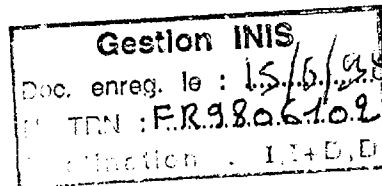


FR9806102

Laboratoire de Physique Corpusculaire
de Clermont-Ferrand



**Datation par thermoluminescence d'un niveau
de téphra de la Baume Moula-Guercy
(Soyons, Ardèche, France)**

S. SANZELLE, M. MONTRET, T. PILLEYRE,
D. MIALLIER, J. FAIN

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

30 - 36

PCCF RI 9803

L

DATATION PAR THERMOLUMINESCENCE D'UN NIVEAU DE TEPHRA DE LA BAUME MOULA-GUERCY (SOYONS, ARDECHE, France)

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

INTRODUCTION

La "Baume Moula-Guercy" est située en France dans l'Ardèche, c'est une grotte qui surplombe la Vallée du Rhône d'une centaine de mètres. Dès sa découverte elle a été assimilée à un abri car elle correspondait à une petite cavité dont une partie supérieure était ouverte vers le ciel. Elle contient en particulier une séquence du pléistocène supérieur au sein de laquelle a été identifiée une retombée volcanique très localisée de 2 à 3 cm d'épaisseur. Celle-ci est attribuée à une importante émission phréatomagmatique du Vivarais (PASTRE JF *et al*, 1994) qui pourrait être celle de la " Vestide du Pal " située à environ 50 km au sud-ouest de la " Baume Moula-Guercy ". Le remplissage de cette grotte a livré dans un niveau inférieur des restes néanderthaliens, les niveaux supérieurs ont livré des industries du paléolithique moyen et entre les deux se situe la « couche 7 » correspondant à la retombée de téphra. La datation d'un tel niveau est d'une très grande importance archéologique car il pourrait être utilisé comme repère chronostratigraphique ; aussi une estimation de l'âge obtenu par thermoluminescence (TL), nous a été demandée par A. DEFLEUR et pour cela nous avons travaillé sur des échantillons de quartz extraits de ce niveau.

PREPARATION DES ECHANTILLONS

La demande ayant été formulée fin 1995 à une période où le site archéologique était fermé, nous n'avons pas pu y accéder pour faire les prélèvements et les mesures de dosimétrie qui s'imposaient.

Malgré tout, devant l'intérêt d'une telle datation, et pour donner des résultats préliminaires, nous avons accepté d'étudier cette retombée. Les échantillons de téphra, fournis par A. DEFLEUR, ont été préparés au laboratoire bien que nous manquions d'informations sur les conditions de prélèvement et de stockage de ceux-ci. A partir de ces téphra nous avons pu extraire des quartz de granulométrie comprise entre 200 et 315 μ m sur lesquels nous avons fait les mesures de Thermoluminescence.

Après préparation, la quantité de quartz disponible étant suffisante, nous avons divisé l'échantillon 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, l'échantillon CLER303 a reçu une dose allant de l'irradiation naturelle à des doses ajoutées d'environ 400 Gy et pour la seconde lecture les doses reçues s'étalent de 0 à environ 500 Gy.

Ce n'est que récemment, en avril 1998, alors que les mesures de TL étaient terminées depuis longtemps et que nous ne pouvions donner qu'un âge approximatif, que nous avons eu accès au site pour réaliser les mesures de dosimétrie le plus près possible des niveaux archéologiques correspondant à la retombée de téphra. En effet, celle-ci n'existe plus en place, et comme elle était circonscrite à la partie ouverte de l'abri elle n'est pas visible au-delà.

DOSIMETRIE ANNUELLE

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

- l'humidité du prélèvement; dans ce cas cela n'a pas été possible car l'échantillon de téphra, prélevé lors des fouilles archéologiques, avait été stocké dans des cartons sans précaution spécifique.

- la dose gamma $D\gamma$ in situ, ce qui permet la prise en compte de l'environnement sur le lieu de prélèvement. La coupe, contenant les niveaux archéologiques incluant les téphra, est constituée d'un sédiment dans lequel on constate la présence de blocs plus ou moins gros (jusqu'à plusieurs dizaines de centimètres). Pour obtenir la dosimétrie gamma, il était donc indispensable de pouvoir effectuer les mesures sur place, bien que les téphra présents à l'origine sous forme d'une « lentille » n'existent plus dans la coupe.
- la composition chimique du prélèvement ("majeurs").
- 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) ".
- 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 due aux α d'origine interne du quartz $D\alpha$

La dose annuelle totale est donnée par :

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

avec les doses annuelles partielles suivantes :

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

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

D_{cosmique} prenant en compte la latitude, l'altitude et la profondeur du prélèvement.

$D\alpha$ contribution estimée

q rapport "humide" = TEL(quartz)/TEL(prélèvement) avec TEL=transfert d'énergie linéique

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

L'échantillon CLER303 ayant été complètement utilisé pour la thermoluminescence, A. DEFLEUR nous a fait parvenir un autre échantillonnage (CLER307) provenant du même niveau archéologique pour permettre la détermination de la dosimétrie annuelle.

Différentes techniques de mesures ont été mises en œuvre, telles que l'analyse chimique par ICP optique (Laboratoire de Géologie de l'Université Blaise Pascal (C.R.V "Centre de Recherches Volcanologiques") de Clermont-Ferrand (France)) et la spectrométrie gamma.

L'analyse chimique a donné les pourcentages suivants :

Echantillon	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	H ₂ O 110°C
CLER307	54,87	12,22	6,81	7,60	7,24	2,04	1,94	1,08	0,10	4,85	1,59

L'analyse en spectrométrie gamma a permis d'obtenir les teneurs en radioéléments.

		CONCENTRATIONS EN RADIOELEMENTS
		Spectrométrie gamma
K ₂ O	%	1,78 ± 0,04
U	ppm	2,42 ± 0,07
Th	ppm	7,07 ± 0,14

Les résultats sont présentés avec une incertitude correspondant à un écart type.

CLER307 :

teneur en humidité $h = 9,1\%$ (ou $H = 1,1$ avec $H = \text{poids humide/poids sec}$)

remarque : n'ayant pas pu mesurer l'humidité sur le prélèvement, cette valeur est prise par défaut dans les calculs dans l'ignorance des valeurs moyennes pendant la durée de l'enfouissement. En effet, aujourd'hui le site est protégé de l'humidité, mais les téphra sont proches de l'entrée de la grotte et une partie de la voûte qui les surplombe est visiblement effondrée, il est donc raisonnable de prendre en compte une certaine humidité.

rapport « humide » $q = 0,9867$ (correction quartz/prélèvement PILLEYRE (1991))

dose gamma $0,568 \pm 0,016$ mGy/an (gammamétrie)

remarques : - la dose gamma déterminée à partir des mesures au gammamètre a été corrigée pour d'une part tenir compte de l'humidité estimée et d'autre part prendre en compte la différence de composition entre le quartz et sol (PILLEYRE Th. (1991))
- bien que le milieu comporte des blocs plus ou moins gros, nous avons considéré une humidité identique pour l'ensemble.

dose bêta $1.402 \pm 0,025$ mGy/an (spectrométrie gamma)

K2O $(1,78 \pm 0,04) * 0,689 * 0,91 * 0,9867 * 1/1,1 = 1,000 \pm 0,022$

U $(2,42 \pm 0,07) * 0,1462 * 0,83 * 0,9867 * 1/1,1 = 0,263 \pm 0,008$

Th $(7,07 \pm 0,14) * 0,0286 * 0,77 * 0,9867 * 1/1,1 = 0,139 \pm 0,003$

remarque : le calcul des doses bêta tient compte de la teneur en humidité et de la différence de composition entre le quartz et le sol (PILLEYRE. Th. (1991))

dose cosmique $0,06 \pm 0,02$ mGy/an (PRESCOTT J.R, et al (1988,1994))

dose alpha interne $0,06 \pm 0,02$ mGy/an
(plus ou moins arbitraire compte tenu des moyennes observées sur les teneurs en radioéléments dans le quartz avec une efficacité de 10%)

Dose Annuelle Totale 2090 ± 40 μ Gy/an
avec correction d'humidité et correction de composition entre quartz et sol

Si l'on admet que l'humidité n'est connue qu'à 50% près, donc $1,2 > H > 1,0$ alors la dose annuelle est comprise entre les valeurs :

$$1901 \pm 39 < 2090 \pm 40 < 2325 \pm 43$$

D'où:

Dose Annuelle Totale retenue: $2090_{-228}^{+278} \pm 253$ μ Gy/an

Remarque :

- L'équipe de Gif /Yvette (MERCIER N, et al (1997)) a déterminé une dose annuelle externe (gamma+cosmique) de 600μ Gy/an dans une couche située à 3 m sous le niveau 6, ce qui correspond à peu près à ce que nous avons nous même trouvé pour le niveau 7.

THERMOLUMINESCENCE

Compte tenu de l'âge présumé pour cette retombée, nous avons décidé d'utiliser la thermoluminescence du pic rouge du quartz (MIALLIER D. et al, 1991) qui ne présente pas de fading dans un grand domaine chronologique.

La thermoluminescence a donc 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 obtenues présentent un pic de 70°C de largeur à mi-hauteur dont le maximum est situé vers 370-380°C. La température correspondant au maximum diminue en fonction de la dose ajoutée ; de plus on s'aperçoit que la TL du quartz ne présente pas de saturation, jusqu'à une dose ajoutée d'environ 400 Gy, ce qui nous permet d'envisager une datation.

CLER303 "Baume Moula-Guercy" :

Les courbes de TL en fonction de la température (Figures 1 et 2), pour des doses ajoutées croissantes montrent peu de différences de forme entre 1^{ère} et 2^{ème} lecture. Les pics secondaires compris entre 150°C à 300°C, présents pour les doses additives, ont quasiment disparus sur la courbe de TL naturelle.

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 3) sont tout à fait classiques et présentent à peu près la même forme. La TL naturelle est loin d'être à saturation, la courbe de 1^{ère} lecture augmente presque linéairement avec la dose jusqu'à environ 100 Gy puis continue de croître mais plus faiblement au delà sans pour autant atteindre la saturation. La courbe de croissance de 2^{ème} lecture a un comportement identique avec toutefois une très légère sensibilisation, elle est donc parfaitement utilisable pour permettre l'extrapolation de la 1^{ère} lecture à basse température.

Etant donné l'évolution des courbes de croissance nous avons envisagé différentes méthodes pour déterminer la paléodose et nous avons utilisé une pondération relative "pond2" (SANZELLE S. *et al*, (1993)) pour tous les cas. Les résultats sont présentés avec un écart type. Nous appellerons P la paléodose, Pp la paléodose partielle et dP la correction de paléodose obtenue avec la 2^{ème} lecture.

a) Méthode LISA (SANZELLE S. *et al*, (1996))

nous obtenons:

$$P = 150 \pm 7 \text{ Gy}$$

b) Régression exponentielle "2+1" (SANZELLE S. *et al*, (1993))

$$P = Pp \pm dP = 149 \pm 7 \text{ Gy} \quad (Pp=133 \pm 6 ; dP=16 \pm 3)$$

c) Régression exponentielle saturante "S1" sur la 1^{ère} lecture (SANZELLE S. *et al*, (1993))

$$P = Pp \pm dP = 150 \pm 10 \text{ Gy} \quad (Pp=134 \pm 9 ; dP=16 \pm 3)$$

avec dP la correction de paléodose obtenue avec la 2^{ème} lecture.

d) Une extrapolation linéaire

Pp est obtenu par extrapolation de la courbe de 1^{ère} lecture entre 0 à 156 Gy.

dP est obtenu par extrapolation de la courbe de 2^{ème} lecture entre 122 et 368 Gy. Bien que n'ayant peu de points en 2^{ème} lecture, nous avons choisi cette région pour qu'elle soit à peu près identique à celle retenue en 1^{ère} lecture.

$$P = Pp \pm dP = 142 \pm 13 \text{ Gy} \quad (Pp=176 \pm 9 ; dP=34 \pm 9)$$

En conclusion dans le cas présent nous pouvons dire que quelque soit la méthode d'obtention de la paléodose, les résultats sont parfaitement compatibles entre eux.

Les plateaux de paléodose calculés avec LISA et avec l'extrapolation linéaire, corrigée par une seconde lecture, sont montrés Figure 4. De -15°C à +15°C de part et d'autre de la température du pic, on peut constater que les résultats obtenus avec ces deux méthodes sont compatibles compte tenu des barres d'erreurs.

ESTIMATION DE L'AGE

Nous donnerons pour CLER303 les âges obtenus avec chaque méthode de détermination de paléodose (avec la pondération pond2) et compte tenu de la compatibilité des résultats, nous pourrions présenter un âge moyen. Les incertitudes seront données avec un écart type.

CLER303	Dose Annuelle (µGy/a)	PALEODOSE (Gy)				AGE (ka)			
		LISA	"2+1"	"S1"	LINEAIRE	LISA	"2+1"	"S1"	LINEAIRE
PONDERATION	min 1862 max 2368								
pond2	2090 ± 253	150 ± 7	149 ± 7	150 ± 10	142 ± 13	71,8 ± 9,3	71,3 ± 9,3	71,8 ± 10,0	68,0 ± 10,3

Figure 1 : Courbes de Thermoluminescence en 1^{ème} lecture

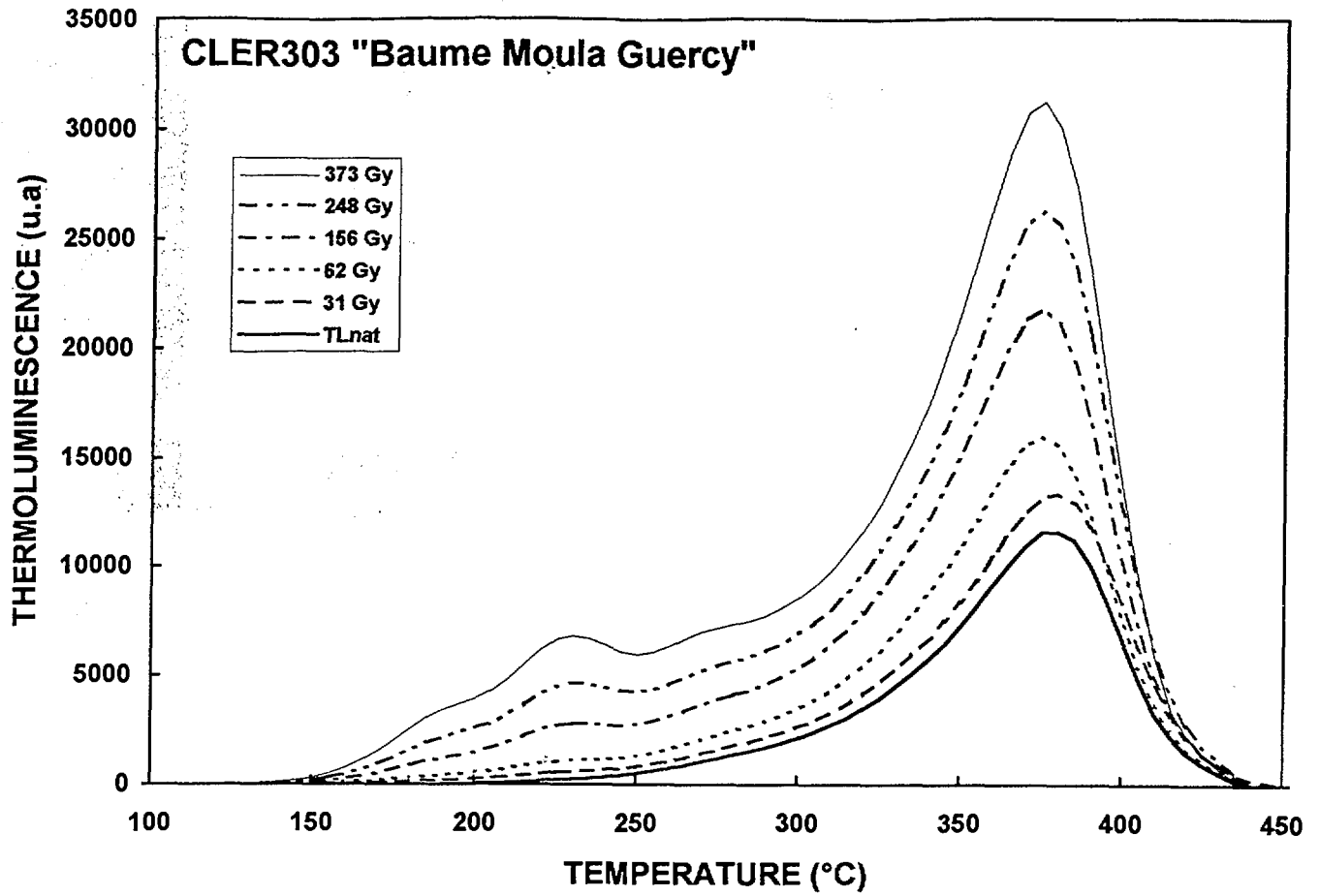


Figure 2 : Courbes de Thermoluminescence en 2^{ème} lecture

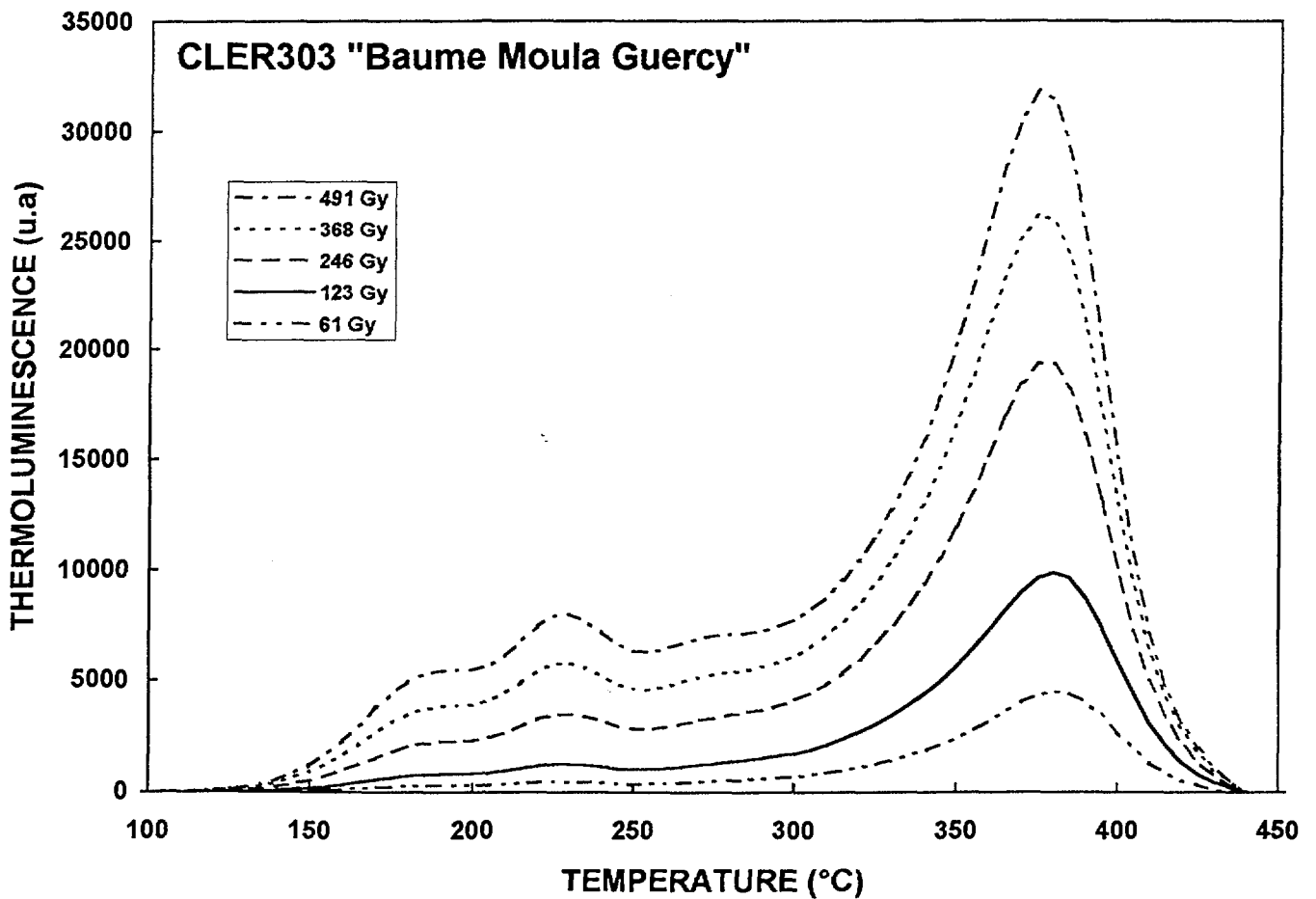


Figure 3 : Courbes de croissance de Thermoluminescence

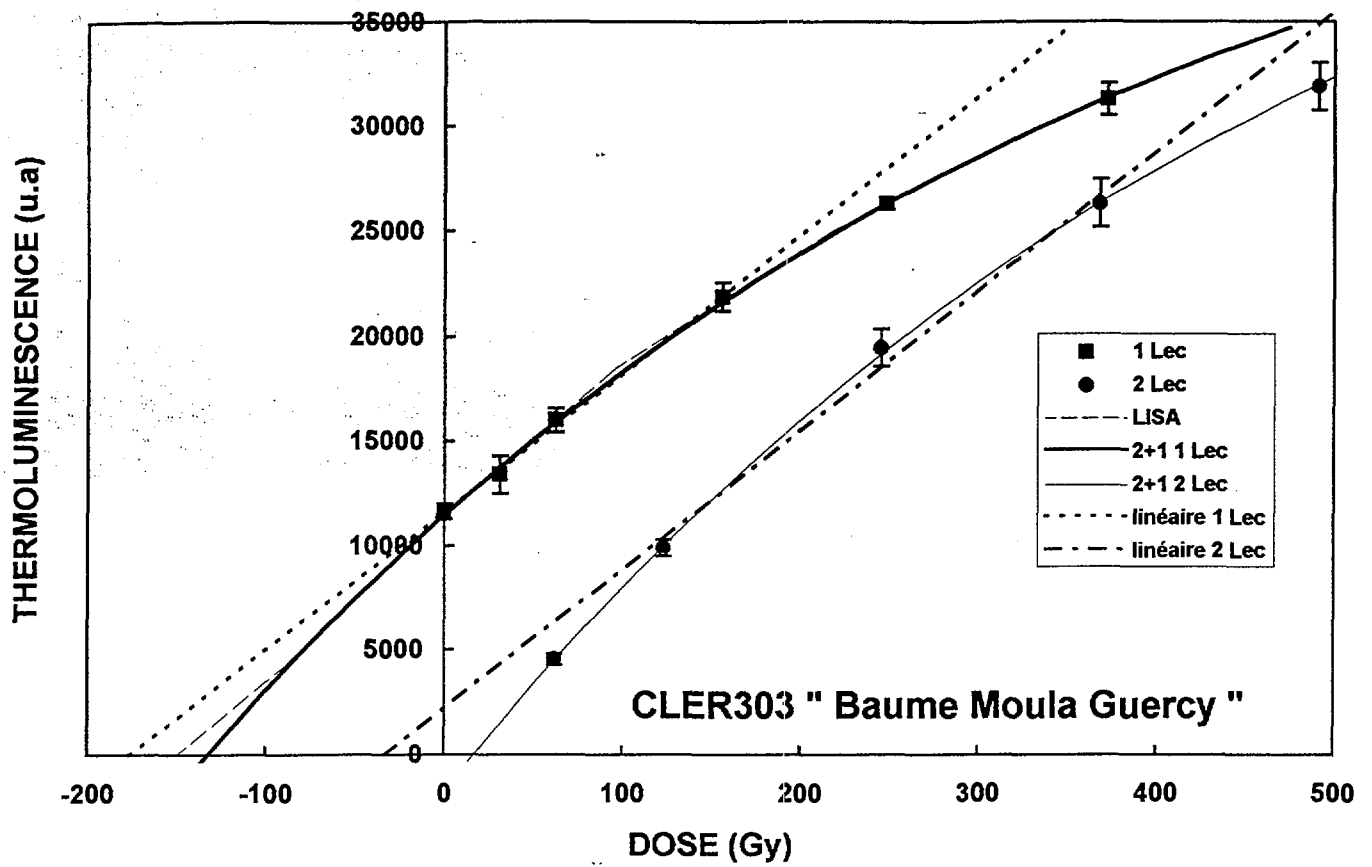
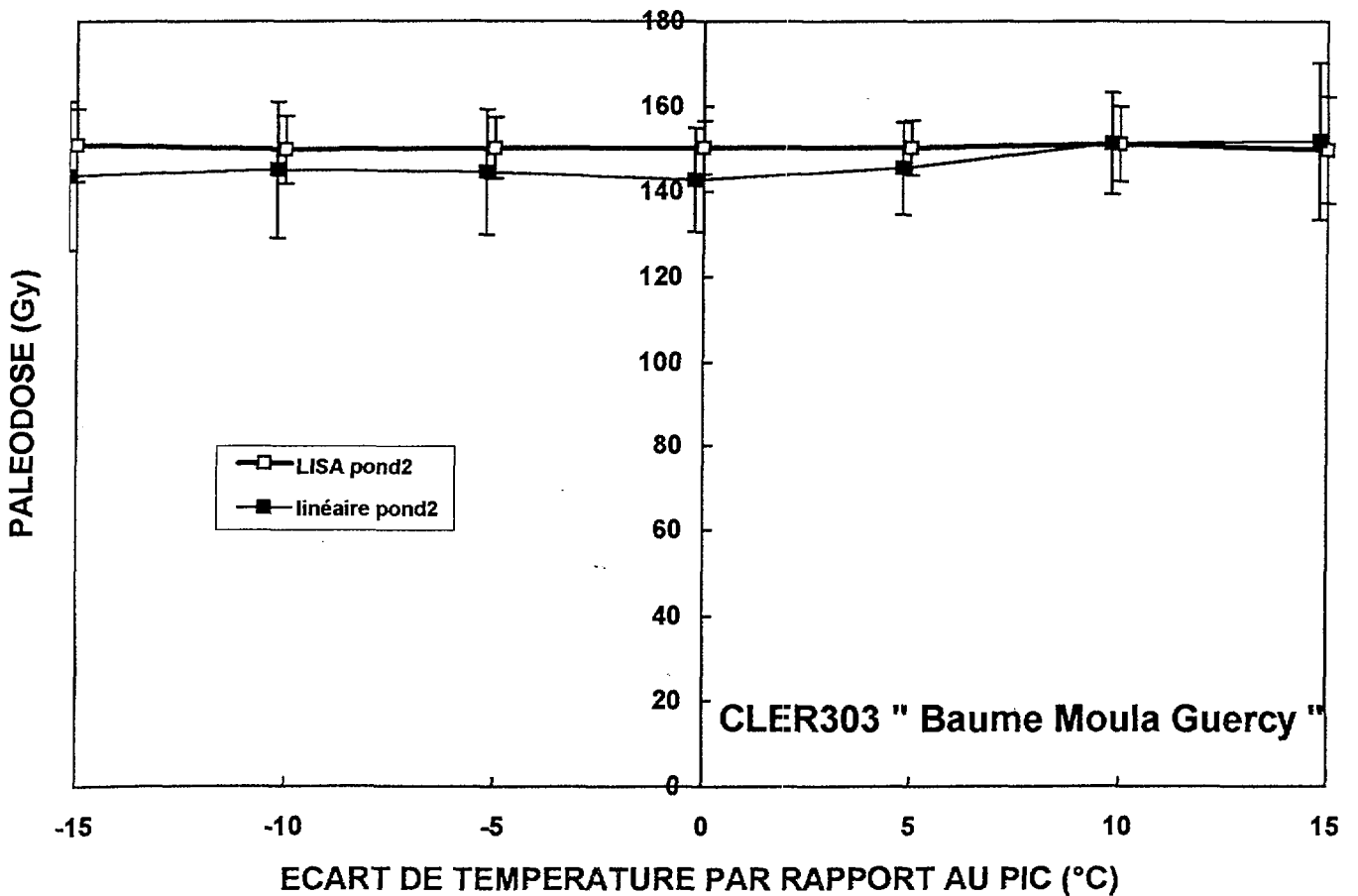


Figure 4 : Plateau des paléodoses



L'âge donné par la régression linéaire n'a pas été pris en compte, vu la forme des courbes Figure 1 et Figure 2 parfaitement compatibles et la convergence des autres méthodes d'extrapolations.

Age du niveau de tephra CLER303
60 ka < identifié à la "Baume MOULA-GUERCY" < 84 ka
(72 ± 12 ka)

CONCLUSION

La retombée phréatomagmatique CLER303 présente dans la « Baume MOULA-GUERCY » a probablement eu lieu entre 60 et 84 ka. Cette fourchette d'âge peut apparaître élevée, mais la non connaissance de l'évolution du facteur humidité dans le passé est un facteur important de l'incertitude. L'âge le plus faible est une valeur minimale car il correspond à un milieu sec.

Le calcul de l'âge et de sa précision repose en fait sur les déterminations de la paléodose et de la dose annuelle avec leurs précisions respectives.

- Pour la paléodose, nous avons montré que la méthode d'extrapolation retenue avait peu d'influence et nous pouvons chiffrer globalement la précision de celle-ci à environ 8%.
- La détermination de l'âge à partir de l'utilisation de la dose annuelle calculée repose sur le fait 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). L'ouverture d'une partie de la grotte vers le ciel, le remplissage supérieur fait de cailloutis provenant apparemment de l'environnement immédiat (peut-être l'effondrement partiel de la voûte) ne nous permet pas d'être très confiant sur la représentativité de la dosimétrie annuelle totale que nous avons déterminée. La cinétique de remplissage dans le temps de cette grotte est très difficile à modéliser, et compte tenu du fort pendage des différents niveaux archéologiques il aurait été nécessaire, pour interpréter nos résultats par rapport au contexte archéologique, de connaître la localisation précise du lieu de prélèvement. De plus, les dépôts sont constitués en partie de blocs et la mesure de la radioactivité dans un lieu autre que la position exacte pourrait être entachée d'une erreur plus ou moins grande, bien que les mesures de l'équipe de Gif/Yvette tendent à montrer une homogénéité du milieu, même sur des épaisseurs importantes.
- Une autre cause possible d'erreur dans l'âge obtenu par TL peut être une contamination des téphra après leur mise en place, sous l'effet de bio-turbations notamment. Nous avons recherché l'ordre de grandeur de l'erreur possible en nous intéressant à la fraction granulométrique dans laquelle ont été sélectionnés les quartz mesurés en TL, soit [200-315µm]. Nous avons d'abord cherché les limites de la contamination, puis ses effets:

Estimation des limites de la contamination :

Le sédiment encaissant est constitué à raison de 96% (en masse) de fragments calcaires pouvant être détruits par l'acide chlorhydrique. Le reste comprend environ 0,2% de minéraux lourds, et 1% de quartz. La téphra ne comprend que 13 % de grains pouvant être détruits par HCl, ce qui corrobore l'observation de PASTRE et al. (1994) (« sable moyen...pratiquement dépourvu d'éléments calcaires »). Les mêmes auteurs soulignent à propos de la composition minéralogique de la téphra que « tous ces éléments sont étrangers à l'environnement local ». La teneur de la téphra en quartz est très élevée : environ 50 % (estimation à vue). La contamination de la téphra en quartz allogène peut être de l'ordre de 0,13% si l'on suppose que la fraction calcaire vient de l'encaissant et qu'elle s'accompagne de environ 1% de quartz, ce qui donne finalement pour le quartz après purification une contamination de l'ordre de 0,3% (0,13/0,5). Ceci suppose qu'il n'y ait pas d'autre source de contamination que le sédiment encaissant.

Effets de la contamination :

Le quartz extrait du sédiment et traité à l'acide fluorhydrique a été mélangé au quartz préparé pour les mesures TL dans une proportion de 20%. Des mesures de TL (filtre « rouge ») ont été effectuées avec l'échantillon « pur » et l'échantillon « contaminé ». On observe que les courbes TL correspondant au quartz contaminé sont en moyenne plus basses que celles du quartz pur, avec une plus grande dispersion (6% au lieu de 1%). Le rapport des intensités est de 1,2±0,06.

Discussion :

L'intensité de la TL du quartz extrait du sédiment est très faible, pratiquement négligeable devant celle du quartz issu de la téphra : une dilution de 20% entraîne une diminution de la TL de 20%. Cela n'est

pas impossible car le signal TL du quartz est très variable et il résulte ici de la combinaison de plusieurs facteurs : sensibilité (différente pour des quartz de deux origines différentes, et sensibilité accrue pour le quartz ayant été chauffé), durée de l'exposition à la lumière du jour avant le dépôt dans le passé, niveau de remplissage des pièges TL (plus ou moins proche de la saturation). La plus grande dispersion de la TL du lot contaminé est un effet statistique lié au nombre de grains contaminants présents dans une prise aliquote de 9mg.

Le rapprochement du taux de contamination estimé et de ses effets mesurés permet d'évaluer la perturbation qui en résulte sur la mesure de la TLN ; son ordre de grandeur est de -0,3%.

En conclusion on peut admettre qu'une éventuelle erreur sur l'âge TL qui serait induite par une contamination serait négligeable par rapport à d'autres sources d'erreur.

Compte tenu de l'importance du site, et de la complexité du problème posé sur le plan archéologique, la datation plus précise de ce repère chronostratigraphique reste toujours d'actualité.

Si le niveau de tephra est bien issu d'une retombée phréatomagmatique qui aurait « arrosé » toute la région, probablement la " Vestide du Pal ", alors il serait nécessaire de retrouver cette séquence en place dans les environs immédiats de la Baume Moula-Guercy et de la dater pour améliorer la fourchette d'âge proposée pour cette retombée. Les autres grottes de la Serre de Guercy et en particulier la grotte Néron pourraient peut-être contenir ce même niveau de tephra (A. DEFLEUR, communication personnelle), ce qui permettrait de recalibrer les stratigraphies des niveaux archéologiques de ces grottes.

Remerciements

Nous remercions A. DEFLEUR, chercheur libre au Laboratoire de Paléontologie Humaine et Préhistoire du Centre Saint Charles CASE 54 MARSEILLE cedex 3, pour son aimable collaboration.

BIBLIOGRAPHIE

- AITKEN M.J. (1985) Thermoluminescence dating. *London Academic Press* 359p.
- BELL W.T (1979) Thermoluminescence dating: radiation dose data. *Archaeometry* 21, pp 243-245.
- MEJDAHL V; (1979) Thermoluminescence dating: beta dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry* 21,1 pp 61-72.
- MERCIER N., VALLADAS H., VALLADAS G. (1997) Gif/Yvette Communication personnelle
- 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.*
- 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*
- PAYEN P., ARGANT J., CREGUT-BONNOURE E., DEFLEUR A., EVIN J., GUERIN C. (1990) Le gisement moustérien de l' Abri Moula (Soyons, Ardèche). *Ardèche Archéologie, No 7, pp 3-9.*
- 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.*
- 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.*
- SOUMANA S. (1993) Amélioration des techniques de dosimétrie appliquées à la datation par thermoluminescence. *Thèse Université Blaise Pascal, ClermontII, 182 p.*
- ZIMMERMAN D.W. (1971) Thermoluminescence dating using fine grains from pottery. *Archaeometry* 13, pp29-52