

REVUE DE STATISTIQUE APPLIQUÉE

G. LIBERT

CH. DUPUIS

Comparaison de courbes de thermoluminescence de quartz par l'analyse des coefficients d'autocorrélation

Revue de statistique appliquée, tome 29, n° 4 (1981), p. 51-59

http://www.numdam.org/item?id=RSA_1981__29_4_51_0

© Société française de statistique, 1981, tous droits réservés.

L'accès aux archives de la revue « *Revue de statistique appliquée* » (<http://www.sfds.asso.fr/publicat/rsa.htm>) implique l'accord avec les conditions générales d'utilisation (<http://www.numdam.org/conditions>). Toute utilisation commerciale ou impression systématique est constitutive d'une infraction pénale. Toute copie ou impression de ce fichier doit contenir la présente mention de copyright.

NUMDAM

Article numérisé dans le cadre du programme
Numérisation de documents anciens mathématiques
<http://www.numdam.org/>

COMPARAISON DE COURBES DE THERMOLUMINESCENCE DE QUARTZ PAR L'ANALYSE DES COEFFICIENTS D'AUTOCORRELATION

G. LIBERT, Ch. DUPUIS

Faculté polytechnique de Mons, Mons, Belgique

RESUME

Les géologues utilisent le phénomène de thermoluminescence comme traceur dans les relations susceptibles d'exister entre certaines roches. La démarche consiste à comparer la forme des courbes de thermoluminescence pour mettre en évidence des différences, des ressemblances et des évolutions.

L'analyse des correspondances permet en principe de réaliser partiellement une telle comparaison. Cependant elle ne tient pas compte de la position en température des pics constitutifs des enregistrements.

Pour considérer cet aspect important du problème, il suffit de caractériser les courbes par leurs coefficients d'autocorrélation. La comparaison peut alors être réalisée au moyen d'une analyse en composantes principales.

1. INTRODUCTION

Certains minéraux présentent la propriété d'émettre de la lumière lorsqu'on élève leur température. Ce phénomène qui reçoit le nom de thermoluminescence (TL) correspond à la libération, sous forme lumineuse, d'énergie stockée de façon métastable par le réseau cristallin.

Dans les applications géologiques, le phénomène de TL est généralement enregistré sous forme d'une courbe dite de thermoluminescence donnant les variations du flux lumineux émis, en fonction d'une élévation linéaire de la température. La courbe de TL est souvent complexe et recèle alors plusieurs maxima.

Des cristaux d'un même minéral, le quartz par exemple, provenant de roches d'origines différentes délivrent des courbes de TL différentes. Ainsi les géologues utilisent ce "marquage naturel" pour suivre les déplacements de matière à la surface du globe terrestre ou pour préciser les relations susceptibles d'exister entre diverses roches.

Encore faut-il pouvoir rendre compte de façon satisfaisante de la forme des courbes, de leurs différences et de leurs ressemblances. Semblable analyse se fait habituellement en mesurant sur l'enregistrement l'ordonnée (intensité)

et l'abscisse (température) de chaque maximum ou "pic". La distinction de types de courbe tient compte ensuite, de l'absence ou de la présence de tels ou tels pics, de leurs positions en température et leurs rapports d'intensité. Cette méthode "classique" qui consiste donc à comparer visuellement les paramètres de "forme" ainsi obtenus donne incontestablement de bons résultats. Dans l'étude que nous avons menée elle a d'ailleurs servi de modèle.

Elle présente cependant certains inconvénients. Elle oblige notamment à tronquer très sévèrement les données puisque seuls quelques points de la courbe sont pris en considération. De plus, les applications géologiques de la TL requièrent la consultation d'un grand nombre d'enregistrements souvent complexes qu'il devient rapidement difficile, voire même dangereux de traiter de cette façon.

Parmi les autres voies de traitements possibles, les méthodes d'analyses statistiques multivariées occupent certainement une place de choix. Elles permettent, en effet, d'étudier un très grand nombre de données, de les synthétiser et de représenter les résultats sous une forme graphique aisément utilisable par un non-spécialiste. Cet article montre comment utiliser ces méthodes pour comparer des courbes de TL sur base d'une codification adéquate des données.

2. LES DONNEES ETUDIEES

Les enregistrements traités proviennent d'une étude plus générale sur la TL du massif granitique de Ploumanac'h (France) qui comprend quatre unités majeures [3]. Dans l'une de ces unités (1), dans sa bordure (2) et dans deux ensembles mineurs (3 et 4) qui en dérivent, la présence de cristaux de quartz sous forme d'ocelles pose un problème. Une analyse par TL a été mise en œuvre pour tenter d'apporter des éléments nouveaux de discussion.

51 courbes de TL de quartz ont été retenues qui proviennent des entités 1, 2, 3 et 4. Il s'agit de thermoluminescence artificielle (TLA) obtenue par irradiation au ^{60}Co après un traitement thermique des échantillons. Traitement thermique et irradiation sont standardisés et la courbe obtenue dépend essentiellement de l'"histoire géologique" du minéral. Sur les courbes de TLA étudiées six maxima sont présents au lieu de deux en thermoluminescence naturelle (TLN). Les courbes de TLA, plus complexes, sont ainsi porteuses de plus d'information. Des exemples d'enregistrements sont donnés à la figure 1.

Initialement, les courbes ont été "discrétisées"(*) en 100 points suivant un même pas constant (4 °C en moyenne). Les 100 points comprenaient, outre l'intervalle 20-300 °C correspondant à l'émission de TL, une vingtaine de points de la ligne de base qui ne se sont pas révélés nécessaires. La température du premier pic oscille autour de 65 °C, celle du dernier autour de 280-290 °C. Un exemple de courbe discrétisée est fourni à la figure 2. On n'a pas cherché

(*) L'opération a été rendue possible grâce à l'aimable autorisation de M. DE VUYST, directeur de l'Institut de Physique du Globe à Dourbes. Elle a été menée à bien avec l'appareil mis au point à l'Institut.

à éliminer l'émission du corps noir dans la mesure où cet effet parasite se reproduit identique à lui-même d'un enregistrement à l'autre.

On notera enfin que l'analyse statistique multivariable a déjà été utilisée pour traiter des données de TLN [2]. A notre connaissance, la même approche n'avait pas encore été tentée sur des courbes plus complexes de TLA.

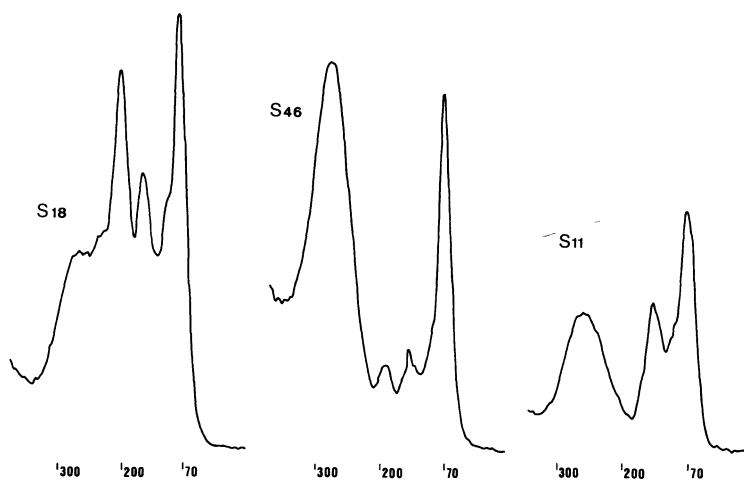


Figure 1. — Trois exemples d'enregistrements de thermoluminescence artificielle du quartz.

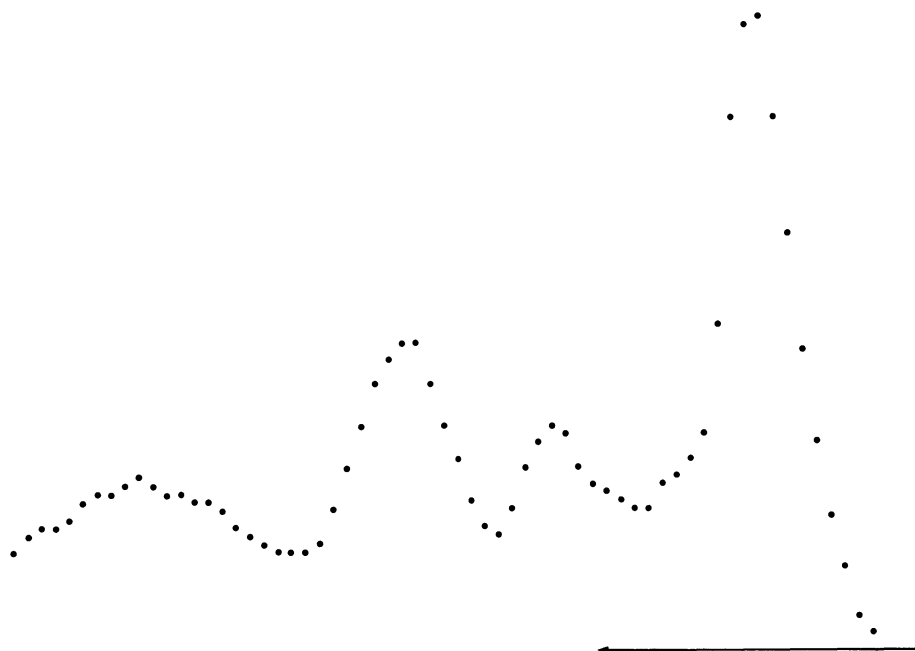


Figure 2. — Enregistrement discrétisé de thermoluminescence artificielle du quartz.

3. ANALYSE DES CORRESPONDANCES SUR DONNEES BRUTES

Avant toute analyse, il importe de présenter les données dans la forme la plus adéquate pour la comparaison. Les conditions expérimentales sont telles que la discrétisation a été faite à partir d'origines des températures légèrement différentes. Il est possible de remédier à cela par diverses translations conduisant à la superposition de tous les premiers pics. En effet, l'existence du premier pic dans chaque courbe à la même température est une caractéristique de la TLA du quartz. Cette propriété permet d'ailleurs d'abandonner les données décrivant ce maximum puisqu'elles ne fournissent qu'une information bien connue : les 51 enregistrements analysés proviennent de cristaux d'un même minéral. Enfin, les points de la ligne de base sont oubliés puisqu'ils résultent uniquement de l'étalonnage de l'appareil de mesure. Après ces transformations, il subsiste 51 courbes composées de 54 valeurs d'intensité mesurées aux températures supérieures à celle du premier pic.

La comparaison des enregistrements peut alors être abordée [4]. Pour ce faire, une analyse des correspondances est réalisée sur un tableau constitué de 54 lignes (les températures) et de 51 colonnes (les courbes).

Les premières valeurs propres sont égales à $5.39 \cdot 10^{-4}$, $1.90 \cdot 10^{-4}$, $1.27 \cdot 10^{-4}$, $0.44 \cdot 10^{-4}$ et les pouvoirs explicatifs des facteurs valent au moins 57.23 %, 19.84 %, 13.25 %, 4.59 %. Une part essentielle de l'information est fournie par les projections sur le premier axe et si on requiert plus de précision, les 3 premiers axes sont retenus. Les projections sur les deux premiers plans factoriels sont données à la figure 3.

Les températures sont symbolisées par les nombres de 1 à 54 qui se suivent continûment en projection. Pour une meilleure visualisation, ils ont été reliés par une ligne brisée. Les points successifs assez éloignés l'un de l'autre correspondent aux endroits où les courbes évoluent rapidement : ce sont les pics. Comme en analyse des correspondances, les points représentatifs des lignes sont sur un axe les barycentres des points représentatifs des colonnes, il est possible de mettre en évidence les caractéristiques des enregistrements représentés par les symboles S_1, S_2, \dots, S_{52} (S_{39} n'existe pas).

Cela étant, on peut affirmer que $S_{17}, S_{46}, S_{42}, S_{40}, S_{41}$ sont assez semblables à cause de leurs allures en fin de courbe. $S_{38}, S_{19}, S_{20}, S_{18}, S_{35}$ se singularisent par le pic apparaissant aux températures 19, 20, 21, 22.

D'autres groupements d'enregistrements similaires peuvent être effectués mais cette opération est loin d'être aisée. De plus, les conclusions que l'on peut formuler coïncident mal avec l'information dont on dispose a priori. En particulier, on distingue mal les 4 entités dont proviennent les courbes TL :

1. : $S_{23}, S_{24}, S_{43}, S_{44}, S_{45}, S_{47}, S_{48}, S_{49}, S_{50}, S_{51}, S_{52}$
2. : $S_3, S_4, S_5, S_{18}, S_{19}, S_{20}, S_{33}, S_{34}, S_{35}, S_{36}, S_{37}, S_{38}$
3. : $S_6, S_7, S_8, S_9, S_{10}, S_{11}, S_{12}, S_{13}, S_{21}, S_{22}, S_{25}, S_{26}, S_{27}, S_{28}, S_{29}, S_{30}, S_{31}, S_{32}$
4. : $S_1, S_2, S_{14}, S_{15}, S_{16}, S_{17}, S_{40}, S_{41}, S_{42}, S_{46}$

La technique de comparaison serait particulièrement satisfaisante si des similitudes entre les courbes provenant d'une même entité étaient mises en évidence. Force est de conclure qu'aucune information de ce genre ne ressort aisément des résultats.

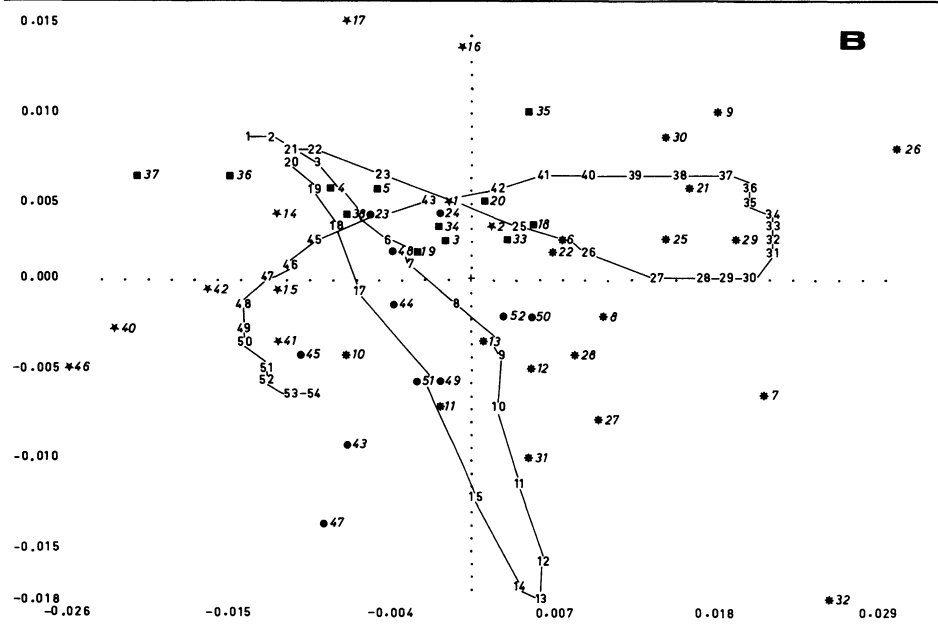
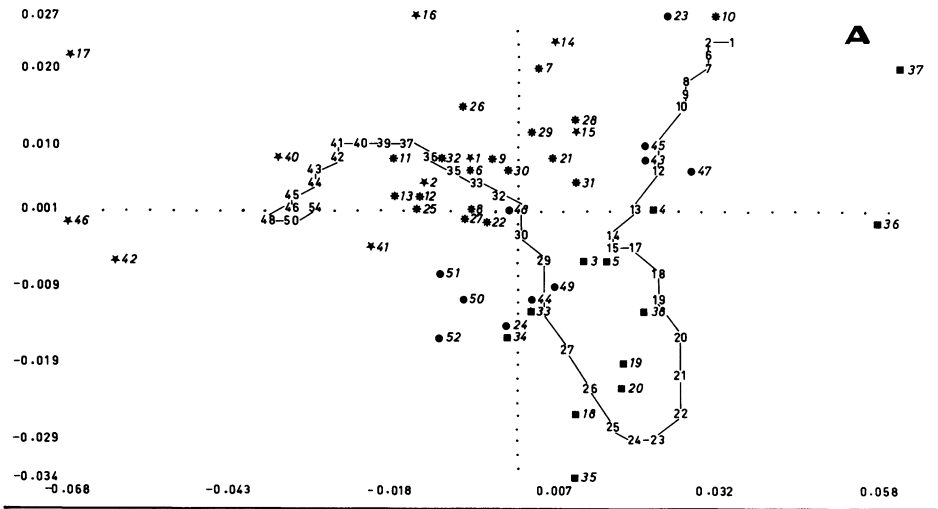


Figure 3A. – Projections des courbes et des températures sur le premier plan factoriel. Le premier axe (horizontal) correspond à la valeur propre $5.39 \cdot 10^{-4}$, le deuxième à la valeur propre $1.90 \cdot 10^{-4}$.

Figure 3B. – Projections des courbes et des températures sur le deuxième plan factoriel. Le troisième axe (horizontal) correspond à la valeur propre $1.27 \cdot 10^{-4}$, le quatrième à la valeur propre $0.44 \cdot 10^{-4}$.

Sur les deux figures 3A et 3B, les S qui précèdent les numéros des courbes ont été remplacés par des symboles propres aux entités d'origine de ces courbes.

- | | |
|--------------|--------------|
| Groupe 1 : ● | Groupe 3 : * |
| Groupe 2 : ■ | Groupe 4 : ★ |

4. ANALYSE EN COMPOSANTES PRINCIPALES SUR FONCTION D'AUTOCORRELATION

Dans l'analyse des correspondances, la distance entre courbes est calculée en se basant uniquement sur les valeurs d'intensité. On ne tient absolument pas compte de l'ordre chronologique de ces valeurs et on pourrait placer tous les deuxièmes pics en fin de courbe que cela ne modifierait en rien les résultats. Or, la position des pics en température est importante et ne peut être négligée.

Dès lors, comme l'échantillonnage a été réalisé à pas constant pour chaque courbe, les valeurs enregistrées peuvent être considérées comme une série temporelle [4]. En admettant qu'elle suit une loi normale et qu'elle est stationnaire, elle est entièrement déterminée par sa moyenne et sa fonction d'autocovariance. Pour chaque courbe, $x(x_1, x_2, \dots, x_{54})$ on calcule donc la moyenne

$$\bar{x} = \sum_{i=1}^{54} x_i / 54$$

et la fonction d'autocovariance

$$c_k = \frac{1}{54} \sum_{i=1}^{54-k} (x_i - \bar{x})(x_{i+k} - \bar{x}) \quad k = 1, 2, \dots, 10.$$

On se limite aux 10 premiers coefficients car au-delà de $k \cong 54/4$, ils ont peu de signification statistique [1].

Ensuite, afin de caractériser les courbes par des variables aux ordres de grandeurs comparables, on retient au lieu des c_k , les coefficients d'autocorrélation $r_k = c_k / c_0$.

Finalement, comme la moyenne et la dispersion des courbes importent peu, les 51 enregistrements sont comparés sur base des 10 variables, les r_k , qui les décrivent. Ceci est réalisé dans une analyse en composantes principales non normées puisque tous les r_k sont compris entre -1 et $+1$.

Les premières valeurs propres sont égales à 0.464, 0.073 et le pouvoir explicatif des deux premiers axes factoriels vaut respectivement au moins 85,49 % et 13,36 %. Toute l'information se trouve ainsi représentée sur le plan donné à la figure 4.

Les coefficients d'autocorrélation symbolisés par R_1, R_2, \dots, R_{10} sont peu intéressants pour l'interprétation. Par contre, les projections des enregistrements permettent de regrouper aisément les courbes semblables et de valider la technique de comparaison. Pour cela, on considère tout d'abord les projections suivant le premier axe qui explique au moins 85,49 % de l'inertie de nuage initial.

Le tableau 1 reprend le groupe d'appartenance des enregistrements et leur classement par ordre décroissant d'abscisse. Il apparaît clairement qu'une séparation nette doit être réalisée entre les courbes S_{21} et S_{30} dont les abscisses respectives valent -0.114 et -0.176 . De plus, l'action conjuguée du premier et du deuxième axe qui fournit au moins 13,36 % de l'information de départ, justifie une séparation entre S_{45} et S_{36} . En effet, bien que les abscisses soient assez semblables, les ordonnées sont sensiblement différentes. Un raisonnement similaire introduit une distinction entre S_{20} et S_{27} . Les barrières ainsi construites sont signalées au tableau 1.

TABLEAU 1

Courbes	Abscisses	Groupes
3	0.254	2
49	252	1
50	251	1
52	238	1
44	221	1
51	213	1
43	211	1
48	208	1
45	207	1
<hr/>		
36	200	2
24	197	1
4	190	2
47	189	1
33	185	2
34	181	2
5	177	2
38	175	2
18	163	2
19	147	2
20	147	2
<hr/>		
27	122	3
31	120	3
37	117	2
35	107	2
8	95	3
32	68	3
28	62	3
22	40	3
7	31	3
15	7	4
41	7	4
12	-0.009	3
13	68	3
11	88	3
29	103	3
25	105	3
21	114	3
<hr/>		
30	176	3
40	206	4
42	210	4
9	223	3
10	231	3
26	287	3
46	299	4
23	327	1

Courbes	Abscisses	Groupes
6	337	3
1	341	4
2	388	4
14	389	4
17	397	4
16	483	4

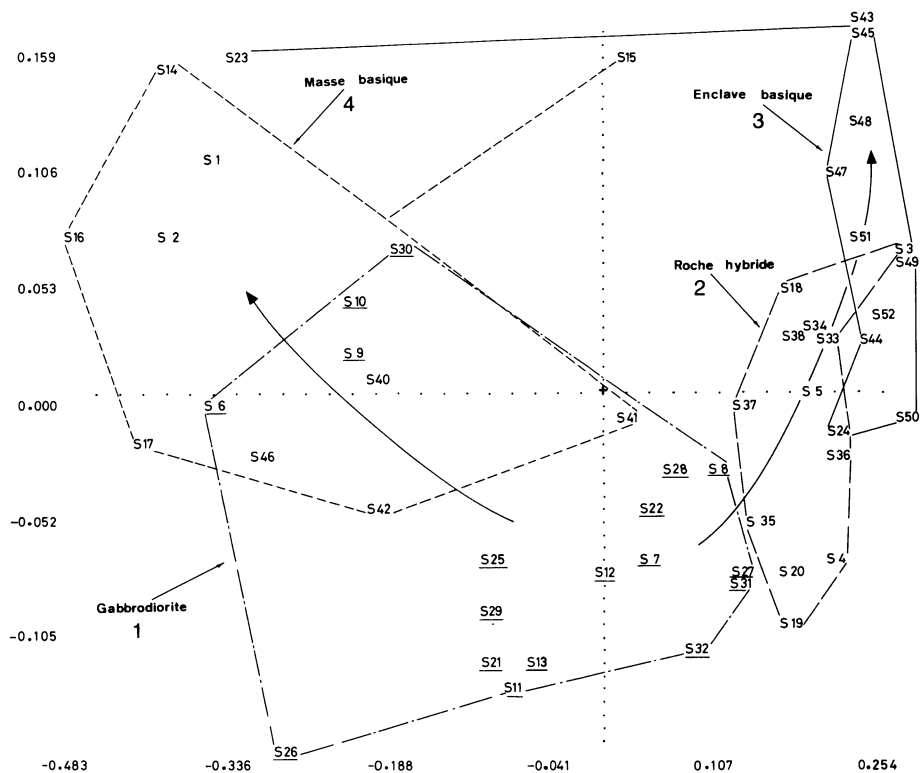


Figure 4. — Projection des enregistrements de TLA sur le premier plan factoriel.

L'analyse respecte les quatre groupes d'échantillons étudiés tout en exprimant l'enchaînement des formes de courbe de TLA qui s'y développe. Une telle image coïncide de façon très heureuse avec la réalité géologique.

La gabbrodiorite (1) est en effet à l'origine de la roche hybride (2) qui constitue sa bordure.

Enclave et masse basiques (3) et (4) proviennent aussi de (1) mais leur transformation minéralogique et géochimique a été plus poussée.

Le fait nouveau que révèle cette étude est l'existence de deux tendances très distinctes suggérées sur la figure par les flèches.

L'analyse "manuelle" menée précédemment avait été dans l'incapacité de souligner cette particularité.

Les deux points qui sortent de ce schéma correspondent à des enregistrements de la TLA dont le second pic prend un développement anormal. Il s'agit très probablement d'un artefact expérimental lié à la difficulté de la préparation des grains de quartz (mauvaise séparation de la gangue contenant du feldspath qui, en TLA, possède un pic intense dans ce domaine de température).

Le premier axe factoriel (horizontal) correspond à la valeur propre 0.464, le deuxième à la valeur propre 0.073.

Finalement, on aura entièrement tenu compte du deuxième axe lorsqu'on aura constaté que S_{47} , S_{37} , S_{15} et S_{26} ressemblent respectivement plus aux éléments des groupes 1, 2, 4, 3. Les modifications sont représentées dans le tableau 1. Les résultats sont particulièrement satisfaisants car la visualisation obtenue permet une comparaison aisée. Les groupes initiaux se retrouvent à quelques exceptions près et leurs relations sont clairement mises en évidence (Fig. 4). Ainsi l'analyse des coefficients d'autocorrélation apparaît comme un outil particulièrement bien adapté à la comparaison de signaux complexes comme ceux de la TLA du quartz.

5. CONCLUSIONS

Pour comparer les courbes complexes de thermoluminescence artificielle, nous avons d'abord utilisé l'analyse des correspondances. Les résultats obtenus ne permettent pas une comparaison aisée des courbes de thermoluminescence. Ceci provient principalement du fait que cette analyse néglige la position des pics en température.

En caractérisant les enregistrements par leurs coefficients d'autocorrélation, cet aspect du problème est pris en compte. Leur analyse en composantes principales permet alors de comparer facilement les courbes et de réaliser une représentation simple.

REFERENCES

- [1] G.E.P. BOX et G.M. JENKINS. — *Time series analysis: Forecasting and control*. Holden Day, San Francisco, 1976, 2d Ed.
- [2] P. CAZES, J. DELTEIL et D. WALTER. — Apport de l'analyse des données à l'étude de la thermoluminescence naturelle des quartz d'origine sédimentaires. *Rev. Géog. Phys. Géol. Dyn.*, 1975, Vol. XVII, fasc. 5, pp. 457-474.
- [3] Ch. DUPUIS. — Relations entre les faciès d'un massif granitique à structure concentrique. Le massif de Ploumanac'h. Géologie et thermoluminescence. *Thèse d'Université*, n° 90, Lille, juin 1975.
- Thermoluminescence du quartz : origine et évolution des ocelles de quartz des "accompagnateurs basiques" du granite porphyroïde de Traouiéros, Massif de Ploumanac'h. *C.R. Acad. Sc. Paris*, t. 282, 5 avril 1976. Série D. pp. 1343-1346.
- [4] G. LIBERT. — La comparaison de courbes de thermoluminescence du quartz peut être réalisée automatiquement par les techniques statistiques d'analyse multidimensionnelle appliquées aux coefficients d'autocorrélation de ces enregistrements *in* : Analyse de séries chronologiques. Elaboration automatique et continue de prévisions. *Thèse de doctorat*. Faculté polytechnique de Mons, 1981.