption was estimated by utilising several dating methods and the stratigraphical correlation with other tephra. The ages which resulted from FT (Fission Tracks) dating and TL (Thermoluminescence) dating indicated 130±30 ka and 103-134 ka, respectively. The overall estimated age, received from other information such as the environmental change of mineral marine deposits, has been accepted as 100-120 ka by Quaternary Researchers. Because this tephra can be found widely in the Quaternary field, many researchers can use it as an appropriate age indicator of the 5c or 5d Isotope Stage, the middle age of the Last Internal Glacial Age. However, because the tephra shows such a clear stratigraphical position, it is worthwhile to multiply dating measurements using various techniques, in order to assess the age as precisely as possible. In this view, a new dating program was initiated, using the red TL of quartz grains extracted from the tephra.

The samples studied in the present work came from the southern part of the deposits, around 15 km away from the centre of the caldera. Dating was performed in the frame of a collaboration between Y. G. (Hokkaido) and the TL group of Aubière (France). The TL measurements, using the red signal of xenolithic quartz grains from the tephra, were made at Aubière. Three distinct sets of samples were measured. The first two differ from each other by grain size, 250-350 µm (TOYA2, Aset2) and 150-250 µm (TOYA1, Bset3), and were irradiated in Japan and the third one, 250-350 µm (TOYA2, Cset2) was irradiated at Aubière.

The annual dose rate experienced by the samples during burial was estimated from a compilation of radionuclide contents evaluated in Japan using NAA and in France, using low level gamma spectroscopy (Aubière) and ICPMS (CRPG, Nancy). In situ water content (as dug) was used for correction of annual dose rate. The cosmic contribution was calculated on the basis of the sampling location.

For each set, the palaeodose was estimated using a slide technique : the additive dose response curve was extrapolated using, as a Master Curve, a dose response curve made for a similar sample zeroed in the laboratory. For that purpose a specially developed computerised program was used. It was observed that using a linear fit + intercept correction or using no model (LISA technique) did not give significantly different results. Large age plateaus were got.

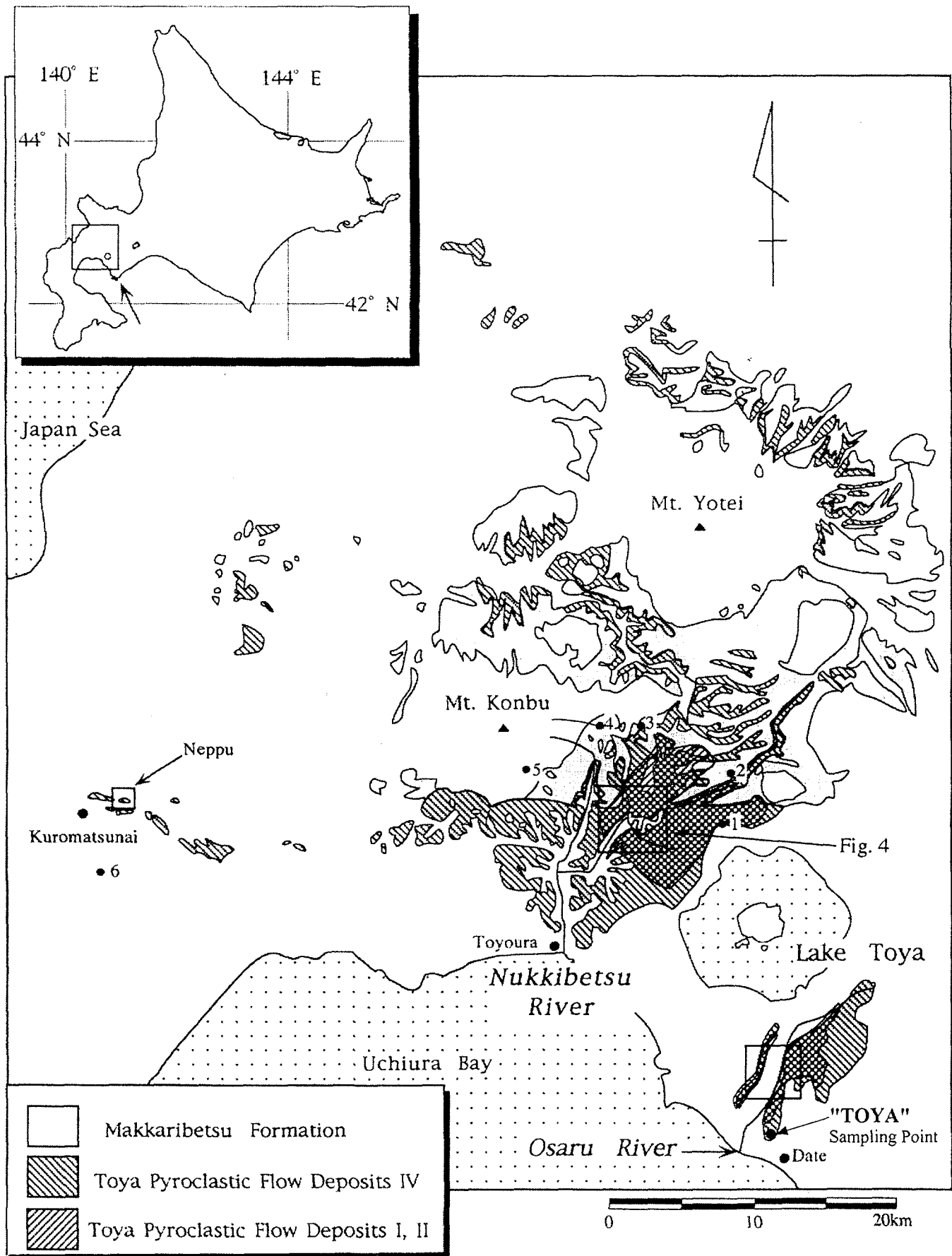


Figure 1

A good agreement was obtained with all the dating results ; this allowed confidence in the averaged age, which finally was :

TOYA (Dr-Td ##) : 81 ± 5 ka.

This age is significantly younger than the previous estimation. Further experiments are needed for interpretation of this discrepancy. They include : (i) trying to measure TL with other minerals from the same tephra levels and (ii) dating other tephra levels (younger and older) from the same sequence.

INTRODUCTION

La caldéra de TOYA est située au nord du Japon (Figure1) dans la partie la plus au sud de Hokkaïdo, elle a un diamètre d'environ 10 km et une forme hexagonale. L'altitude du lac de la caldéra est de 84 m et celle du dôme central dans le lac Nakajima est de 454 m.

Le volume des produits volcaniques émis est estimé à 20 km³ pour les dépôts de cendres et 150 km³ pour les écoulements pyroclastiques. Les dépôts d'écoulements pyroclastiques couvrent tout le pourtour de la caldéra, mais ils sont plus abondants dans les régions du nord ouest et du sud est.

L'activité volcanique est divisée en 4 étapes correspondantes aux 4 dépôts d'écoulement pyroclastiques de TOYA. L'activité finale du dépôt d'écoulement pyroclastique TOYA 4 est supposée être une grosse éruption classée à l'échelle 7 de l'index des explosions volcaniques. Les dépôts de cendres, lesquels ont une source identique au dépôt d'écoulement pyroclastique 4, couvrent une vaste étendue dans la partie nord du Japon, supérieure à 900 x 400 km².

Cette tephra est composée de cendres rhyolitiques riches en verre, associée à des hornblendes, des pyroxènes et des quartz. L'indice de réfraction (utilisé pour caractériser les tephra) des morceaux de verres montre une faible valeur entre 1.494 et 1.498 et celui des cristaux d'eulite appartenant au groupe des orthopyroxènes indiquent une valeur comprise entre 1.758 et 1.761.

L'âge de l'éruption volcanique a été estimé par l'utilisation de différentes méthodes de datation et par corrélation stratigraphique avec d'autres tephra. Les âges obtenus par la méthode de datation par FT (Traces de Fission) et par TL (**Thermoluminescence**) indiquent respectivement 130 ± 30 ka et 103-134 ka (OKUMURA, SAMUKAWA. (1984)), mais les conditions expérimentales ne sont pas connues. L'âge global estimé s'appuie également sur le changement environnemental des dépôts minéraux marins qui ont été reconnus entre 100-120 ka par les chercheurs en géologie du quaternaire. Parce que cette tephra peut se trouver largement répandue dans le domaine du quaternaire, plusieurs chercheurs l'ont utilisée comme un indicateur d'âge approprié pour le stade isotopique 5c ou 5d, l'âge moyen du dernier âge inter-glaciaire. Comme la position stratigraphique de cette tephra est clairement définie il faut essayer de préciser son âge en multipliant les mesures avec des méthodes de datation absolue. Dans le travail présenté ici, on a utilisé la TL rouge du quartz.

L'échantillon étudié dans ce travail, qui sera référencé ci dessous « **TOYA (Dr-td ##)** », a été prélevé dans les dépôts du secteur sud, à environ 15 km du centre de la caldéra. Il a fait l'objet d'une datation réalisée par l'équipe de TL du LPC à Aubière en collaboration avec Y. Ganzawa. A cet effet, on a appliqué la technique de datation par thermoluminescence à des grains de quartz.

Après échantillonnage sur le terrain, extraction et préparation des grains de quartz à Hakodate en vue de leur datation, les mesures de TL ont été effectuées à Aubière. Trois lots distincts de grains de quartz ont été étudiés. Les deux premiers diffèrent par leur granulométrie, respectivement 250-350 µm (**ASET2**) et 150-250 µm (**BSET3**), et ont été irradiés au Japon, le troisième dans la fraction 250-350 µm (**CSET2**) a été irradié à Aubière.

En ce qui concerne l'évaluation de la dose annuelle d'irradiation à laquelle ont été soumis les grains de quartz, elle est le résultat d'une intercomparaison entre des mesures de teneurs en radioéléments effectuées au Japon, notamment par activation neutronique, des mesures effectuées au LPC par spectroscopie gamma et des mesures effectuées par le CRPG à Nancy par ICPMS.

L'ensemble des résultats est présenté ci-dessous. Les âges obtenus par les différentes approches développées sont compatibles entre eux, ce qui permet de proposer leur moyenne comme âge de la tephra 4 de **TOYA**.

PREPARATION DES ECHANTILLONS

Le prélèvement TOYA (Dr-td ##) a été échantillonné au sud du secteur concerné à environ 15 km du centre de la caldéra près de « Date City ». L'unité montre un dépôt important incluant principalement des gros fragments de roche et un certain nombre de ponces angulaires de toutes tailles caractérisées par l'existence de nombreux grains de quartz. L'unité stratigraphique, à laquelle correspond le lieu d'échantillonnage, appartient à l'écoulement pyroclastique n°4 de TOYA. C'est sur cet échantillon qu'ont été effectuées toutes les datations TL.

L'échantillon a été ensuite stocké dans un sac étanche pour permettre la détermination de l'humidité nécessaire au calcul de la dosimétrie annuelle délivrée sur le site de prélèvement.

Dans le cadre de ce travail, la méthode utilisée a été celle des inclusions de quartz (FLEMING S.J. (1970)). La préparation a été réalisée à Hakodate ; après un broyage léger de l'échantillon, des grains de quartz ont été extraits dans différentes granulométries (150-250, 250-350 et 350-450 μm), mais pour la TL, n'ont été retenus que les échantillons BSET3 (150-250 μm), ASET2 et CSET2 (250-350 μm).

Les échantillons ont ensuite subi les traitements minéralogiques usuels et les traitements chimiques suivants:

- a) NaOH 6mol 15mn sous ultrasons
- b) HCl 6mol 15mn sous ultrasons
- c) HF 16% 10h sous ultrasons

Ainsi préparés, les quartz ont été triés à la loupe binoculaire, sous éclairage atténué, pour ne retenir que ceux exempts de toute impureté visible.

NB : Il est à remarquer que cette technique de préparation qui est celle utilisée à Hakodate ne correspond pas tout à fait à celle en routine au laboratoire de Clermont-Ferrand.

- l'influence des ultrasons sur la TL des échantillons n'étant pas ou peu connue, nous évitons d'utiliser cette technique.
- de plus, tout au long de la préparation nous prenons beaucoup de précautions pour ne pas illuminer nos échantillons et pour cela nous travaillons en lumière rouge atténuée.
- enfin, nous ne trions pas les quartz que nous mesurons ; nous prenons la totalité de l'échantillon obtenu après traitement chimique pour avoir la meilleure représentation statistique possible de l'échantillon.

Le traitement à HF élimine la partie externe des grains irradiés par les particules alpha, aussi cette contribution ne sera pas prise en compte dans le calcul de la dosimétrie annuelle.

Compte tenu des objectifs que nous nous étions fixés : intercomparaison des dispositifs d'irradiation et comparaison des âges TL obtenus en utilisant 2 granulométries différentes, les échantillons ont été irradiés de la façon suivante :

- La quantité de quartz disponible, dans la granulométrie (250-350 μm), étant suffisante, l'échantillon a été divisé en deux parties référencées ASET2 et CSET2.

- ASET2 a été irradié au japon.**

L'irradiation gamma a été obtenue en utilisant une source de cobalt 60, laquelle est contrôlée par l'Institut de technologie de l'Université d'Hokkaido à Sapporo. L'intensité de cette source était de 121Tbq (3271Ci) en avril 1999, et pour notre irradiation celle-ci a été ajustée à 10 mGy/h en employant un écran en Fer de 8 cm d'épaisseur placé près de la source ; l'échantillon étant positionné à 65,7 cm de celle-ci.

- CSET2 a été irradié à Clermont-Ferrand.**

L'irradiateur utilisé (source de ^{137}Cs) délivrait 47,14 mGy/s le 28/7/1997.

- Pour BSET3 l'échantillon a été irradié au japon.

Chaque échantillon a ensuite été divisé en deux parties, la première a reçu des doses additives permettant d'obtenir la courbe TL de 1^{ère} lecture, la seconde a été remise à zéro en la soumettant à une température de 400°C pendant une nuit suivie d'un refroidissement lent, puis elle a reçu des doses additives permettant d'obtenir la courbe de TL dite de 2^{ème} lecture.

- Pour la première lecture, les échantillons ASET2 et BSET3 ont reçu une dose allant de l'irradiation naturelle à des doses ajoutées d'environ 400 Gy et pour CSET2 de 420 Gy.
- Pour la seconde lecture les échantillons ASET2 et BSET3 ont reçu des doses s'étalant de 0 à environ 500 Gy et pour CSET2 de 650 Gy.

DOSIMETRIE ANNUELLE

L'évaluation de la dose annuelle reçue par les grains de quartz sur le lieu de leur enfouissement a nécessité la détermination de :

- l'humidité du prélèvement; celui-ci a été pesé tel quel, puis séché pendant 24 h dans une étuve à 60°C avant d'être pesé à nouveau.
- la dose gamma $D\gamma$ in situ ; celle-ci n'ayant pu être réalisée sur le site, nous avons été obligé de la calculer à partir des mesures de concentrations en radioéléments. Cela suppose que le prélèvement soit représentatif du milieu encaissant donc que le milieu soit homogène. Ce n'est pas le cas car on n'a pris en compte qu'une très faible masse alors que l'on constate la présence de fragments de roche de plusieurs centimètres. (le milieu n'est donc pas très bien représenté à partir d'une mesure quasi ponctuelle). La différence essentielle étant que sur le terrain on peut prendre en compte un volume de plus de 1m³ (avec possibilité de contenir des blocs) alors qu'au laboratoire la mesure se fait sur quelques centaines de grammes avec éventuellement un problème de représentativité par rapport au milieu encaissant. (des mesures complémentaires avec un dosimètre « thermoluminescent » de type CaF₂ sont en cours pour préciser, si besoin est, cette dose)
- la composition chimique du prélèvement (majeurs) pour calculer les corrections liées à la composition. Celle-ci est nécessaire et elle a été déterminée par ICPMS par le CRPG (Nancy).

Echantillon TOYA	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂	MnO	H ₂ O 1000°C
Dr-td ##	71.62	14.54	2.51	0.46	1.54	4.02	1.5	0.21	0.09	3.35

- la dose bêta $D\beta$ et le facteur d'atténuation correspondant prenant en compte la taille des grains : coefficients (MEJDAHL (1979) et SOUMANA S. (1993) et FAÏN. J. (1999)).
- la correction à apporter pour tenir compte de la différence de composition entre l'échantillon prélevé et le quartz que l'on mesure. (ZIMMERMAN D. W (1971) et PILLEYRE Th (1991)).
- la contribution du rayonnement cosmique sur le lieu de prélèvement.
- la dose alpha interne $D\alpha$. Le quartz est généralement supposé exempt de radioactivité, mais selon l'origine de celui-ci, cette hypothèse est plus ou moins valide. Dans le cas présent le quartz nous ayant été indiqué exempt de radioactivité, cette dose a été prise égale à zéro.

La dose annuelle totale est alors donnée par :

$$D \text{ annuelle totale} = D\gamma + D\beta + D_{\text{cosmique}}$$

avec les doses annuelles partielles suivantes :

$$D\gamma = q(1-h)[D\gamma(^{40}\text{K}) + D\gamma(\text{U}) + D\gamma(\text{Th})]$$

$$D\beta = q(1-h)[\chi(^{40}\text{K}).D\beta(^{40}\text{K}) + \chi(\text{U}).D\beta(\text{U}) + \chi(\text{Th}).D\beta(\text{Th})]$$

q rapport "humide" = TEL(quartz)/TEL(prélèvement) avec TEL=transfert d'énergie linéique
remarque : ce rapport prend en compte la composition chimique de l'échantillon.

h teneur relative en eau du prélèvement $h = (\text{poids humide} - \text{poids sec}) / \text{poids humide}$

χ facteur correctif prenant en compte la granulométrie des grains de quartz

D_{cosmique} prenant en compte la latitude, l'altitude et la profondeur du prélèvement. (PRESCOTT J.R, et al (1988)(1994)).

Les concentrations en radioéléments des échantillons ont été déterminées au Japon en utilisant deux techniques. L'Uranium et le Thorium ont été mesurés par la méthode d'activation neutronique (INAA) et le Potassium a été estimé par absorption atomique. Ces concentrations ont également été mesurées d'une part en spectrométrie gamma au laboratoire de Clermont Ferrand et d'autre part au CRPG de Nancy. **Des différences encore inexpliquées et non négligeables sont apparues ce qui fait que nous avons retenu la moyenne de l'ensemble de nos mesures.**

• Site « TOYA (Dr-td ##) » :

humidité $h = 15.97 \%$ (ou $H = 1,19$ avec $H = \text{poids humide}/\text{poids sec}$)

remarque : cette valeur obtenue le jour du prélèvement est prise par défaut dans les calculs dans l'ignorance des valeurs moyennes pendant la durée de l'enfouissement. (une étude de l'évolution de l'humidité en fonction des saisons est actuellement en cours)

rapport "humide" $q = 0,9738$ (correction quartz/prélèvement PILLEYRE (1991))

détermination des concentrations en radioéléments :

Nous avons vérifié que la série de l'Uranium était en équilibre radioactif.

Les concentrations en radioéléments ramenées à un milieu sec sont les suivantes :

		CONCENTRATIONS EN RADIOELEMENTS
⁴⁰ K	% K2O	1,51 ± 0,13
²³⁸ U	ppm	1,60 ± 0,11
²³² Th	ppm	5,65 ± 0,72

dose gamma

	Débits de Dose mGy / 1% Ou mGy / ppm ADAMIEC - AITKEN 1999	Facteurs Correctifs		DOSE GAMMA ANNUELLE
		Quartz/Sol Q PILLEYRE (1991)	Humidité 1-h PILLEYRE (1991)	A partir des teneurs en radioéléments (mGy/an)
⁴⁰ K	0,202	0,9738	0,8403	0,250 ± 0,021
U	0,112	0,9738	0,8403	0,147 ± 0,010
Th	0,0476	0,9738	0,8403	0,220 ± 0,028
			Total	0,616 ± 0,037

dose bêta

a) granulométrie 150-250µm (200µm) « BSET3 »

	Débits de Dose mGy / 1% Ou mGy / ppm ADAMIEC - AITKEN 1998	Facteurs Correctifs			DOSE BETA ANNUELLE
		Atténuation β χ (150-250µm) FAÏN 1999	Quartz/Sol q PILLEYRE (1991)	Humidité 1-h PILLEYRE (1991)	A partir des teneurs en radioéléments (mGy/an)
⁴⁰ K	0,649	0,924	0,9738	0,8403	0,741 ± 0,064
U	0,143	0,862	0,9738	0,8403	0,162 ± 0,011
Th	0,0273	0,792	0,9738	0,8403	0,100 ± 0,013
				Total	1,003 ± 0,066

b) granulométrie 250-350µm (300µm) « ASET2 et CSET2 »

	Débits de Dose mGy / 1% Ou mGy / ppm ADAMIEC - AITKEN 1998	Facteurs Correctifs			DOSE BETA ANNUELLE
		Atténuation β χ (250-350µm) FAÏN 1999	Quartz/Sol q PILLEYRE (1991)	Humidité 1-h PILLEYRE (1991)	A partir des teneurs en radioéléments (mGy/an)
⁴⁰ K	0,649	0,889	0,9738	0,8403	0,713 ± 0,061
U	0,143	0,821	0,9738	0,8403	0,154 ± 0,011
Th	0,0273	0,745	0,9738	0,8403	0,094 ± 0,012
				Total	0,961 ± 0,063

dose cosmique

0,08 ± 0,02 mGy/an

dose alpha interne

négligée

Dose annuelle totale obtenue à partir des teneurs en radioéléments:

BSET3 1699 ± 78 µGy/an

ASET2 et CSET2 1657 ± 76 µGy/an

(avec correction d'humidité et correction de composition entre quartz et sol proposée par PILLEYRE Th (1991)).

Influence du type de corrections (Quartz/Sol + Humidité) sur la Dose annuelle totale:

Pour cette étude, nous n'avons considéré que la granulométrie 250-350 μm .

Les calculs précédents ont été complétés en utilisant la correction d'humidité et la correction de composition entre quartz et sol proposée par ZIMMERMAN D.W (1971) mais présentée différemment pour la prise en compte de l'humidité que l'on mesure. Les résultats sont les suivants:

	Débits de Dose mGy / 1% ou mGy / ppm ADAMIEC - AITKEN 1998	Facteurs Correctifs		DOSE GAMMA ANNUELLE
			Quartz/Sol + Humidité	A partir des teneurs en radioéléments (mGy/an)
⁴⁰ K U Th	0,202		PILLEYRE (1991) $q(1-h)=q(1/H)$ $0,9738*(1/H)$	0,616 \pm 0,037
	0,112 0,0476		ZIMMERMAN (1971) $1/(1,14*H-0,14)$	0,619 \pm 0,037

	Débits de Dose mGy / 1% ou mGy / ppm ADAMIEC - AITKEN 1998	Facteurs Correctifs		DOSE BETA ANNUELLE
		Atténuation β χ (250-350 μm) FAÏN 1999	Quartz/Sol + Humidité	A partir des teneurs en radioéléments (mGy/an)
⁴⁰ K U Th	0,649	0,889	PILLEYRE (1991) $q(1-h)=q(1/H)$ $0,9738*(1/H)$	0,961 \pm 0,063
	0,143 0,0273	0,821 0,745	ZIMMERMAN (1971) $1/(1,25*H-0,25)$	0,949 \pm 0,063

Les doses annuelles dues au rayonnement cosmique et aux particules alpha sont les mêmes que précédemment.

Dose annuelle totale à partir des teneurs en radioéléments

Correction Pilleyre 1657 \pm 76 $\mu\text{Gy}/\text{an}$

Correction Zimmerman 1648 \pm 76 $\mu\text{Gy}/\text{an}$

Conclusion :

Les 2 types de correction donnent dans ce cas précis une différence très faible de l'ordre de 1%. L'incertitude sur la dose ne prend en compte que les erreurs statistiques dues aux différentes composantes de la dose totale. Elle apparaît très faible au regard de la non connaissance de l'évolution dans le passé des radioéléments présents dans le sol en fonction de l'humidité.

THERMOLUMINESCENCE

L'âge présumé du site étant compris entre 100 ka et 130 ka, nous avons décidé d'utiliser la thermoluminescence rouge (TLR) du quartz (MIALLIER D. *et al.*, (1991)) car elle ne présente pas de fading dans un grand domaine chronologique.

Pour éliminer les pics basses températures instables dus aux irradiations induites artificiellement nous avons effectué la lecture des échantillons après une attente de quelques jours après l'irradiation.

La thermoluminescence a ensuite été mesurée à travers un filtre rouge (Schott 610FG) et enregistrée de 100°C à 450°C avec une vitesse de chauffage de 5°C/s.

Résultats expérimentaux

Les courbes de TL en fonction de la température ont été obtenues pour des doses additives croissantes (moyenne d'environ 4 à 6 courbes individuelles), elles présentent de façon générale une succession de pics dont le principal (qui est appelé le « pic rouge » du quartz) est situé vers 370°C. On constate que la température correspondant au maximum de ce pic évolue légèrement en fonction de la dose ajoutée et de plus on s'aperçoit que la TL du quartz ne présente pas de saturation jusqu'à une dose ajoutée d'environ 500 à 600 Gy donc qu'une datation est sûrement possible.

Pour obtenir la paléodose à partir des courbes de croissance TL obtenues en 1^{ère} et en 2^{ème} lecture, nous avons retenu la méthode de glissement LISA (SANZELLE S. *et al*, (1996)) et l'extrapolation linéaire de la 1^{ère} lecture avec correction de supra-linéarité en utilisant une 2^{ème} lecture.

Pour ces 2 méthodes, nous avons seulement retenu la pondération pond2 (SANZELLE S. *et al*, (1993)).

Nous appellerons P la paléodose, Pp la paléodose partielle et dP la correction de paléodose obtenue avec la 2^{ème} lecture.

■ BSET3

Les courbes de TL en fonction de la température (Figures 2 et 3), pour des doses ajoutées croissantes, montrent très peu de différence de forme entre 1^{ère} et 2^{ème} lecture. La courbe de TL naturelle semble composite et de 150°C à 370°C, on constate la présence résiduelle de 3 pics secondaires particulièrement mis en évidence en fonction des doses ajoutées tant en 1^{ère} qu'en 2^{ème} lecture; la croissance de ceux-ci est différente de celle du pic principal en 1^{ère} lecture et peu différente en 2^{ème} lecture.

Les courbes de croissance TL additive (établies au maximum du pic) en fonction de la dose en 1^{ère} et en 2^{ème} lecture (Figure 4) sont tout à fait classiques et elles présentent à peu près la même évolution. La TL naturelle est loin d'être à saturation, la courbe de croissance de 1^{ère} lecture augmente presque linéairement avec la dose jusqu'à environ 200 Gy puis continue d'augmenter mais de façon plus faible au delà sans pour autant atteindre la saturation. La courbe de croissance de 2^{ème} lecture présente un comportement identique avec toutefois une très légère sensibilisation, elle est donc parfaitement utilisable pour permettre l'extrapolation de la 1^{ère} lecture. Il est à remarquer que cette courbe présente une supralinéarité dont il faut absolument tenir compte.

La paléodose obtenue donne pour :

a) la méthode LISA

$$P = 145 \pm 8 \text{ Gy}$$

b) l'extrapolation linéaire

Compte tenu de l'allure de la courbe de croissance de 1^{ère} lecture nous avons pu réaliser une extrapolation linéaire et nous avons utilisé la 2^{ème} lecture pour faire une correction de paléodose. L'extrapolation linéaire de 0 à 200 Gy de la courbe de 1^{ère} lecture permet d'obtenir une paléodose de:

$$P = Pp \pm dP = 144 \pm 12 \text{ Gy} \quad (P = 129 \pm 11 ; dP = 15 \pm 2)$$

avec dP la correction de paléodose tenant compte de la 2^{ème} lecture extrapolée linéairement entre 0 et 300 Gy

Les 2 méthodes donnent des résultats identiques (à la température du pic) et les plateaux de paléodose (Figure 5) calculés avec LISA et avec l'extrapolation linéaire entre -15°C et +15°C par rapport à la température de pic sont quasiment constant dans ce domaine.

Remarque : Les courbes de croissances ont été obtenues en considérant la TL correspondant au maximum du pic pour chaque dose, ce qui revient à recalculer les courbes en température.

■ ASET2

Les courbes de TL en fonction de la température (Figures 6 et 7), pour des doses ajoutées croissantes montrent peu de différence de forme entre 1^{ère} et 2^{ème} lecture. La courbe de TL naturelle semble là encore composite et de 150°C à 370°C on constate la présence résiduelle de 3 pics secondaires, particulièrement mis en évidence en fonction des doses ajoutées tant en 1^{ère} qu'en 2^{ème} lecture; la croissance de ceux-ci étant différente de celle du pic principal.

Les courbes de croissance, TL additive (établies au maximum du pic) en fonction de la dose en 1^{ère} et en 2^{ème} lecture (Figure 8), sont tout à fait classiques et elles présentent à peu près la même forme. La TL naturelle est loin d'être à saturation, la courbe de croissance de 1^{ère} lecture augmente presque linéairement avec la dose jusqu'à environ 200 Gy puis continue d'augmenter mais de façon plus faible au delà avec une tendance à la

Figure 2 : Courbes de Thermoluminescence en 1 ère lecture

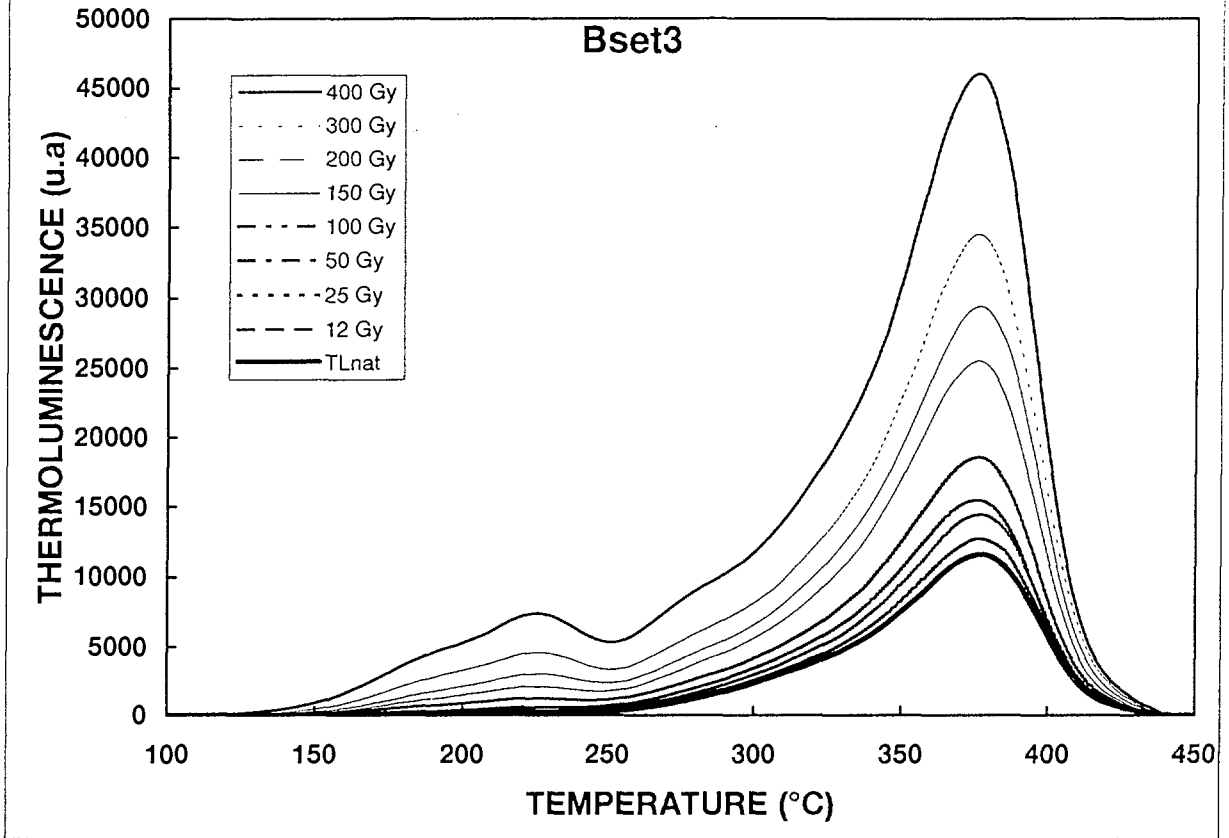


Figure 3 : Courbes de Thermoluminescence en 2 ième lecture

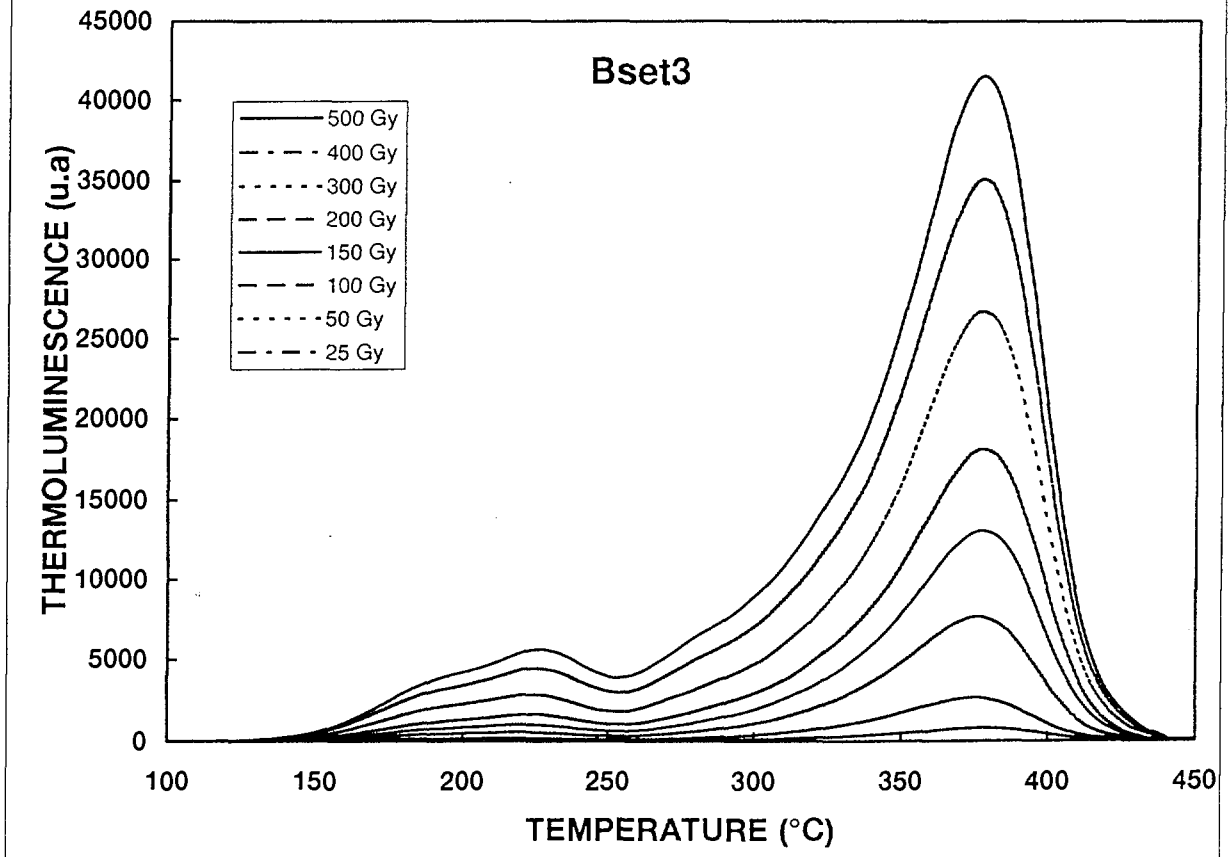


Figure 4 : Courbes de croissance de Thermoluminescence

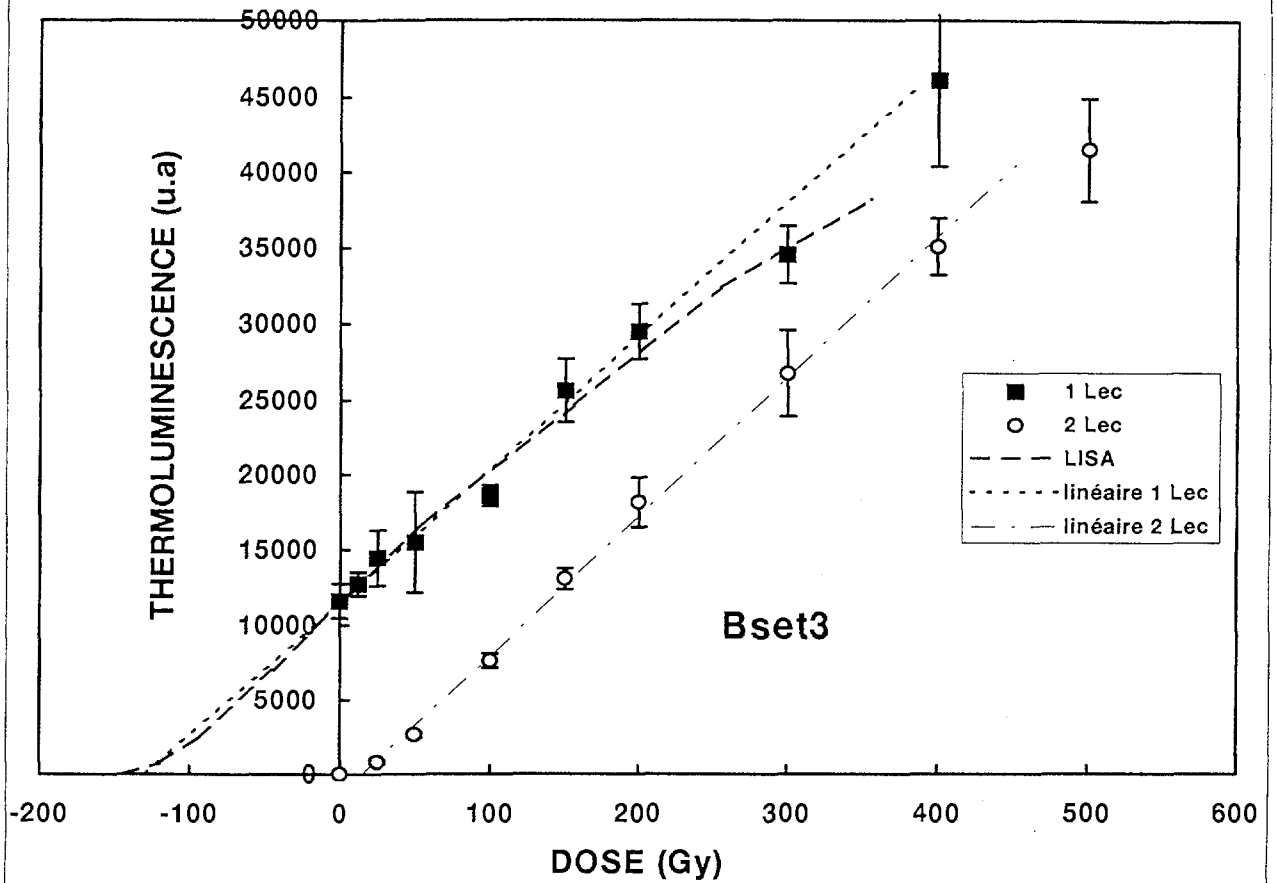


Figure 5 : Plateau des paléodoses pour différents types de pondération

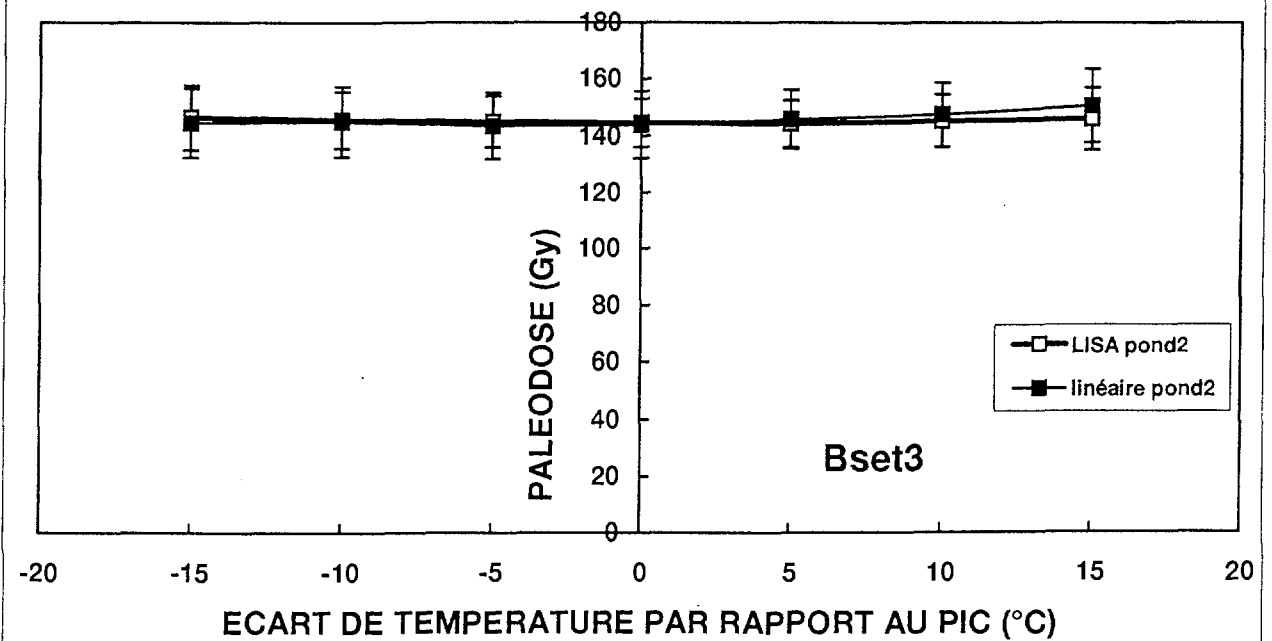


Figure 6 : Courbes de Thermoluminescence en 1 ère lecture

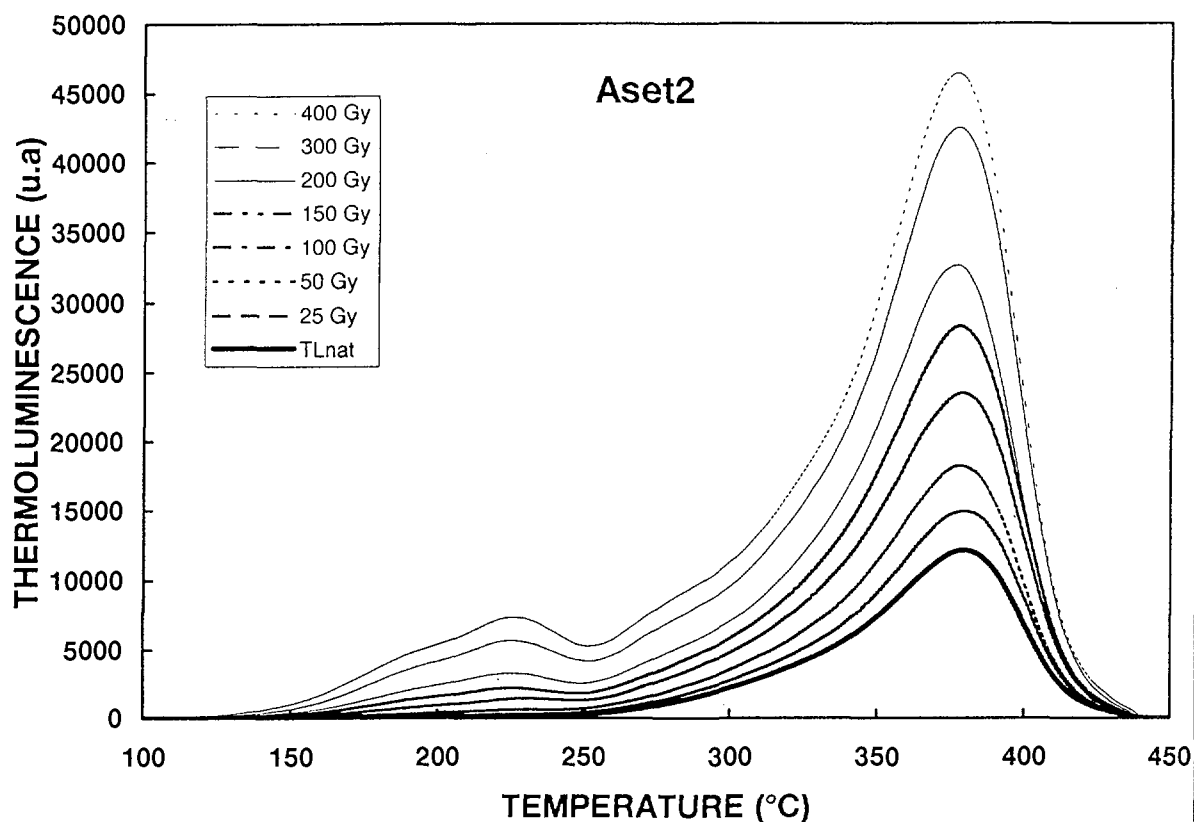
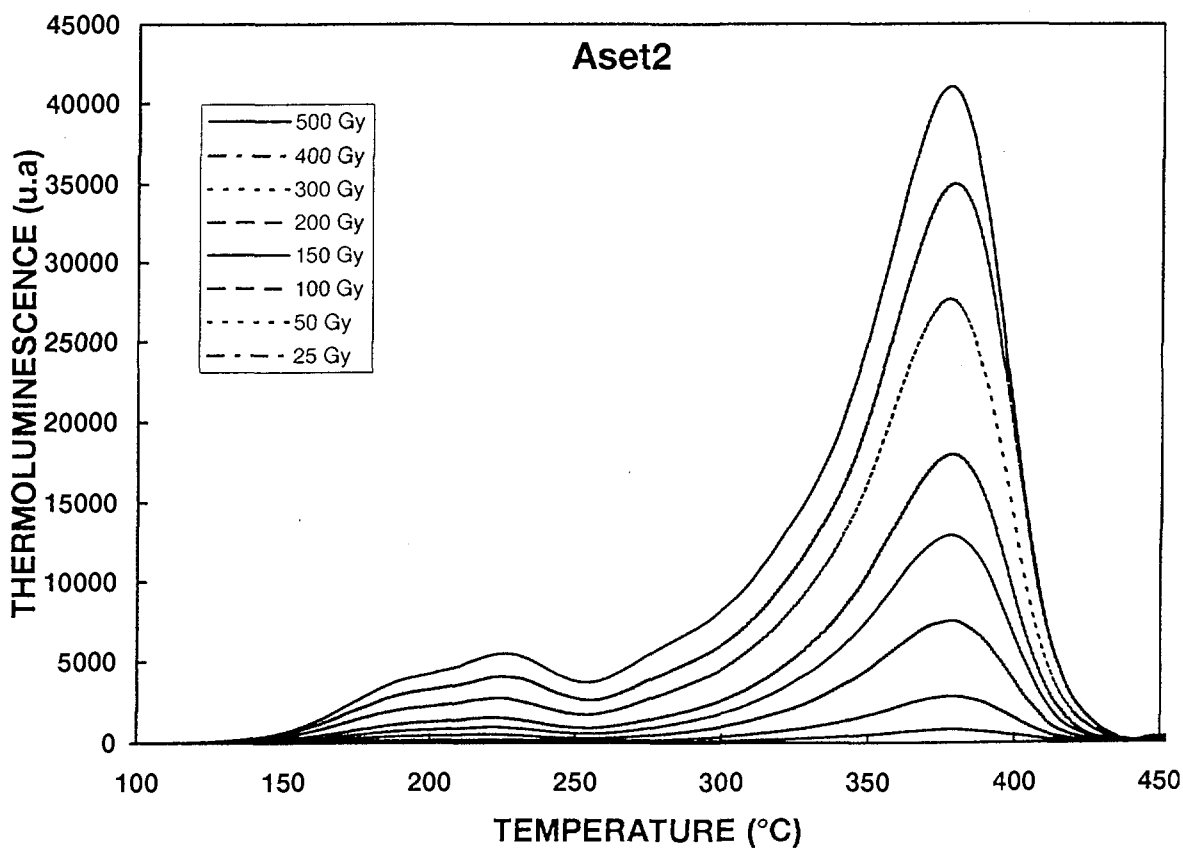


Figure 7 : Courbes de Thermoluminescence en 2 ième lecture



saturation. La courbe de croissance de 2^{ème} lecture présente un comportement identique avec une légère supra-linéarité à faible dose, elle est donc là encore parfaitement utilisable pour permettre l'extrapolation de la 1^{ère} lecture.

La paléodose donne pour :

a) la méthode LISA

$$P = 130 \pm 9 \text{ Gy}$$

b) l'extrapolation linéaire

Pp est obtenu par extrapolation de la courbe de 1^{ère} lecture entre 0 à 150 Gy.

dP est obtenu par extrapolation de la courbe de 2^{ème} lecture entre 27 et 300 Gy.

$$P = Pp \pm dP = 137 \pm 17 \text{ Gy} \quad (Pp = 117 \pm 17 ; dP = 20 \pm 5)$$

Comme pour BSET3, les 2 méthodes de détermination de paléodose donnent des résultats comparables et les plateaux de paléodose calculés avec LISA et avec l'extrapolation linéaire (Figure 9) sont presque constants entre -15°C et +15°C par rapport à la température de pic. Ils mettent en évidence un écart à peu près identique entre les 2 méthodes, mais compte tenu des incertitudes statistiques de calcul les résultats sont donc compatibles (il faut remarquer que les barres d'erreur correspondent à 1 écart type).

■ CSET2

Les courbes de TL en fonction de la température (Figures 10 et 11) ont le même comportement que BSET3 et ASET2. Les courbes de croissance TL en fonction de la dose en 1^{ère} et en 2^{ème} lecture (Figure 12) sont assez semblables et elles montrent que la TL naturelle est loin d'être saturée. La courbe de 1^{ère} lecture augmente de façon linéaire avec la dose jusqu'à environ 180 Gy puis subit un palier avant d'augmenter à nouveau au delà avec une pente plus faible (sans pour autant atteindre la saturation). La 2^{ème} lecture peut être considérée comme linéaire de 0 à environ 300 Gy et ensuite, on constate comme en 1^{ère} lecture la présence d'un palier suivi d'une croissance avec une pente plus faible au delà.

La paléodose obtenue pour CSET2 par les 2 méthodes précédemment utilisées donne pour :

a) la méthode LISA

$$P = 132 \pm 4 \text{ Gy}$$

b) l'extrapolation linéaire

Compte tenu de l'allure de la courbe de croissance de 1^{ère} lecture nous avons pu réaliser une extrapolation linéaire et nous avons utilisé la 2^{ème} lecture pour faire une correction de paléodose. L'extrapolation linéaire de 0 à 180 Gy de la courbe de 1^{ère} lecture permet d'obtenir une paléodose de:

$$P = Pp \pm dP = 139 \pm 7 \text{ Gy} \quad (P = 121 \pm 7 ; dP = 18 \pm 1)$$

avec dP la correction de paléodose tenant compte de la 2^{ème} lecture extrapolée linéairement entre 0 et 300 Gy

Comme dans le cas précédent les 2 méthodes semblent à même de donner des résultats satisfaisants. Les plateaux de paléodose calculés avec LISA et avec l'extrapolation linéaire (Figure 13) sont identiques compte tenu des incertitudes statistiques avec lesquelles les paléodoses ont été déterminées. De plus les résultats sont relativement constants entre -15°C et +15°C par rapport à la température de pic

ESTIMATION DE L'AGE

Nous présenterons pour TOYA (Dr-td ##) les âges obtenus avec chaque méthode de détermination de paléodose et avec la pondération pond2. Les incertitudes totales (statistique + systématique) sont données avec un écart type.

Ref TOYA Dr-td ##	Irradiation γ	Granulométrie μm	Dose Annuelle ($\mu\text{Gy/a}$)	PALEODOSE (Gy)		AGE (ka)	
				LISA	LINEAIRE	LISA	LINEAIRE
ASET2	Japon	250-350	1657 \pm 76	130 \pm 13	137 \pm 20	79 \pm 9	82 \pm 13
BSET3	Japon	150-250	1699 \pm 78	145 \pm 13	144 \pm 15	85 \pm 9	85 \pm 10
CSET2	Clermont-Ferrand	250-350	1657 \pm 76	132 \pm 10	139 \pm 12	80 \pm 7	84 \pm 8

Figure 8 : Courbes de croissance de Thermoluminescence

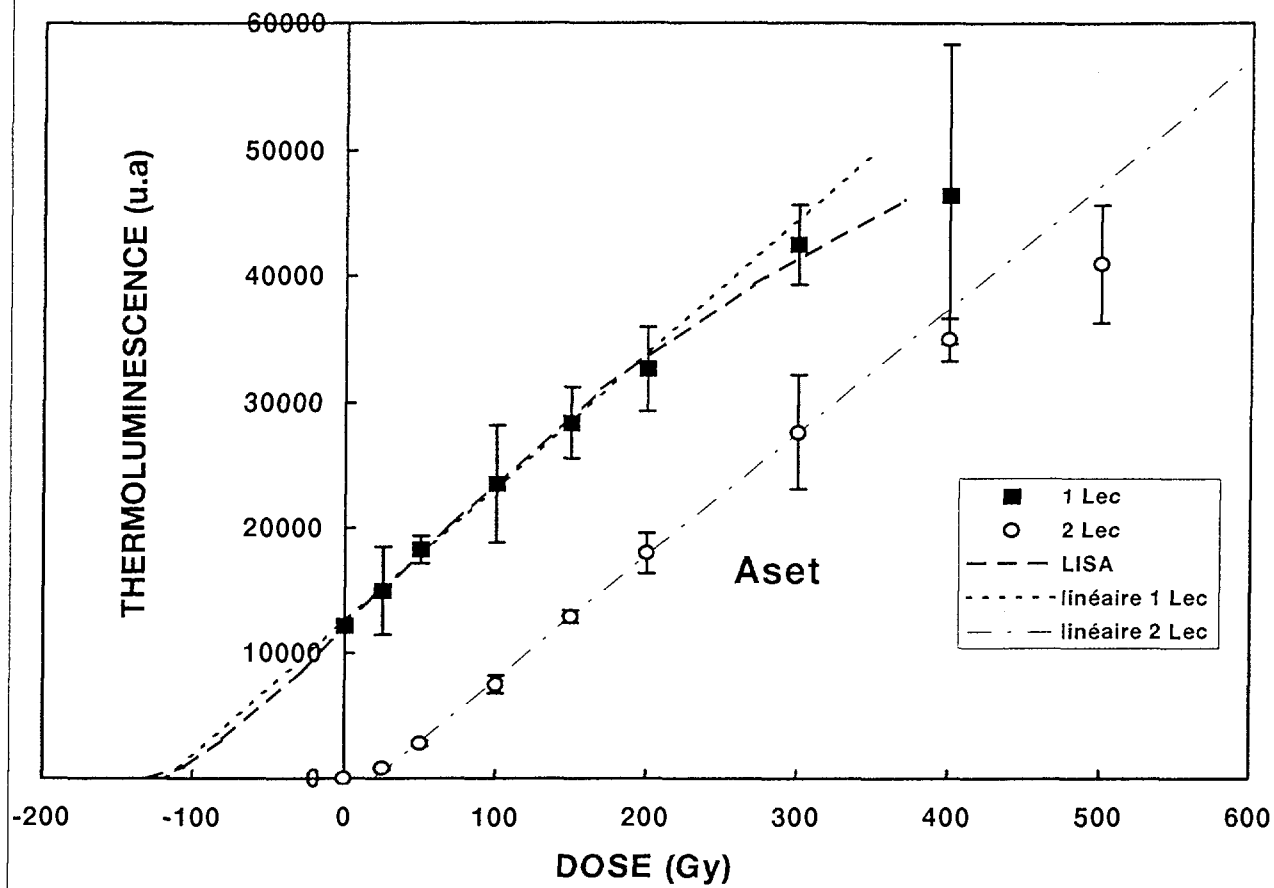


Figure 9 : Plateau des paléodoses pour différents types de pondération

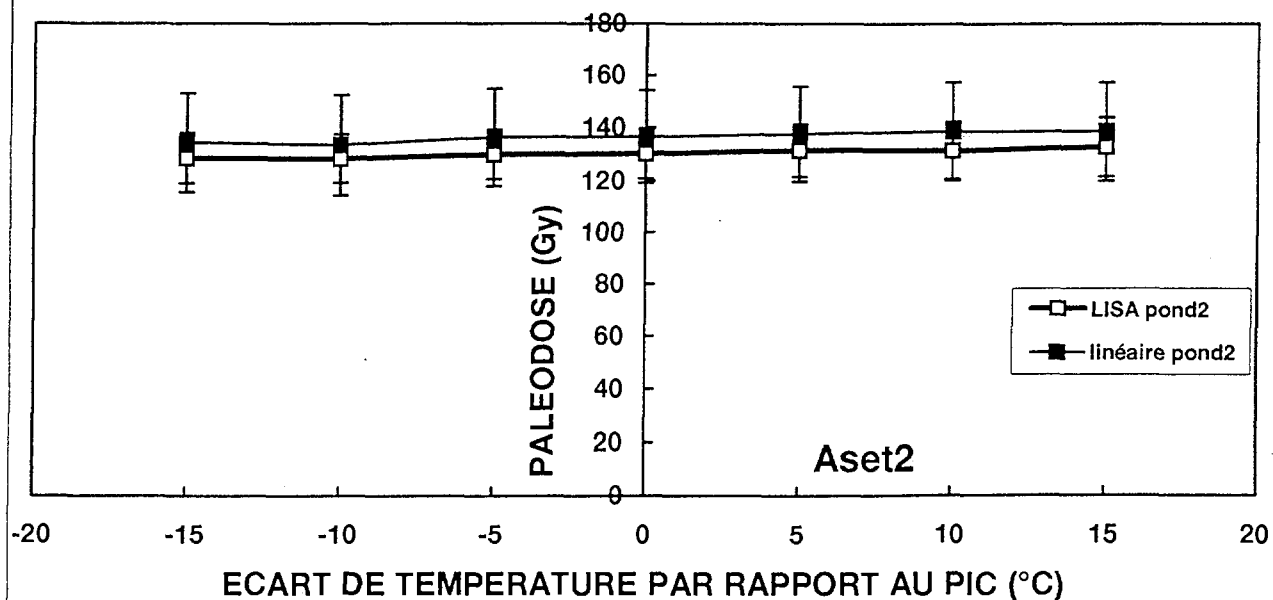


Figure 10 : Courbes de Thermoluminescence en 1 ère lecture

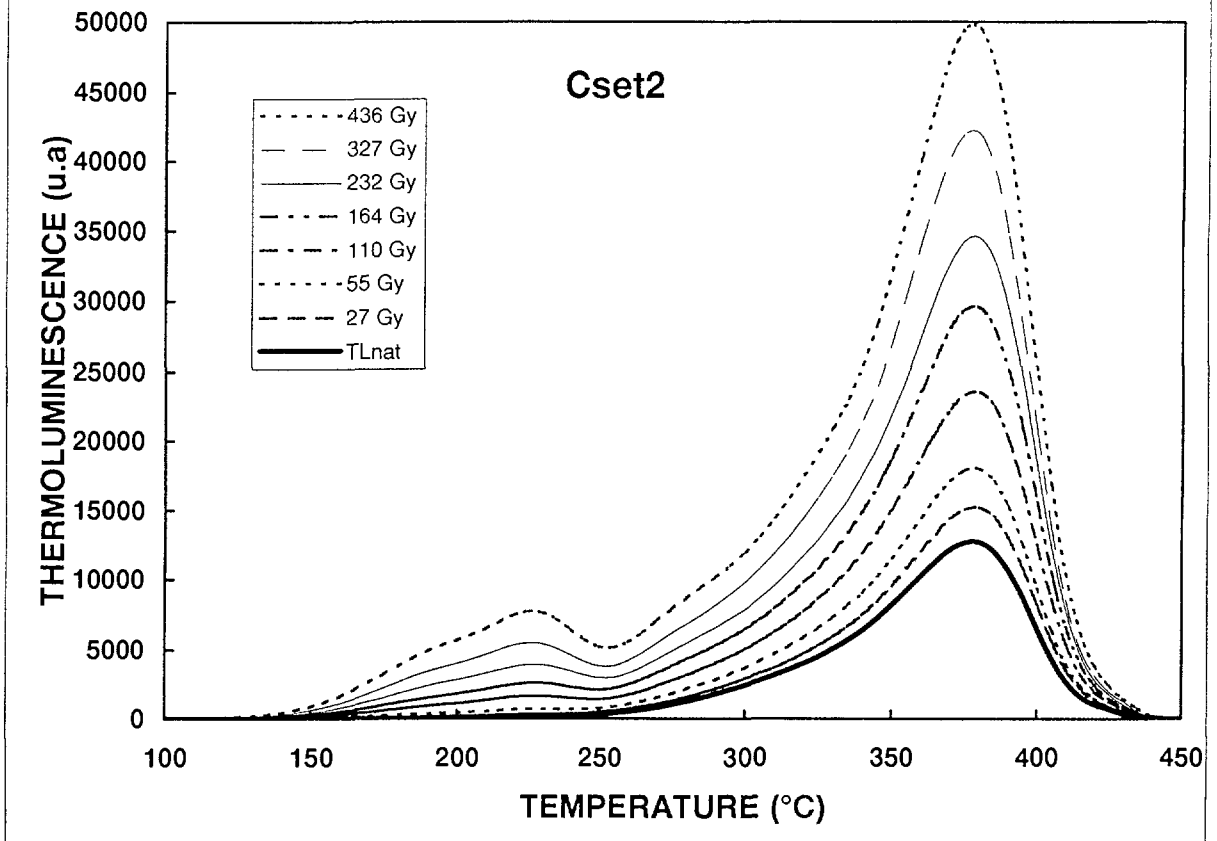


Figure 11 : Courbes de Thermoluminescence en 2 ème lecture

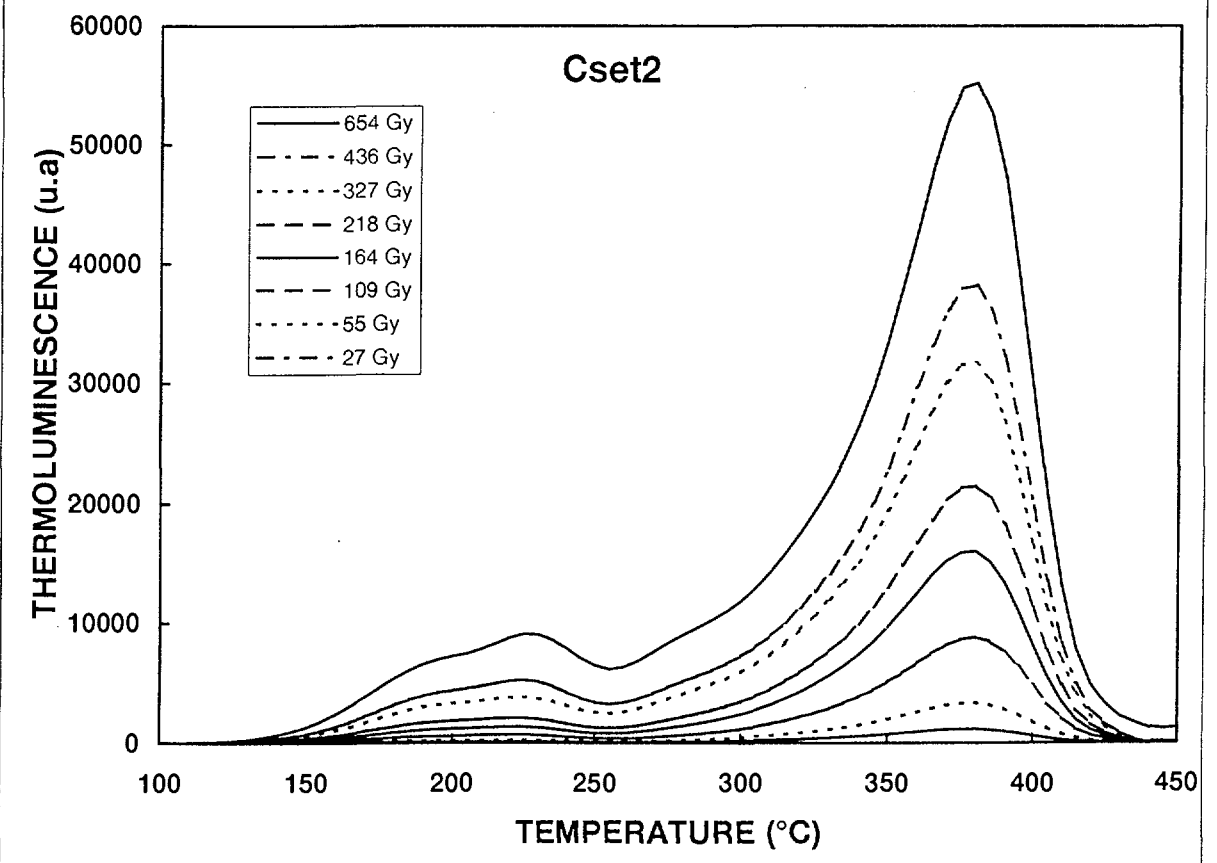


Figure 12 : Courbes de croissance de Thermoluminescence

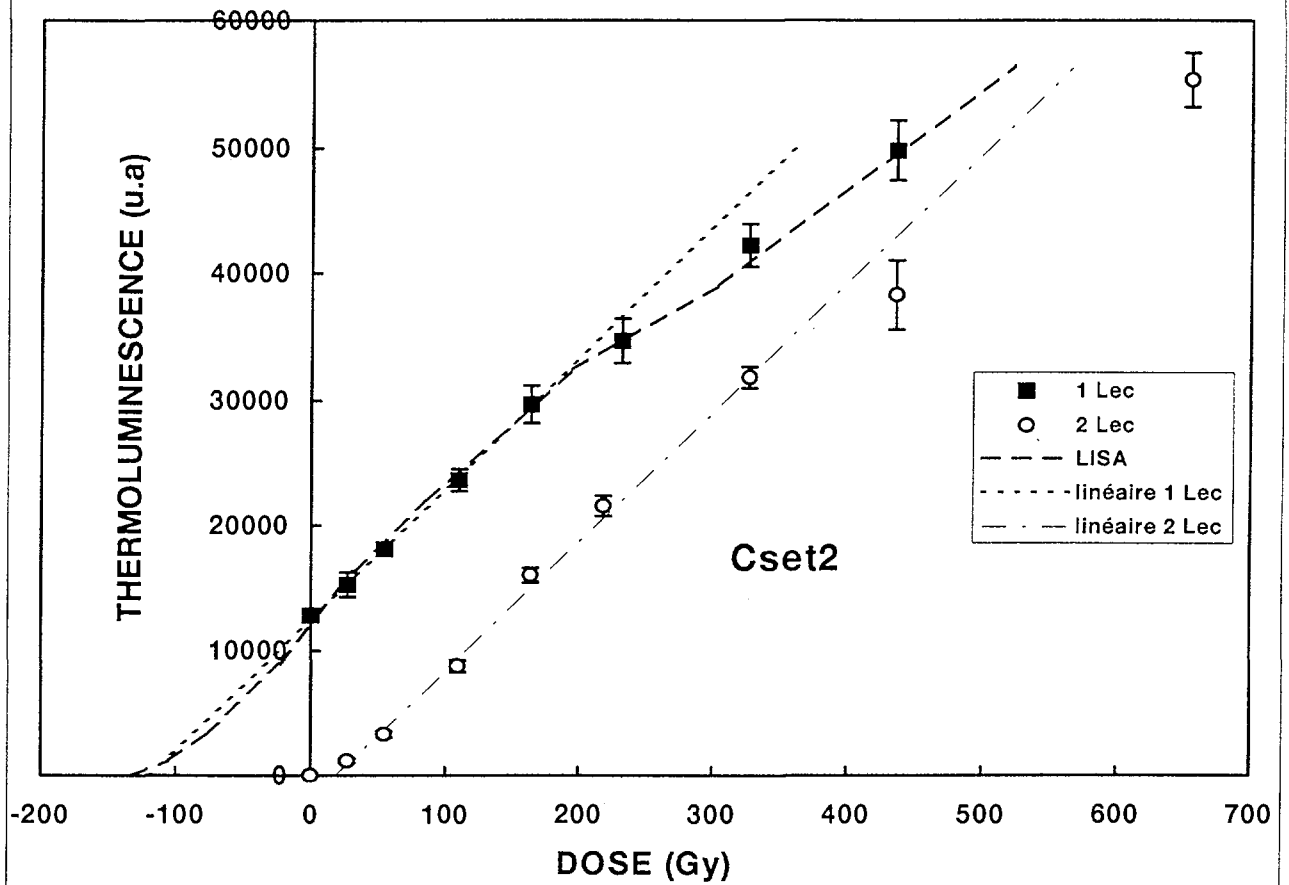
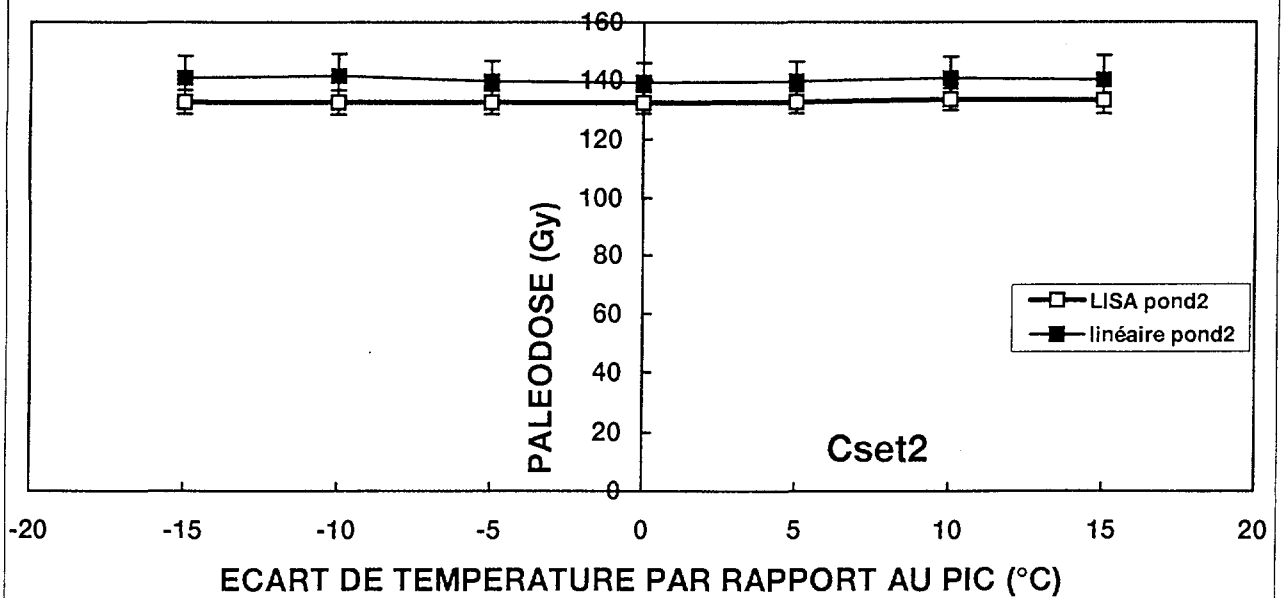


Figure 13 : Plateau des paléodoses pour différents types de pondération



La Figure 14 montre que bien qu'ayant travaillé sur deux granulométries de quartz différentes, les âges obtenus sont en très bon accord. Ceci permet bien sur de valider la méthode, mais ceci montre également la bonne prise en compte de l'atténuation β par notre facteur de correction.

La Figure 15 permet de constater les bons étalonnages des sources d'irradiation utilisées au Japon et à Clermont Ferrand, ce qui devrait faciliter l'intercomparaison de nos résultats respectifs pour les futurs datations.

En linéaire, le choix de la zone servant à l'extrapolation est difficile et est sujet à controverse. Aussi l'âge que nous présentons ci-dessous pour le « volcan de TOYA » est la moyenne pondérée des âges calculés avec la méthode LISA.

Age proposé pour le niveau 4 « TOYA (Dr-td ##) » : $81 \pm 5ka$

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

La détermination d'un âge et de sa précision repose sur les évaluations de la paléodose et de la dose annuelle avec leurs précisions respectives.

- L'obtention de la paléodose tient essentiellement à l'échantillon lui-même à travers l'évolution des courbes de croissance TL et aussi à la méthode d'extrapolation retenue. Dans le cas présent étant donné l'évolution des courbes de croissances, les 2 méthodes de détermination des paléodoses peuvent être utilisées. En effet, quelque soit la méthode, la corrélation est excellente avec les points expérimentaux compte tenu de l'incertitude sur ceux-ci. L'incertitude calculée (LISA ou LINEAIRE) ne prend en compte que les erreurs statistiques, aussi nous avons ajouté à celle-ci une erreur systématique évaluée à 7% (SANZELLE S. *et al*, (1996)).
- Le calcul de la dose annuelle repose sur la supposition qu'elle ait été constante dans le temps (donc pas de perturbation du milieu) et qu'il y ait eu équilibre radioactif dans le passé (donc pas de lessivage). La localisation des sites de prélèvements et le faciès des coupes nous permet de penser que les retombées n'ont pas été remaniées depuis leurs dépôts car ceux-ci sont homogènes. Par contre, la présence de gros blocs dans les retombées rend le calcul de la dosimétrie annuelle, à partir d'un prélèvement réduit sur le site, peu représentatif. Pour affiner nos résultats, il serait souhaitable de réaliser in situ soit des mesures avec un spectromètre gamma de terrain, soit des mesures avec des dosimètres thermoluminescents. (Une collaboration vient de s'engager pour mener une étude plus approfondie sur ce sujet). En ce qui concerne la dosimétrie alpha, nous l'avons supposée négligeable ; or étant donné la faible dose annuelle totale calculée, cette supposition mérite d'être reconsidérée et des mesures de teneurs en radioéléments dans le quartz devront être réalisées.
- Des mesures préliminaires en cours indiquent de grandes variations du niveau d'humidité dont nous avons déjà indiqué les différences importantes qu'il peut induire dans les calculs de dosimétrie. Là encore, une étude systématique de celle-ci s'impose si l'on veut pousser plus loin notre étude.

En conclusion, dans cette étape préliminaire de notre collaboration, nous avons montré en autres:

- qu'en utilisant les mêmes méthodes d'extrapolations, il était tout à fait possible de comparer les résultats de détermination de paléodose à partir d'irradiations réalisées au Japon ou en France et ce grâce à un très bon étalonnage de nos sources respectives.
- que nos calculs de corrections de granulométrie permettaient la détermination d'un âge compatible entre deux granulométries différentes.
- qu'il restait des problèmes à éclaircir concernant la détermination des concentrations en radioéléments de nos échantillons
- que des mesures avec des dosimètres s'imposaient sur le site

Dans le futur notre collaboration va s'accroître en particulier par la détermination d'âges de différents niveaux de tephra du Volcan TOYA.

Figure 14 Influence de la granulométrie et de la méthode d'extrapolation

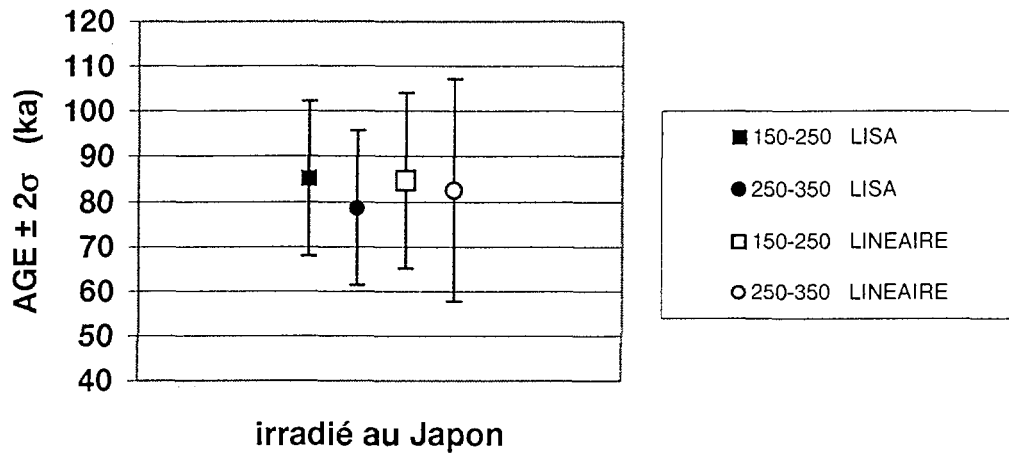
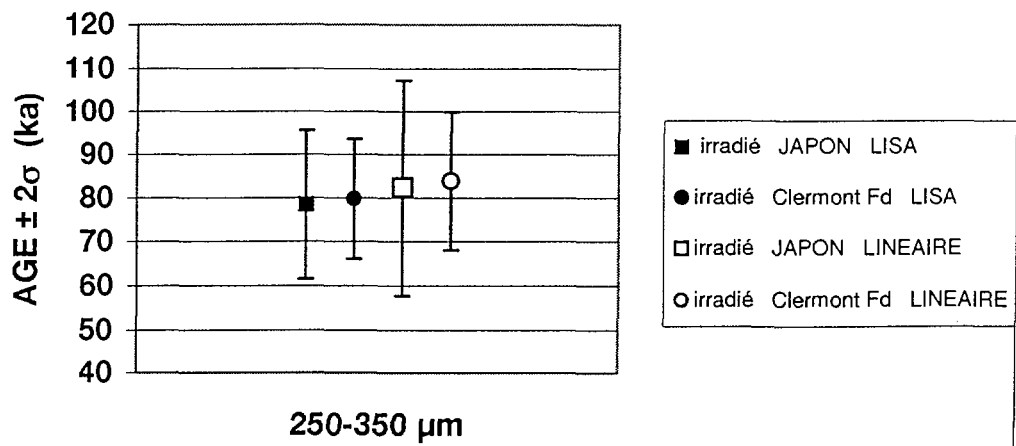


Figure 15 Influence des dispositifs d'irradiation et de la méthode d'extrapolation



BIBLIOGRAPHIE

- ADAMIEC G., AITKEN M. (1998) Dose-rate conversion factors : update *Ancient TL Vol 16 N°2 November 1998*, p. 37-50
- AITKEN M.J. (1985) Thermoluminescence dating. *London Academic Press* 359p.
- BECHTEL F., GUIBERT P., SCHVOERER M., VARTANIAN E., FAÏN J., MIALLIER D., MONTRET M., PILLEYRE Th., SANZELLE S., BAHAIN JJ., FALGUERES C., TRIPIER J., POUPEAU G., MERCIER N., VALLADAS H. (1997) Evaluation de l'incertitude de mesure de la dose annuelle en datation par luminescence (TL, OSL) et par RPE : Une expérience d'intercomparaison à la Grotte XVI, Cénac et Saint-Julien, Dordogne *Revue d'Archéométrie* 21, 1997, p. 21-27.
- BELL W.T (1979) Thermoluminescence dating: radiation dose data. *Archaeometry* 21, pp 243-245
- DE GOËR DE HERVE A., (1997) Volcans d'Auvergne : la menace d'une éruption ? *Parc des Volcans d'Auvergne Editions Ouest France*.
- FAÏN J., MIALLIER D., MONTRET M., PILLEYRE Th., SANZELLE S., SOUMANA S., BECHTEL F., GUIBERT P., SCHVOERER M., VARTANIAN E., MERCIER N., VALLADAS H., BAHAIN JJ., FALGUERES C., TRIPIER J., JORON J.L. (1997) Intercomparaisons dosimétriques dans le cadre de la datation par Thermoluminescence et Résonance Paramagnétique Electronique: Validation de milieux naturels-témoins de la région de Clermont-Ferrand (Puy-de-Dôme, France) *Revue d'Archéométrie* 21, 1997, p. 29-34
- FLEMING S.J. (1970) Thermoluminescence dating. Refinement of the quartz inclusion method. *Archaeometry* 12, pp 133-147
- GUERIN G. (1983) La thermoluminescence des plagioclases, Méthode de datation du volcanisme, Applications au domaine volcanique français: Chaîne des Puys, Mont Dore et Cézallier, Bas Vivarais. *Thèse de Doctorat d'état es Sciences Physique, Université Pierre et Marie Curie* 258p
- MEJDAHL V; (1979) Thermoluminescence dating: beta dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry* 21,1 pp 61-72.
- MIALLIER D., FAÏN J., MONTRET M., PILLEYRE Th., SANZELLE S., SOUMANA S. (1991) Properties of the red TL peak of quartz relevant to thermoluminescence dating. *Nucl. Tracks & Radiation. Meas. Vol. 18, No. 1/2, pp 89-94.*
- OKUMURA, SAMUKAWA. (1984)
- PASTRE JF., DEBARD E., CHENNAOUI K. (1994) Un tephra-repère du volcanisme phréatomagmatique du Vivarais dans la séquence Pléistocène supérieur de l'abri Moula (Soyons, Ardèche, France) *C.R.Acad. Sci. Paris, t.319, série II. P. 947 943*
- PILLEYRE Th. (1991) Datation par Thermoluminescence Application a la chronologie des retombées volcaniques. *Thèse Université Blaise Pascal , ClermontII, 164 p.*
- PRESCOTT J.R, HUTTON J.T (1988) Cosmic ray and gamma ray dosimetry for TL and ESR. *Nucl Tracks & Radiat Meas. Vol 14, N° 1/2, pp 223-227.*
- PRESCOTT J.R, HUTTON J.T (1994) Cosmic ray contribution to dose rates for luminescence and ESR dating: large depths and long-term time variations. *Radiat Meas. Vol 23, N° 2/3, pp 497-500.*
- SOUMANA S. (1993) Amélioration des techniques de dosimétrie appliquées à la datation par thermoluminescence. *Thèse Université Blaise Pascal, ClermontII, 182 p.*
- SANZELLE S., FAÏN J., MIALLIER D., MONTRET M., and PILLEYRE Th. (1993) Exponential regression for TL/ESR using regenerated dose response curves. *Ancient TL* 11, 6-7.
- SANZELLE S., MIALLIER D., PILLEYRE Th., FAÏN J., and MONTRET M. (1996) A new slide technique for regressing TL/ESR dose response curves---intercomparisons with other regression techniques. *Radiation Measurements, 26, 4, 631-638.*
- SANZELLE S., MONTRET M., PILLEYRE Th., MIALLIER D., FAÏN J. (1998) Datation par Thermoluminescence d'un niveau de tephra de la "Baume Moula-Guercy". *Rapport PCCF RI 98-03*
- ZIMMERMAN D.W. (1971) Thermoluminescence dating using fine grains from pottery. *Archaeometry* 13, pp29-52.
-