



HAL
open science

Datation de sites acheuléens et moustériens du Midi méditerranéen par la méthode de Résonance de Spin Electronique

Christophe Falguères

► **To cite this version:**

Christophe Falguères. Datation de sites acheuléens et moustériens du Midi méditerranéen par la méthode de Résonance de Spin Electronique. Géologie appliquée. Museum national d'histoire naturelle - MNHN PARIS, 1986. Français. NNT : . tel-00412592

HAL Id: tel-00412592

<https://theses.hal.science/tel-00412592>

Submitted on 2 Sep 2009

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.

MUSEUM NATIONAL D'HISTOIRE NATURELLE

**Datations de sites acheuléens et moustériens
du Midi Méditerranéen par la méthode de
Résonance de Spin Electronique**

par

Christophe FALGUERES



Thèse présentée
pour l'obtention
du Doctorat du Museum National d'Histoire Naturelle

QUATERNAIRE : GEOLOGIE, PALEONTOLOGIE HUMAINE, PREHISTOIRE

soutenue le : **Mercredi 3 Décembre 1986**

devant la commission composée de :

Henry de LUMLEY, *President*

Alain POIGNANT
Yuji YOKOYAMA
Jean Claude DUPLESSY
Jean COMBIER
Suzanne SIMONE
Henry P. SCHWARCZ

AVANT PROPOS

Avant de présenter ce travail, je tiens à remercier les personnes qui m'ont aidé à le réaliser.

Monsieur H. de Lumley qui m'a accueilli à l'Institut de Paléontologie Humaine et qui m'a fait l'honneur d'accepter la présidence du jury ainsi que Mademoiselle S. Simone et Messieurs Y. Yokoyama, A. Poignant, J.C. Duplessy, H.P. Schwarcz et J. Combier qui ont bien voulu s'intéresser à ce travail et faire partie du jury.

Je tiens à exprimer mon entière reconnaissance à Y. Yokoyama qui m'a accueilli dans son équipe et sans qui ce travail n'aurait pu voir le jour. Sa constante disponibilité et sa grande expérience ont en effet été des facteurs impératifs à l'élaboration et à l'aboutissement de ce travail.

J'exprime également ma reconnaissance à J.C. Duplessy, G. Valladas et C. Lalou pour les corrections et critiques détaillées de la partie méthodologique notamment. Leurs conseils ont beaucoup contribué à l'amélioration de cette thèse.

J'ai beaucoup bénéficié des conseils et souvent abusé de la patience de G. Valladas. Qu'il trouve ici l'expression de ma sincère gratitude.

Je remercie également:

J.P. Quaegebeur dont l'aide dans l'approche physique de la méthode ESR m'a été indispensable pour entreprendre et réaliser ce travail.

C. Léger et R. Bibron dont la compétence et la disponibilité m'ont été d'un précieux soutien.

G. Shen et H.V. Nguyen m'ont permis d'élargir mes connaissances concernant les méthodes du déséquilibre des familles de l'uranium et de la spectrométrie gamma.

Enfin, je tiens à remercier tous les membres du laboratoire du Centre des Faibles Radioactivités ainsi que les personnes de l'Institut de Paléontologie Humaine qui m'ont aidé à mener à bien ce travail.

A mes parents

TABLE DES MATIERES

AVANT-PROPOS	
TABLE DES MATIERES	I
LISTE DES FIGURES	V
LISTE DES TABLEAUX	VIII
INTRODUCTION	1
PREMIERE PARTIE: LA METHODE DE LA RESONANCE	
DE SPIN ELECTRONIQUE (ESR)	7
CHAPITRE I. PRINCIPES DE LA METHODE ESR.	8
1. Historique de la méthode ESR	
2. Principe de la datation	10
2.1. Principe général	
2.1.1. Effet de rayonnement sur un minéral	
2.1.2. La résonance électronique de spin	
2.1.3. Le facteur g	15
2.1.4. La raie ESR	20
2.1.5. Equation d'âge	21
2.2. Détermination de la dose équivalente (DE)	23
2.2.1. Calcul de DE	
2.2.2. Stabilité des pièges	27
- Expériences de recuit	
- Effet de blanchiment (bleaching)	28
2.2.3. Principaux pièges utilisés	33
- Justification de l'utilisation de h3 ou LR	
- Problème du piège Large Raie (LR)	
2.3. Détermination de la dose annuelle (Da)	35
2.3.1. La calcite	
- La dose interne	36
- La dose externe	
2.3.2. Le quartz	38
2.3.3. Les coquilles marines	44
2.3.4. Méthodes de mesures	

II

3. Préparation des échantillons.....	45
4.1. La calcite	
4.2. Le quartz	
4. Limites de la méthode ESR.....	47
5. Application: quartz du Massif Central, France.....	51
5.1. Expérimentation	
5.1.1. Présentation et situation	
- Beaumont (Cler 13)	
- Neschers (TL 44)	
5.1.2. Préparation	
5.1.3. Conditions d'expérience.....	52
5.2. Résultats et discussions	
5.2.1. Spectres obtenus	
5.2.2. Doses équivalentes.....	58
5.2.3. Stabilité thermique	
5.2.4. Le centre germanium.....	63
5.2.5. Doses annuelles et âges	
DEUXIEME PARTIE: DATATION DE SITES ACHEULEENS ET MOUSTERIENS PAR LA METHODE ESR.....	
	67
A/ DATATION DE CALCITE OU SEDIMENT EN RAPPORT AVEC L'EVOLUTION DE L'HOMME.....	
	69
CHAPITRE II. LA CAUNE DE L'ARAGO.....	
	70
1. Introduction	
2. Localisation des échantillons.....	73
3. Datation de calcite par ESR	
3.1. Calcul de doses équivalentes	
3.2. Doses annuelles et âges.....	79
4. Datation de sédiments éoliens par ESR.....	83
4.1. Le choix d'un centre stable	
4.2. Paléodose, dose annuelle et âge.....	85
4.3. Conclusion.....	87
5. Résultats et discussion.....	89
CHAPITRE III. LE SITE D'ATAPUERCA.....	
	91
1. Introduction	
2. Stratigraphie de la Trinchera et localisation des échantillons	

3. Datation de calcite par la méthode ESR.....	96
3.1. Doses équivalentes	
3.2. Doses annuelles et âges	
3.3. Autres datations.....	99
4. Conclusion	
CHAPITRE IV. LA GROTTTE DU PRINCE.....	101
1. Introduction	
2. Datation des planchers stalaqmitiques par ESR	
2.1. Doses équivalentes.....	103
2.2. Doses annuelles et âges	
3. Conclusion.....	107
CHAPITRE V. LA GROTTTE DE FATE.....	108
1. Introduction	
2. Prélèvement des échantillons	
3. Datation des calcites par ESR.....	111
3.1. Doses équivalentes	
3.2. Doses annuelles et âges obtenus	
4. Conclusion.....	113
B/ CORRELATIONS ENTRE PLAGES MARINES ET STRATIGRAPHIE.....	115
CHAPITRE VI. LA GROTTTE DU VALLONNET.....	117
1. Présentation et stratigraphie du site	
2. Repères chronologiques	
3. Datation d'échantillons stalaqmitiques par ESR.....	119
3.1. Doses équivalentes	
3.2. Doses annuelles et âges obtenus.....	121
4. Conclusion	
CHAPITRE VII. LE SITE DE TERRA AMATA.....	125
1. Introduction	
2. Stratigraphie	
3. Datation de quartz extraits de sables marins par ESR.	126
3.1. Echantillons et spectres étudiés	
3.2. Dose équivalente, dose annuelle et âge obtenu..	129
4. Conclusion.....	132

CHAPITRE VIII. LA GROTTTE DU LAZARET (PLAGE DE VILLA MARCELLA)	134
1. Introduction	
2. Datation d'une coquille marine par ESR.....	136
3. Conclusion	
CHAPITRE IX. LA GROTTTE DU PRINCE	141
1. Datation d'une couche marine par ESR	
2. Conclusion.....	143
C/ COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS PAR LA METHODE ESR ET CELLE DU DESEQUILIBRE DES FAMILLES DE L'URANIUM	145
CHAPITRE X. L'AVEN D'ORGNAC III	146
1. Introduction	
2. Stratigraphie	
3. Datation d'un plancher stalagmitique par ESR.....	149
4. Conclusion	
CHAPITRE XI. LE SITE D'ALDENE	152
1. Présentation et stratigraphie du site	
2. Datation d'un échantillon stalagmitique par ESR.....	155
3. Conclusion.....	156
CONCLUSION	158
REFERENCES	161

LISTE DES FIGURES

PREMIERE PARTIE

Figure 0-1	Succession des glaciations et des périodes chaudes au cours du Quaternaire	2
Figure 0-2	Echelle des époques quaternaires recouvertes par les différentes méthodes de datation.....	5
Figure I-1	Processus de piégeage des électrons par radiation induite.....	11
Figure I-2	Niveaux d'énergie de spins électroniques en fonction du champ magnétique externe.....	13
Figure I-3	Descriptif de l'appareil de mesure: Spectromètre ESR.....	14
Figure I-4	Courbe d'absorption ESR et dérivée première obtenues en superposant au champ magnétique constant H un champ magnétique variable Hm...	16
Figure I-5	Calcul du g du centre E' d'un échantillon de quartz (Terra Amata).....	19
Figure I-6	Structure hyperfine de manganèse dans un sédiment (Arago I-18).....	22
Figure I-7	Détermination de la dose équivalente (DE), par extrapolation d'une droite par la méthode de l'addition.....	24
Figure I-8	Détermination mathématique de DE, par une loi exponentielle, en fonction des effets de saturation.....	26
Figure I-9	Comportement de h1 et h3 en fonction du temps de recuit, à une température de recuit de 200.5°C.....	29
Figure I-10	Comportement de h1, h2 et h3 en fonction de l'irradiation gamma.....	30
Figure I-11	Expérience de blanchiment de quartz par irradiation UV.....	32
Figure I-12	Influence du facteur k sur la détermination de l'âge d'une stalagmite (YC7).....	37
Figure I-13	Diminution de la dose alpha en fonction du temps d'attaque de HF.....	41
Figure I-14	Plan schématique de la grotte de Colombo.....	49

VI

Figure I-15	Spectres ESR des centres Al et Ti enregistrés en continu (Cler13).....	54
Figure I-16	Spectres ESR de centres Al enregistrés à 77K et 93K (Cler13).....	55
Figure I-17	Spectres ESR de centres Ti enregistrés à 77K et 93K (Cler13).....	56
Figure I-18	Spectre ESR de centre GE enregistré à 163K (TL44).....	57
Figure I-19	Courbes de paléodose des centres Al et Ti des quartz de Cler13.....	59
Figure I-20	Courbes de paléodose des centres Al et Ti des quartz de TL44.....	60
Figure I-21	Isochrones de stabilité thermique pour les centres Al, Ti et Ge (Cler13).....	61
Figure I-22	Isochrones de stabilité thermique pour les centres Al, Ti et Ge (TL44).....	62
Figure I-23	Spectre gamma de 40 à 400 Kev d'un échantillon provenant de sédiments de Neschers (TL44)....	64

DEUXIEME PARTIE

Figure A	Position géographique de tous les sites étudiés.....	68
Figure II-1	Situation géographique de la Caune de l'Araço	71
Figure II-2	Stratigraphie de la Caune de l'Araço.....	72
Figure II-3	Ensemble stratigraphique de la Caune de l'Araço. La zone encadrée représente la région étudiée	74
Figure II-4	Position des échantillons étudiés.....	75
Figure II-5	Doses équivalentes des échantillons de l'Araço	77
Figure II-6	Mesures in situ de doses externes (Araço)...	80
Figure II-7	Stratigraphie de l'ensemble III (Araço).....	84
Figure II-8	Dose équivalente d'un centre Al de quartz (Araço).....	86
Figure III-1	Vue d'ensemble de la Cueva Mayor et de la Trinchera (Atapuerca).....	92
Figure III-2	Plan général de la Trinchera.....	93
Figure III-3	Stratigraphie des quatre coupes étudiées de la Trinchera.....	95
Figure IV-1	Stratigraphie de la grotte du Prince et position des échantillons.....	102
Figure V-1	Plan d'ensemble de la grotte de Fate.....	109

VII

Figure V-2	Stratigraphie de la grotte de Fate et position des échantillons (corridor n°3).....	110
Figure B	Sites étudiés dans la région de Nice.....	116
Figure VI-1	Stratigraphie de la grotte du Vallonnet.....	118
Figure VI-2	Processus de transfert d'électrons de h3 vers h1, après un recuit à 180°C dans l'échantillon naturel SV-82-6 (Vallonnet).....	120
Figure VI-3	Calcul du coefficient k de transfert d'électrons dans SV-82-3 et SV-82-6 (Vallonnet).....	122
Figure VII-1	Stratigraphie du site de Terra Amata.....	127
Figure VII-2	Schéma stratigraphique de l'ensemble Cla (Terra Amata).....	128
Figure VII-3	Spectres ESR de centres Al de quartz (naturel et irradié) de Terra Amata.....	130
Figure VII-4	Courbe de croissance de centre Al, en fonction de l'irradiation gamma (Terra Amata).....	131
Figure VIII-1	Stratigraphie de la grotte du Lazaret et position du plancher stalaqmitique de l'ensemble E.....	135
Figure VIII-2	Relation "géographique" entre la grotte du Lazaret et la plage de Villa Marcella.....	137
Figure X-1	Plan de situation des différentes surfaces de décapage, en 1971, du site d'Orqnac III.....	147
Figure X-2	Coupe schématique de la stratigraphie du site d'Orqnac III.....	148
Figure XI-1	Situation géographique de la grotte d'Aldène.....	153
Figure XI-2	Stratigraphie de la grotte d'Aldène.....	154

LISTE DES TABLEAUX

PREMIERE PARTIE

Tableau I-1	Conditions d'expérience utilisées pour les échantillons étudiés.....	17
Tableau I-2	Valeur des doses alpha, bêta, gamma ($D_{\alpha i}$, $D_{\beta i}$, $D_{\gamma i}$) pour chaque groupe de nucléides.....	39
Tableau I-3	Atténuation de la dose alpha en fonction de la taille des grains de quartz.....	42
Tableau I-4	Atténuation de la dose bêta en fonction du diamètre des grains de quartz.....	43
Tableau I-5	Activité des radionuclides contenus en I-18 et J-18, au-dessus du sol F de l'ensemble III de la Caune de l'Arago.....	44
Tableau I-6	Durée de vie moyenne à 15°C. des structures utilisées pour la datation dans la calcite.....	50
Tableau I-7	Dose équivalente, dose annuelle et âge de l'échantillon Co-C de la grotte de Colomb.....	50
Tableau I-8	Conditions d'expérience utilisées pour les échantillons TL44 et Cler13.....	53
Tableau I-9	Comparaison des doses, équivalentes pour les centres Al et Ti.....	58
Tableau I-10	Activités, paléodoses et âges de Cler13 et TL44.....	66

DEUXIEME PARTIE

Tableau II-1	Doses équivalentes obtenues en utilisant h1, h3 et LR pour les 3 échantillons de l'Arago.....	78
Tableau II-2	Activités et doses annuelles des échantillons de l'Arago.....	81
Tableau II-3	Doses équivalentes, doses annuelles et âges des échantillons de l'Arago.....	82
Tableau II-4	Dose annuelle des quartz extraits du sédiment éolien de l'ensemble III (Arago).....	88
Tableau II-5	Comparaison des âges obtenus par ESR et U-Th sur les échantillons de l'Arago.....	90
Tableau III-1	Doses équivalentes des échantillons de la Trinchara (Atapuerca).....	97

Tableau III-2	Doses annuelles des échantillons de la Trinchera.....	98
Tableau III-3	Doses équivalentes, doses annuelles et âges des échantillons d'Atapuerca.....	100
Tableau IV-1	Doses équivalentes des échantillons stalaqmitiques de la grotte du Prince.....	105
Tableau IV-2	Doses annuelles des échantillons stalaqmitiques de la grotte du Prince.....	105
Tableau IV-3	Comparaison des âges obtenus par ESR avec d'autres méthodes sur les échantillons de la grotte du Prince.....	106
Tableau V-1	Teneur en U-238 des calcites, activité et dose des sédiments environnants (Fate).....	112
Tableau V-2	Doses équivalentes (DE), doses annuelles (Da) et âges des échantillons stalaqmitiques de la grotte de Fate.....	114
Tableau VI-1	Coefficient de transfert k, hauteurs de h3 et h3 décré, dose équivalente de h3 et dose réelle de SV-82-3 et SV-82-6 (Vallonnet).....	123
Tableau VI-2	Teneur en uranium, dose annuelle et âge des échantillons SV-82-3 et SV-82-6.....	123
Tableau VII-1	Dose annuelle des quartz extraits du sable marin n°3155 de l'ensemble Cia (Terra Amata).....	133
Tableau VII-2	Récapitulatif des résultats obtenus sur l'échantillon de Terra Amata.....	133
Tableau VIII-1	Activité et dose annuelle de l'échantillon As-r (plaque de Villa Marcella).....	138
Tableau VIII-2	Récapitulatif des résultats obtenus sur l'échantillon de Villa Marcella).....	139
Tableau IX-1	Activité et dose interne de l'échantillon SP82-2 issu de la couche marine (Prince).....	142
Tableau IX-2	Activité et dose externe des couches qui entourent SP82-2 (Prince).....	144
Tableau IX-3	Dose équivalente (DE), dose annuelle (Da) et âge de SP82-2 (Prince).....	144
Tableau X-1	Dose équivalente (DE), dose annuelle (Da) et âge de l'échantillon stalaqmitique d'Orgnac (ORG82-2).....	150
Tableau XI-1	Dose annuelle et âge obtenus pour l'échantillon stalaqmitique (A1-A1) de la grotte d'Aldène.....	157
Tableau A	Récapitulatif de tous les résultats obtenus.....	160

INTRODUCTION

Depuis une quarantaine d'années, le développement des sciences physiques associé aux méthodes d'études traditionnelles du Quaternaire confèrent à la Préhistoire d'aujourd'hui, un aspect multi-disciplinaire.

Les ossements, les outils que façonnait l'homme et les sédiments dans lesquels étaient enterrés ces précieux vestiges furent pendant longtemps l'unique support de l'étude de l'évolution humaine. La découverte, par Penk et Bruckner, des quatre glaciations successives qui ont laissé des traces dans les vallées du nord des Alpes (Günz, Mindel, Riss, Würm) et qui ont longtemps servi de repères chronologiques, date de 1905. Mais il y a peu de temps que l'on sait, par exemple, que l'interglaciaire Riss-Würm a débuté vers 128.000 ans avec une précision de ± 10.000 ans.

Depuis quelques années, le développement des sciences physiques et celui plus récent de l'informatique, ont permis de mieux connaître les climats. La physique nucléaire a fourni des méthodes de datation dites "absolues".

Dans le cadre du Quaternaire, une échelle stratigraphique a été établie par l'étude de la variation des rapports isotopiques de l'oxygène de microfossiles tels que les foraminifères contenus dans les sédiments marins. Ceux-ci ont été datés par la méthode de l'excès de Th-230 en combinaison avec le paléomagnétisme (Shackleton et Opdyke, 1973). C'est ainsi qu'une vingtaine de cycles climatiques ont été mis en évidence au cours du Quaternaire (figure 0-1).

L'étude du paléomagnétisme a fourni des repères chronologiques. Cette méthode permet de préciser si une couche s'est déposée pendant une période de polarisation "normale" ou "inverse" du champ magnétique terrestre. Selon les conventions actuelles, le Quaternaire débute avec l'intervalle de polarité "normale" d'Olduvai (1.82 million d'années).

En ce qui concerne les sites préhistoriques, plusieurs

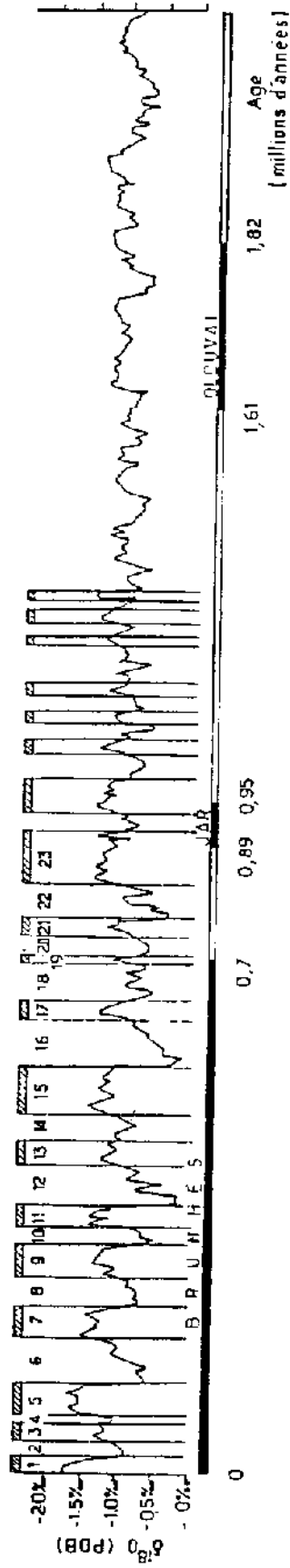


Figure 0-1 Succession des glaciations et des périodes chaudes au cours du Quaternaire (d'après Shackleton et Opdyke, 1976)

techniques de datation se sont considérablement développées au cours de ces dernières années. C'est ainsi que la chronologie de certains sites de l'Afrique de l'Est est établie par la méthode du potassium-argon (K-Ar), grâce aux cendres volcaniques que ces gisements contiennent (Mc Dougal et al, 1980). Mais, les cendres volcaniques sont rares dans les sites préhistoriques et l'application de cette méthode est donc limitée. Cette technique a une limite inférieure de quelques milliers d'années. Mais ces cas les plus favorables exigent de fortes teneurs en potassium (10%).

Pour les sites appartenant au Paléolithique supérieur, la méthode du carbone-14, découverte par Libby en 1952, a permis d'établir une chronologie détaillée. La matière vivante contient du carbone provenant du gaz carbonique atmosphérique. Celui-ci renferme une faible proportion de C-14. Cet échange avec le carbone atmosphérique cesse à la mort des organismes vivants. Les atomes de C-14 contenus dans ces organismes disparaissent alors selon la période de ce nuclide qui est de 5730 ans. Cette méthode est applicable à tous les vestiges organiques (ossements, charbon, bois...). Compte tenu de la période relativement courte du carbone-14, il est difficile d'effectuer une datation allant au-delà de 35.000 ans. Cependant, l'utilisation d'un accélérateur comme spectromètre de masse ultra-sensible permet d'envisager des datations jusqu'à 50.000 ans et peut-être plus. C'est d'autant plus intéressant que chaque expérience nécessite mille fois moins de matière que par la méthode classique (quelques milligrammes au lieu de quelques grammes).

Les méthodes de datation utilisant les déséquilibres des familles de l'uranium (Th-230/U-234, Pa-231/U-235) permettent de dater jusqu'à 350.000 et 150.000 ans respectivement des stalagmites, coraux, coquillages... (Schwarcz, 1980). Ces méthodes reposent sur le fait que l'uranium est soluble dans l'eau (eau de pluie qui percole au travers des pores du sol) et dans l'eau de mer à partir desquelles se forment respectivement les stalagmites et les coraux. Par contre, ses descendants (Th-230, Pa-231) n'existent pas initialement dans le carbonate formé. Après la formation du carbonate, le thorium et le protactinium croissent et se rapprochent peu à peu de l'équilibre avec leur parent selon des

périodes respectivement égales à 75.200 et 32.500 ans. L'équilibre est atteint autour de 350.000 ans pour le thorium et 150.000 ans pour le protactinium. Pour être datés par cette technique, les échantillons doivent être restés chimiquement clos au cours du temps (pas de migration de l'uranium et de ses descendants).

La chronologie existante des sites préhistoriques du Paléolithique inférieur et moyen est encore très imprécise. Pour pallier ce handicap, de nouvelles méthodes sont développées. C'est le cas de la thermoluminescence (TL) et la résonance de spin électronique (ESR) qui reposent sur le même principe: la radioactivité naturelle, crée des électrons célibataires qui sont piégés dans des cristaux. Leur accumulation est proportionnelle au temps écoulé. La première méthode s'avère assez précise pour dater les céramiques (Aitken, 1968), les roches volcaniques (Valladas et al, 1979; Guérin, 1983) et les silex et pierres brûlés (Valladas, 1985) principalement.

La méthode ESR permet d'envisager la datation de sites préhistoriques appartenant à une période qui s'étend pratiquement sur tout le Quaternaire (figure 0-2). Elle s'applique essentiellement à la datation des planchers stalagmitiques qui sont relativement nombreux dans les sites du Paléolithique inférieur et moyen du midi méditerranéen. Ce sont les deux principales raisons du choix de cette technique. La deuxième partie de cette étude est consacrée à l'application de la méthode ESR qui est envisagée sous trois aspects:

- La datation de calcite ou sédiment en rapport avec l'évolution de l'homme. Elle s'applique à des sites tels que la caune de l'Arago, Atapuerca ou la grotte du Prince.

- Les corrélations entre les plages marines et des niveaux stratigraphiques de sites appartenant à une région comprise entre Nice et la frontière franco-italienne.

- La comparaison des résultats obtenus par la méthode ESR et celle du déséquilibre des familles de l'uranium pour des échantillons dont l'âge n'excède pas 350.000 ans.

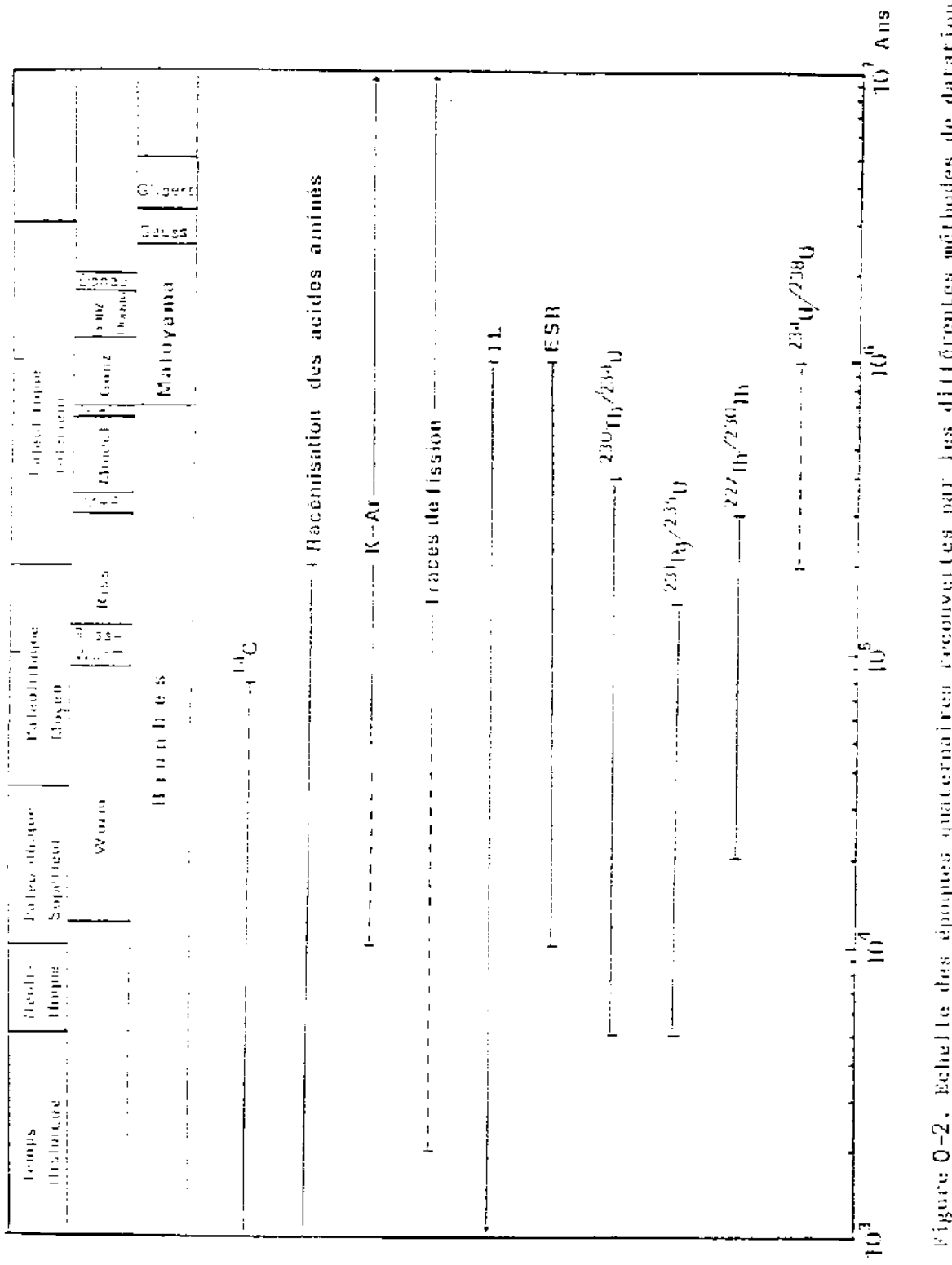


Figure 0-2. Echelle des époques quaternaires recouvertes par les différentes méthodes de datation

Tout d'abord, après un bref historique, nous présenterons les principes de la datation dans lesquels les calculs de dose équivalente et dose annuelle sont abordés. La préparation des échantillons ainsi que les limites de la méthode sont également traitées dans ce chapitre. Cette première partie se termine par une application de la méthode ESR à des grains de quartz provenant du Massif Central.

PREMIERE PARTIE

LA METHODE DE LA RESONANCE DE SPIN ELECTRONIQUE

(ESR)

CHAPITRE I: PRINCIPES DE LA METHODE ESR.

1- Historique

La résonance de spin électronique (ESR) est, depuis la découverte du phénomène par Zavoisky (1945), une méthode classique d'analyse de la structure de la matière. Les principales applications de l'ESR se trouvent dans la chimie aussi bien que dans la physique du solide. Les ouvrages sur ce point sont assez nombreux (Assenheim, 1966; Bersohn and Baird, 1966; Alger, 1968; Ptak, 1975; Marfunin, 1979).

Mais ce n'est que vers la fin des années 60 que la méthode ESR est appliquée à la géochronologie. En effet, en 1967, Zeller et al introduisent l'ESR comme méthode de datation de matériel géologique. Ils montrent que l'accumulation d'électrons piégés, dans des cristaux d'apatite du Mexique, est une fonction de la dose totale de radiation naturelle à laquelle ces cristaux ont été exposés depuis leur formation. D'autres articles viennent entériner et compléter cette idée (Zeller, 1968; Lévy, 1968).

Il faut noter entre temps quelques travaux précurseurs effectués sur du matériel géologique tel que des grains de quartz (O'brien, 1955) ou des charbons (Duchesne et al, 1961) dans lesquels le nombre de centres paramagnétiques est compris entre 10^{10} et 10^{20} par gramme.

Quelques temps après, Mac Morris (1969, 1970, 1971) tente de dater des grains de quartz au moyen de l'ESR. Ses travaux, bien que délaissés au cours des années suivantes car ne donnant pas d'âges significatifs, sont à la base des connaissances actuelles quant à la nature et la structure de certains types de pièges tels que les centres aluminium et titane pour ne citer qu'eux.

Le début des années 70 voit le développement de la thermoluminescence (TL) et les laboratoires de datation se tournent alors vers cette méthode qui est fondée sur le même principe que l'ESR comme nous le verrons ultérieurement.

La datation par TL de matériel archéologique (céramiques) dont l'âge est connu (Aitken, 1974) contribue largement au développement de cette méthode tandis que l'ESR est, dans le même temps, pratiquement abandonnée..

En 1975, Motoji Ikeya présente une application de l'ESR à la datation d'une stalactite et relance ainsi cette méthode dans "la course aux datations". Dès lors, le champ d'investigation de la datation par ESR, outre la calcite qui fait l'objet d'un grand nombre de recherches (Apers et al, 1980, 1981; Henniq et al, 1981; Ikeya, 1978, 1980; Karakostanoqlou et Schwarcz, 1983; Valladas et al, 1981; Yokoyama et al, 1981a, 1983a, 1983b), s'étend à divers types de matériels tels que les ossements (Henniq et al, 1981; Ikeya, 1981, 1982a, 1983; Yokoyama et al, 1981b, 1982), les dents (Ikeya, 1978; Yokoyama et al, 1981b), les coquilles d'invertébrés marins (Blanchard et Chasteen, 1976; Hütt et al, 1983; Ikeya, 1983), le silex (Robins et al, 1978, 1981; Garrison et al, 1981), le bois (Ikeya, 1982b) etc..

Cette méthode de datation est introduite en France dès 1980 par Yuji Yokoyama du Centre des Faibles Radioactivités à Gif sur Yvette. C'est d'ailleurs le seul laboratoire en France à appliquer la méthode ESR dans le domaine des datations archéologiques et géologiques.

Actuellement, une quarantaine de laboratoires disséminés dans le monde sont spécialisés dans les applications possibles de l'ESR en archéologie et en géologie, alors que deux seulement travaillaient sur ce sujet, il y a dix ans à peine.

2- Principe de la datation.

2-1 Principe général.

2-1-1 Effet de rayonnement sur un minéral.

Les méthodes de datation par ESR et TL reposent sur le même principe. Quand un cristal est formé, il présente des défauts, vacances et impuretés substituées à des atomes du réseau. Un rayonnement ionisant libère des électrons qui sont piégés par des défauts du cristal, en nombre d'autant plus important que la dose de rayonnement est élevée. La figure I-1 schématise ce processus.

Lorsqu'un "électron libre" est piégé par un défaut, il est détectable par un spectromètre ESR. La TL, quant à elle, mesure la lumière émise par un électron qui s'échappe du piège lorsque celui-ci est suffisamment chauffé.

2-1-2 La résonance électronique de spin.

Considérons tout d'abord un électron libre dans un champ magnétique constant. Son moment angulaire intrinsèque ou spin s'oriente selon la direction du champ. Le système a deux niveaux d'énergie selon que le spin de l'électron est parallèle ou antiparallèle au vecteur champ magnétique. La différence d'énergie entre les deux niveaux est:

$$\Delta E = g\beta H \quad (1)$$

où g est le rapport gyromagnétique de l'électron
 β le magnéton de Bohr
et H le champ magnétique.

Un champ magnétique alternatif orienté perpendiculairement au champ magnétique constant induit des transitions entre les deux niveaux si la fréquence ν du champ alternatif satisfait la

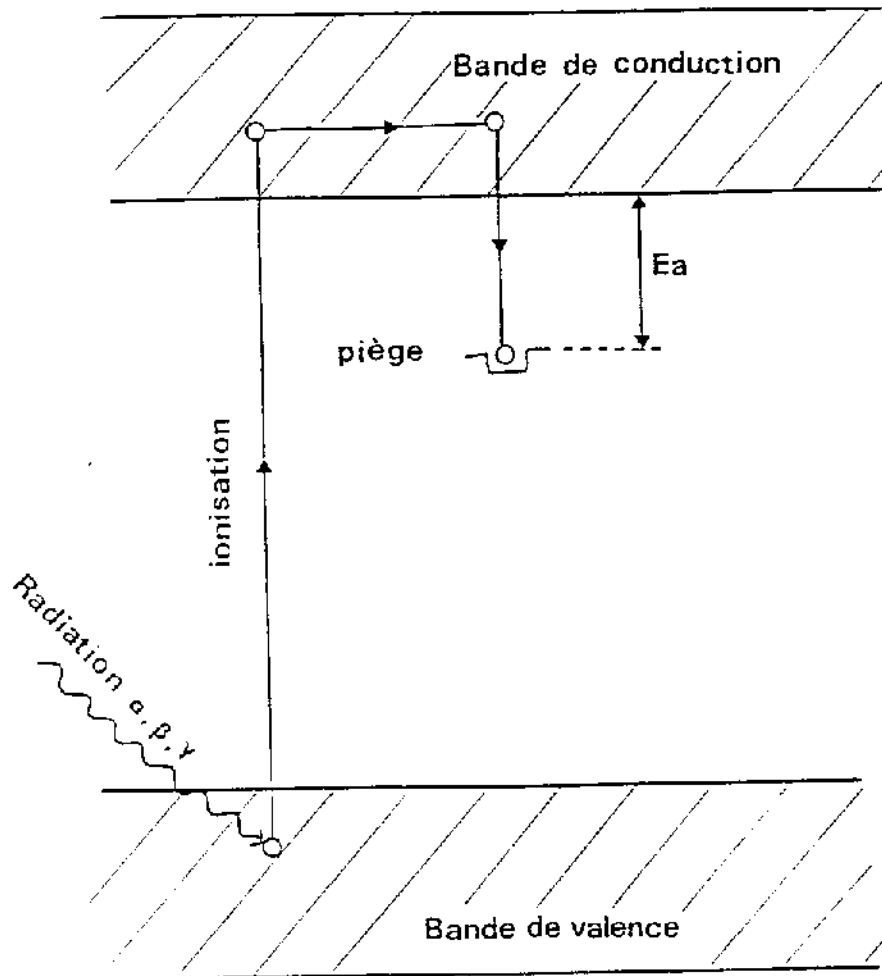


Figure I-1. Processus de piègeage des électrons par radiation induite. E_a correspond à l'énergie d'activation ou encore à la profondeur du piège (d'après Hennig et Grün, 1983).

condition de résonance:

$$h\nu = \Delta E \quad (2)$$

h étant la constante de Planck.

Le système absorbe de l'énergie si le vecteur spin saute de la position parallèle à H à la position antiparallèle (figure I-2). Le processus opposé libère de l'énergie.

Un spectre ESR est donc la courbe d'absorption d'une onde électromagnétique par un échantillon paramagnétique placé dans un champ magnétique constant.

Considérons maintenant un cristal qui comprend un grand nombre d'électrons presque libres; ce sont les électrons fixés sur les impuretés et non accouplés à des électrons de spins de sens opposés (électrons célibataires). Supposons le cristal soumis au champ magnétique H . Si à une certaine température, ces électrons sont en équilibre thermodynamique avec le réseau, le rapport entre le nombre d'électrons dans l'état d'énergie le plus bas (état fondamental) au nombre d'électrons dans l'état d'énergie le plus haut (état excité) est donné par le facteur de Boltzmann $e^{-\Delta E/kT}$ k étant la constante de Boltzmann et T la température absolue. A la résonance, le système emprunte de l'énergie au champ alternatif. Cette énergie est assez vite absorbée par le réseau et la différence de population entre les deux niveaux reste ce qu'elle était à l'équilibre thermique (avant l'application du champ alternatif).

Le champ magnétique constant est fourni par un électro-aimant; le champ alternatif est la composante magnétique du champ électromagnétique hyperfréquence engendré par un klystron (figure I-3). La puissance qu'il fournit est proportionnelle au nombre de spins inversés à chaque instant par la résonance. Son amplitude est d'autant plus grande que le nombre d'électrons célibataires est plus élevé et donc que la dose de rayonnement reçue par le cristal a été plus grande.

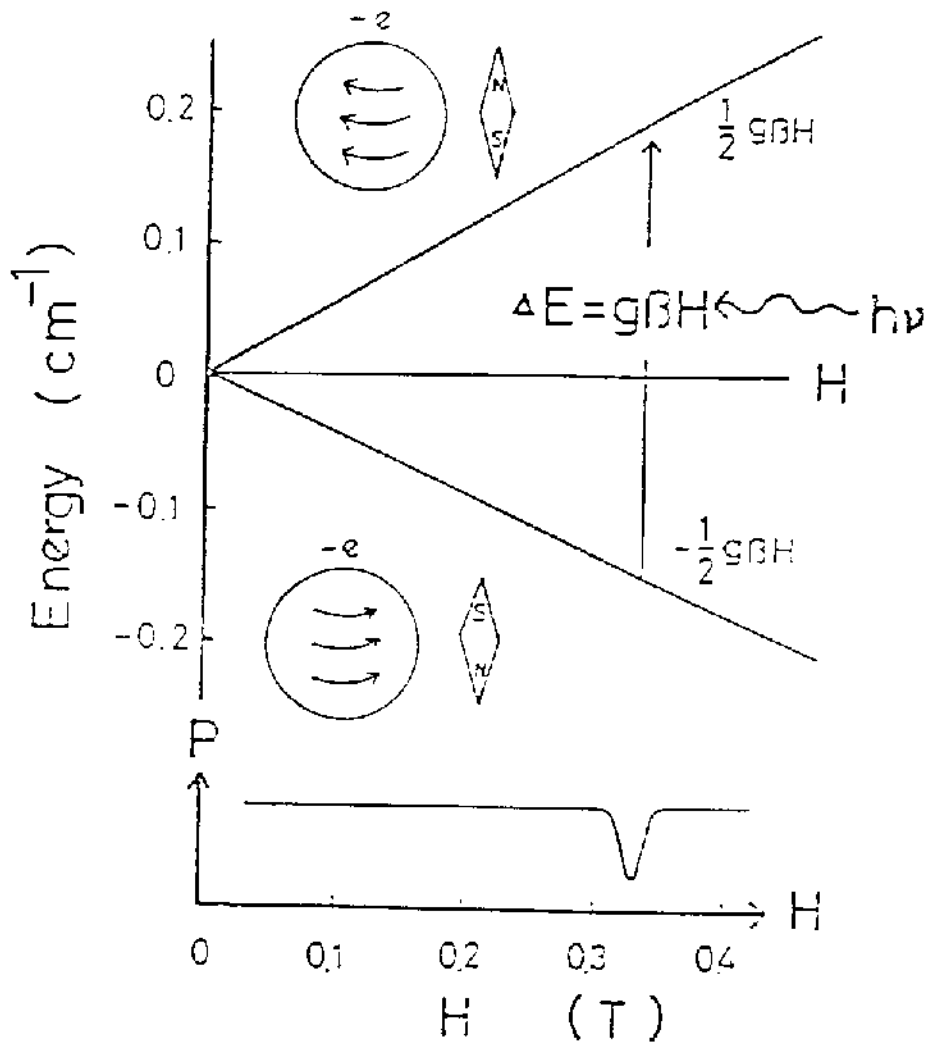


Figure 1-2 : Niveaux d'énergie de spins électroniques en fonction du champ magnétique externe. Une absorption de la micro-onde apparaît à une certaine valeur du champ magnétique lorsque l'énergie de séparation est équivalente au quantum d'énergie de la micro-onde $h\nu$ (d'après Ikeya, 1981a).

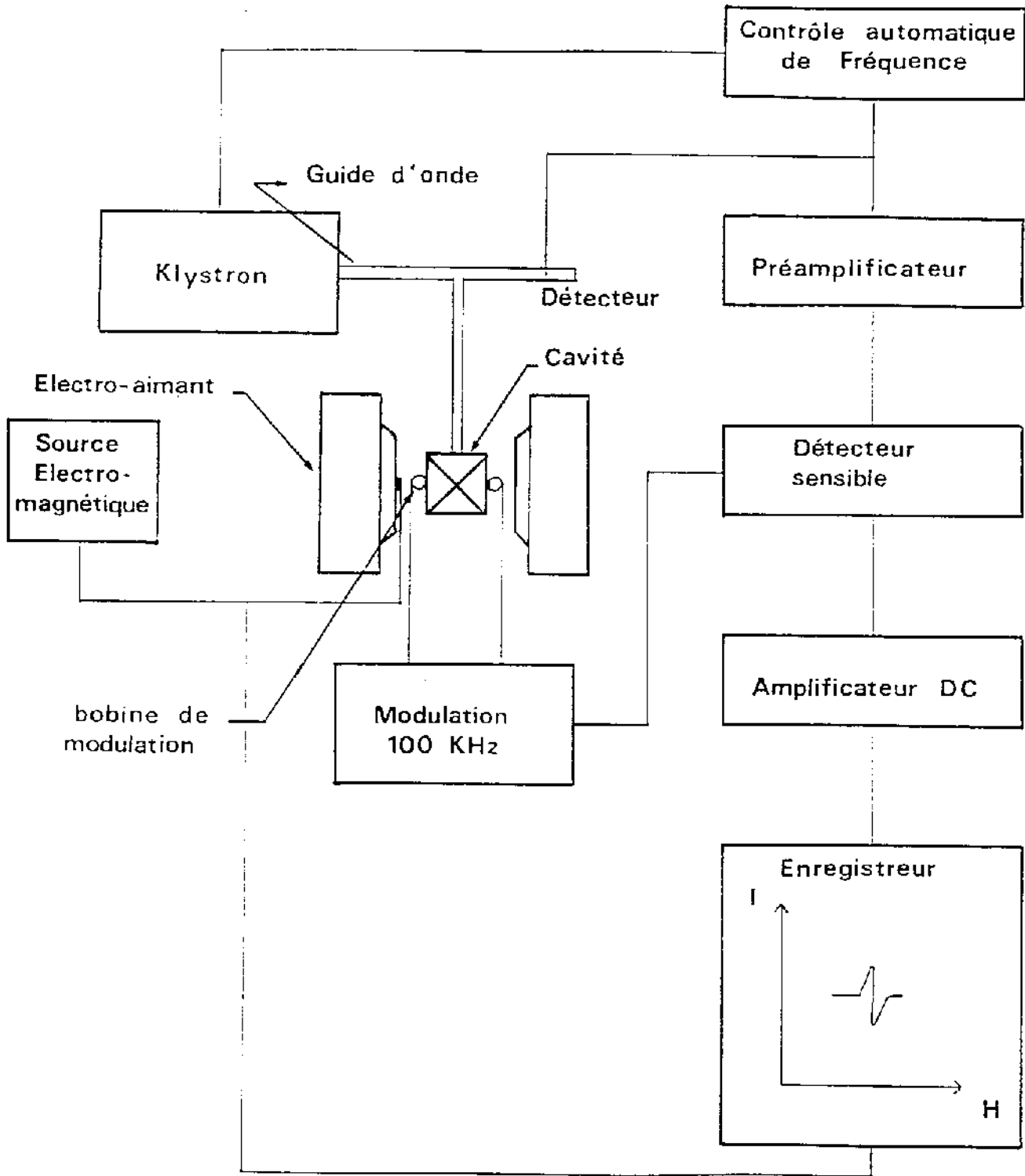


Figure I- 3 Descriptif de l'appareil de mesure: Spectrometre ESR

L'échantillon du cristal mesure, réduit en poudre, est placé dans un tube en quartz puis introduit dans une cavité. Une micro-onde de longueur d'onde $\lambda = 3\text{cm}$, est émise par le klystron (oscillateur) et envoyée dans la cavité contenant l'échantillon par un guide d'onde. Pour explorer la résonance, il est commode de superposer au champ magnétique constant un champ magnétique variable à fréquence rapide (100 KHz) qui induit une modulation de la puissance absorbée dans la cavité plus facilement détectable. L'amplitude de cette variation de puissance est proportionnelle à la dérivée première de la puissance absorbée au point M si l'amplitude de la modulation du champ magnétique est assez petite comme le montre la figure I-4(a). Elle est amplifiée et enregistrée: lorsque l'on fait varier lentement H, on obtient une courbe qui exprime la variation de la dérivée de la courbe de résonance (figure I-4(b)). L'ensemble du signal obtenu est le signal ESR.

Toutes les mesures ont été faites sur un spectromètre Varian E 109. Habituellement les mesures se font à fréquence fixe et à champ variable comme il l'a été dit auparavant. Les fréquences les plus employées sont de l'ordre de 9GHz (X-band), tandis que le champ magnétique est approximativement de 3000 Gauss. La température est ajustée selon le matériel étudié. Par exemple, pour le quartz, les centres aluminium et titane sont observables à 93K et avec une meilleure résolution à 77K, tandis que le centre germanium s'observe de façon optimale à 160K. La cavité est refroidie par un système de circulation d'azote liquide. Quant à la calcite, elle est observée à la température ambiante de la pièce, soit environ 20°C. Le tableau I-1 récapitule les conditions d'expérience utilisées le plus fréquemment pour les échantillons étudiés.

2-1-3 Le facteur g .

g est défini par la relation:

$$g = h\nu/\beta H$$

Nous avons vu que $g = 2.0023$ pour l'électron libre. Or les électrons dans un système ont un g différent de celui de l'électron

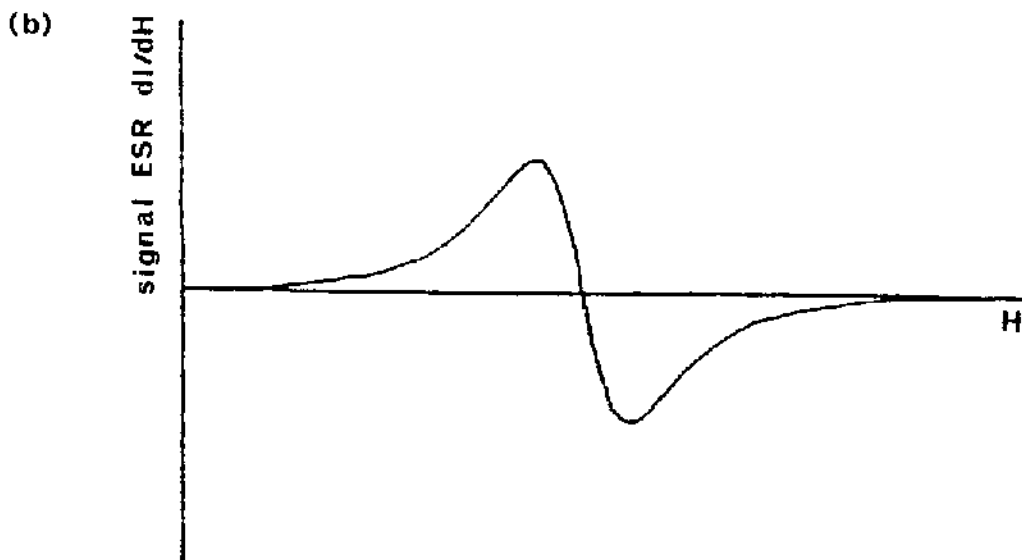
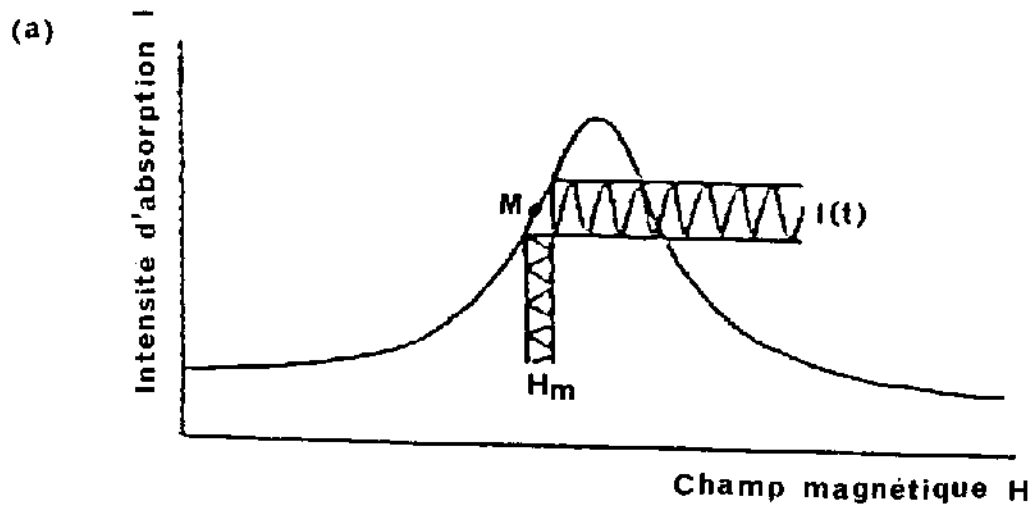


Figure I-4: Courbe d'absorption ESR et Dérivée première obtenues en superposant au champ magnétique constant H un champ magnétique variable (H_m). La dérivée représente le signal ESR.

	Puissance en mW	Modulation en G	Echelle en G	Mesure du champ en G	Température en K
Calcite	5	0.5	80	3208	291
QUARTZ	5	5	200	3240	77 ou 93
	20	5	200	3350	77 ou 93
	0.5	1.25	40	3245	163

Tableau I-1 Conditions d'expérience utilisées pour les échantillons étudiés

libre. En fait, il existe des interactions qui influent sur le moment angulaire orbital, dont deux principales qui sont:

- l'interaction spin-orbite.
- le moment angulaire orbital avec le champ externe H.

La mesure de g peut s'effectuer de deux façons. On peut mesurer expérimentalement la fréquence ν du klystron ainsi que la valeur du champ H correspondant à la résonance exprimée par l'équation ci-dessus.

Il est généralement plus facile de calculer g à partir du spectre ESR d'un échantillon étalon. La fréquence étant constante, on peut écrire:

$$h\nu = g_1\beta H_1 = g_2\beta H_2$$

$$\Rightarrow g_1 = g_2 H_2 / H_1$$

g_1 et H_1 correspondent au g et au champ de l'échantillon inconnu, et g_2 et H_2 à ceux de l'échantillon étalon. Il faut impérativement que les échantillons inconnu et de référence soient enregistrés dans les mêmes conditions d'expérience (température...). La figure I-5 montre un tel exemple de mesure pour le calcul du g du centre E' d'un échantillon de quartz de Terra Amata:

$$g_m H_m = g_p H_p$$

où m = échantillon dont on veut mesurer le g
 m = mesureur
 p = échantillon Varian de g standard ($g = 2.0028$)

$$g_m = g_p H_p / H_m$$

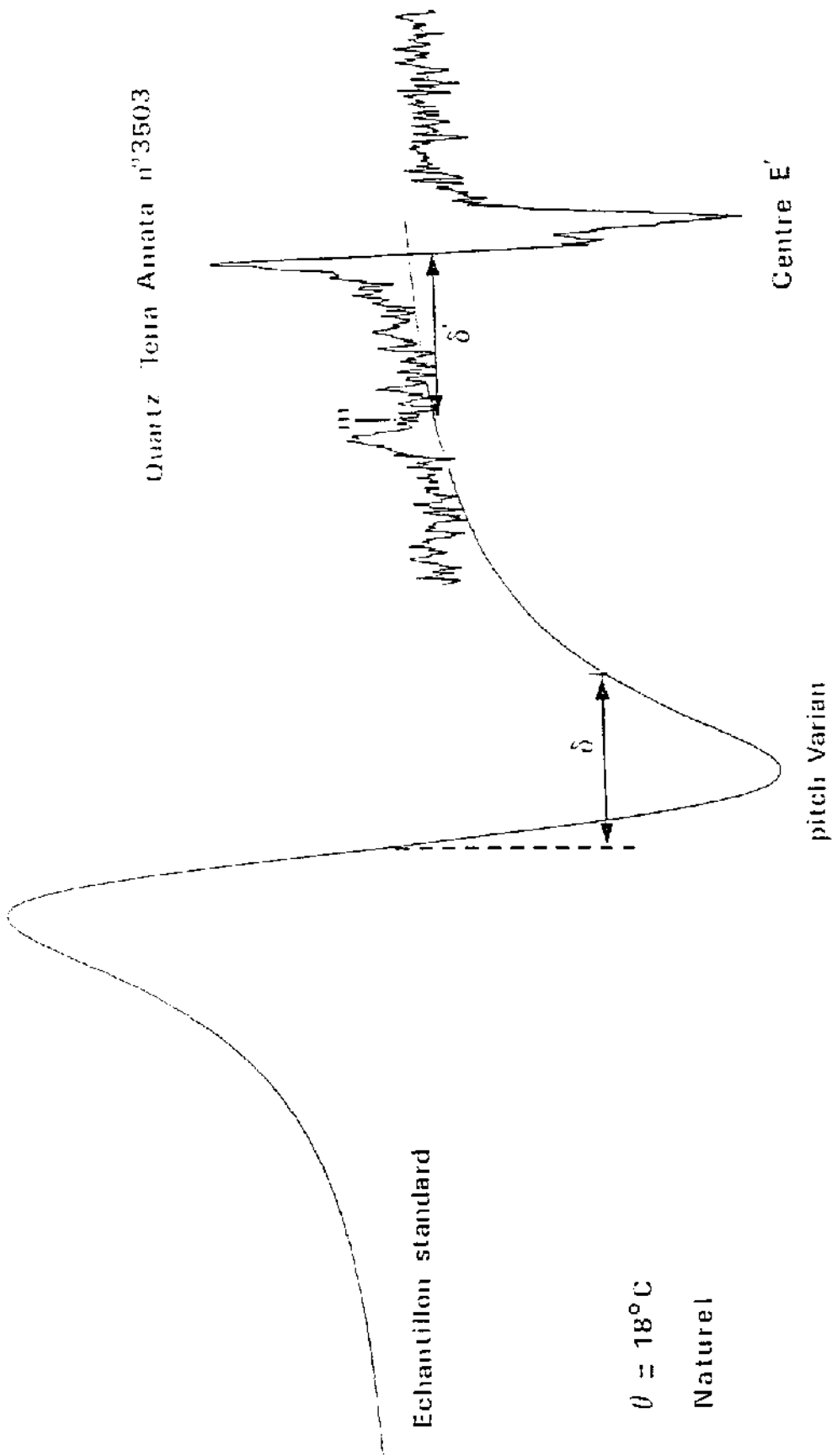


Figure I-5 Calcul du q du centre E' d'un échantillon de quartz (Terra Amata)

$$1) \text{ or } H_e = H_m + \delta \quad \Rightarrow \quad q_e = q_m H_m / H_m + \delta$$

$$q_e = q_m H_m / H_m (1 + \delta / H_m)$$

$$q_e = q_m (1 - \delta / H_m)$$

$$2) H_p = H_m - \delta'$$

$$q_m = q_p H_p / H_m$$

$$= q_p (1 - \delta' / H_m)$$

$$3) q_e = q_p (1 - \delta' / H_m) \cdot (1 - \delta / H_m)$$

$$q_e = q_p (1 - \delta' / H_m - \delta / H_m)$$

Application numériques:

$$\delta = 36 \text{ mm}$$

$$\delta' = 37 \text{ mm}$$

$$H_m = 3200 \text{ G}$$

$$q_p = 2.0028$$

$$q_e = 2.0005$$

2-1-4 La raie ESR.

La position d'une raie est caractérisée par la valeur du champ magnétique à laquelle l'absorption a lieu. Ceci s'explique par le fait qu'il est plus facile, d'un point de vue expérimental, de faire varier le champ magnétique que de faire varier une fréquence radar. Mais en fait, les raies ESR sont plutôt calibrées en fonction du facteur q , indépendant de la fréquence. On peut en effet situer q à l'intersection de la ligne de base et du signal.

Etant donné que l'absorption ESR a lieu à une valeur précise du champ appliqué, on pourrait s'attendre à ce que la raie soit infiniment fine. En fait, les raies ont toujours une largeur finie car les électrons interagissent non seulement avec le champ externe, mais également avec leur environnement dans l'échantillon. Donc pour une valeur donnée du champ résultant, la raie de résonance obtenue correspondra à une série de valeurs du champ

appliqué, et la largeur de la raie sera due aux interactions magnétiques du spin électronique avec l'environnement. Ces effets d'environnement sont reliés aux temps de relaxation. Ainsi chaque type d'environnement donnera naissance à un temps de relaxation particulier et donc à une forme et une largeur de raie particulières. Par exemple, une forte interaction entre le spin électronique et le réseau cristallin produit un temps de relaxation très court, donc un signal large. Par contre de faibles interactions réseau-spin impliquent des temps de relaxation plus longs et par conséquent donnent des signaux très étroits.

L'intensité du signal ESR est en fait l'aire totale sous la courbe d'absorption. Elle est fonction de :

- la fréquence ν .
- la concentration en spins électroniques.
- la température.

Il existe également des interactions entre les spins électroniques et des champs magnétiques créés par les noyaux appartenant à la même molécule. Cette interaction fait apparaître une structure particulière de la courbe d'absorption appelée structure hyperfine (hfs). Les séparations entre les raies sont déterminées par les moments magnétiques des noyaux concernés. On peut donc déduire le nombre de noyaux à partir du nombre de raies obtenues. La figure I-6 montre un spectre ESR dans un sédiment (I18, Araço) dans lequel six raies de structure hyperfine de manganèse sont en évidence. Une mesure directe de la distance entre ces raies donne l'échelle de mesure utilisée. Dans ce cas, elle est d'environ 100 Gauss.

2-1-5 Equation d'âge.

L'intensité du signal ESR est proportionnelle au nombre d'électrons piégés. En effet, une exposition constante aux radiations ionisantes (alpha, bêta ou gamma) implique une augmentation linéaire des électrons piégés en fonction du temps.

Sédiment Arago 43

$P = 1\text{mW}$

$M = 1\text{G}$

$SR = 1000\text{G}$

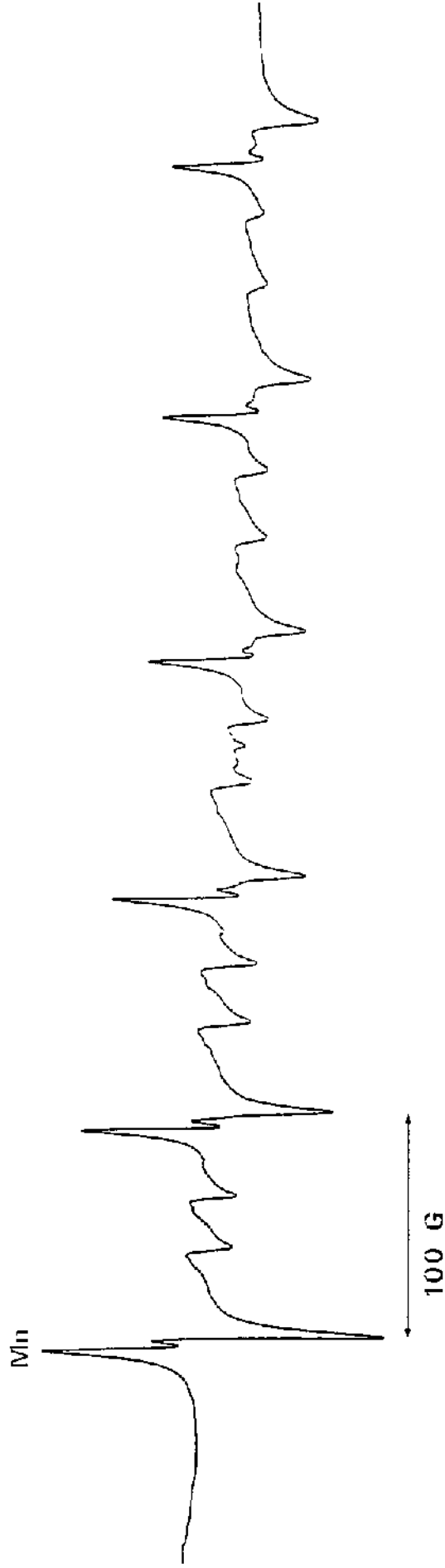


Figure I-6 Structure hyperfine de manganèse dans un sédiment (Arago I-18)

L'âge d'un échantillon mesuré par la méthode ESR est déterminé par la relation:

$$Age = DE/Da \quad (3)$$

où DE représente la dose équivalente de radiation reçue par l'échantillon, en Gray (Gy). Le Gray est l'unité de dose absorbée de radiation communiquant à un Kiloграмme de matière une énergie de un Joule. 1 Gy correspond à 100 rad.

Da est la dose annuelle d'irradiation, en milliGray/an (mGy/an).

Cependant, pour éviter les chiffres décimaux et par souci d'homogénéité, nous utiliserons les Kilorad (Krad) et les millirad (mrad) dans tous les calculs de ce mémoire.

2-2 Détermination de la dose équivalente (DE).

La dose équivalente est également appelée dose archéologique (DA) par les spécialistes de la TL. L'abréviation DA peut aussi correspondre à l'appellation dose accumulée. Afin d'éviter toute confusion avec Da, la dose annuelle, nous utiliserons l'expression dose équivalente (DE).

2-2-1 Le calcul de DE.

La dose équivalente est déterminée par la méthode de l'addition (figure I-7). Autrement dit, chaque échantillon réparti en portions homogènes et d'équale quantité, est soumis à une série d'irradiations gamma à l'aide d'une source au cobalt-60. Par ce procédé, on détermine une courbe de croissance de l'intensité du signal ESR. Pour chaque dose gamma, on obtient un point. Ces points s'alignent entre eux et on en déduit par extrapolation une dose équivalente gamma qui représente DE, à laquelle l'échantillon a été soumis depuis l'instant $t=0$, que l'on cherche à calculer.

L'instant $t=0$ peut correspondre au début de la formation de l'échantillon dans le cas d'un plancher stalagmitique par exemple. Il peut également s'identifier au moment où tous les pièces d'un

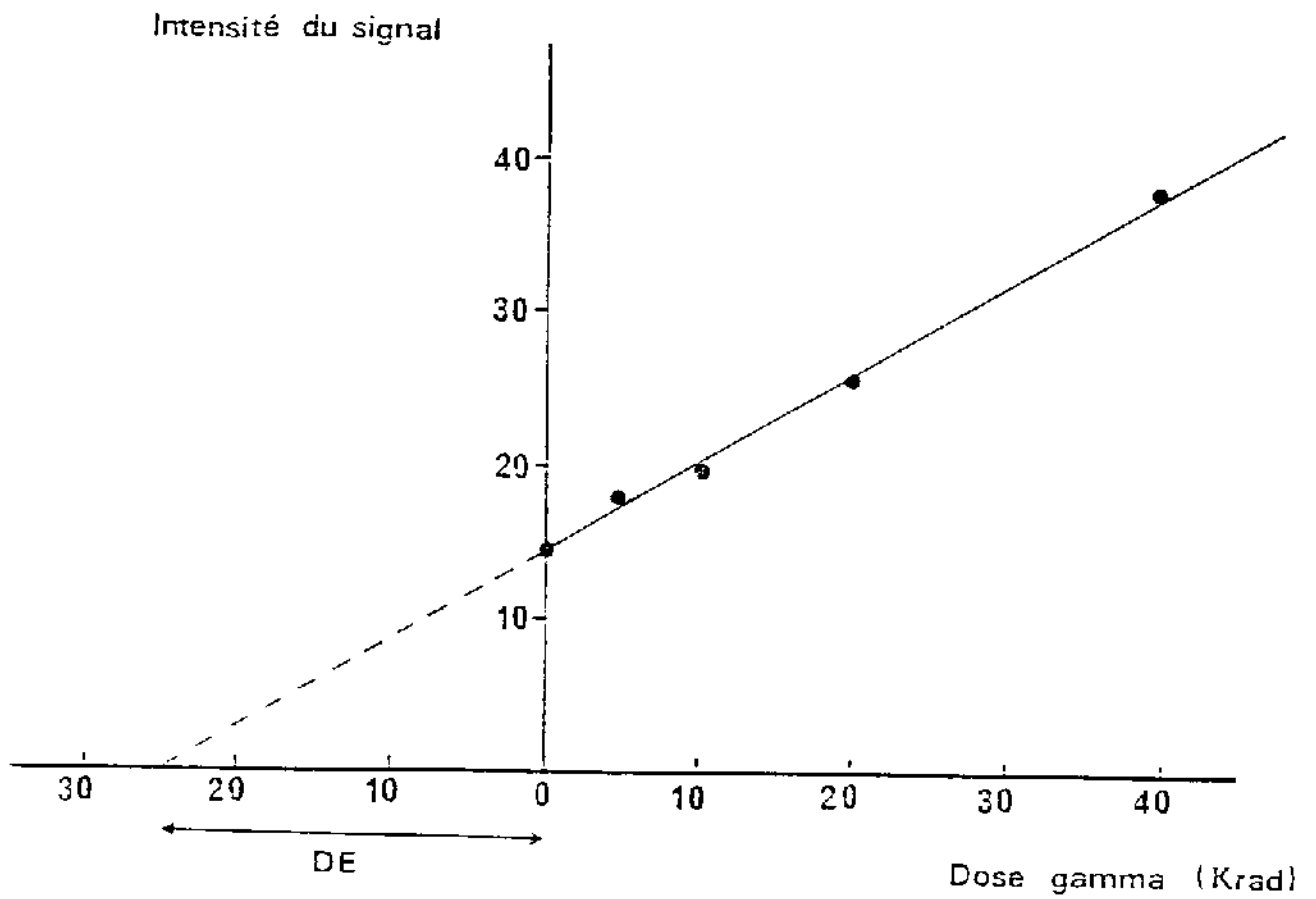


Figure I-7 Détermination de la dose équivalente (DE), par extrapolation d'une droite par la méthode de l'addition

échantillon ont été drainés. C'est le cas des sédiments cuits par une émission de lave.

La construction de la courbe de croissance du signal ESR est souvent perturbée par des effets de saturation. Cela provoque une augmentation non linéaire du signal (figure I-8). Si la valeur de saturation est atteinte très rapidement, la détermination de DE devient difficile. Dans les cas où la valeur de saturation n'intervient qu'au bout d'une très forte dose d'irradiation gamma, on calcule DE au moyen d'une équation exponentielle de premier ordre (Apers et al, 1981; Ikeya, 1981)

$$I = I_{\infty} (1 - e^{-\mu(D+DE)}) \quad (4)$$

$$\Leftrightarrow \ln(1 - I/I_{\infty}) = -\mu(D+DE) \quad (5)$$

dans laquelle.

I = intensité du signal pour une dose D de gamma

I_{∞} = intensité de saturation

μ = coefficient de sensibilité (pente)

DE = dose équivalente

μ et DE sont déterminés par la méthode des moindres carrés en posant I_{∞} dans l'équation (5). Ce procédé est répété, en modifiant I_{∞} , jusqu'à ce que le moindre carré dans la somme de $(I_{the} - I_{obs})^2$ soit obtenu (I_{the} est la valeur théorique de I dans l'équation (4)). L'incertitude ΔDE dans l'estimation de DE par ce procédé peut être approximativement évaluée par:

$$\Delta DE = \exp(\mu DE) / \mu I_{\infty} * \sqrt{\omega(I_{the} - I_{obs})^2 / n-3} \quad (6)$$

où n est le nombre de mesures, 3 est le nombre de variables inconnues dans l'équation (4) et donc n-3 est le degré de liberté. Le premier terme de droite de l'équation (6) représente l'inverse de la pente, $\Delta(D+DE)/\Delta I$ à D=0. Si μDE est petit, $\exp(\mu DE)$ peut être assimilé à 1. Le deuxième terme est la déviation standard ΔI pour chaque point mesuré. Le produit de ces deux termes est égal à ΔDE .

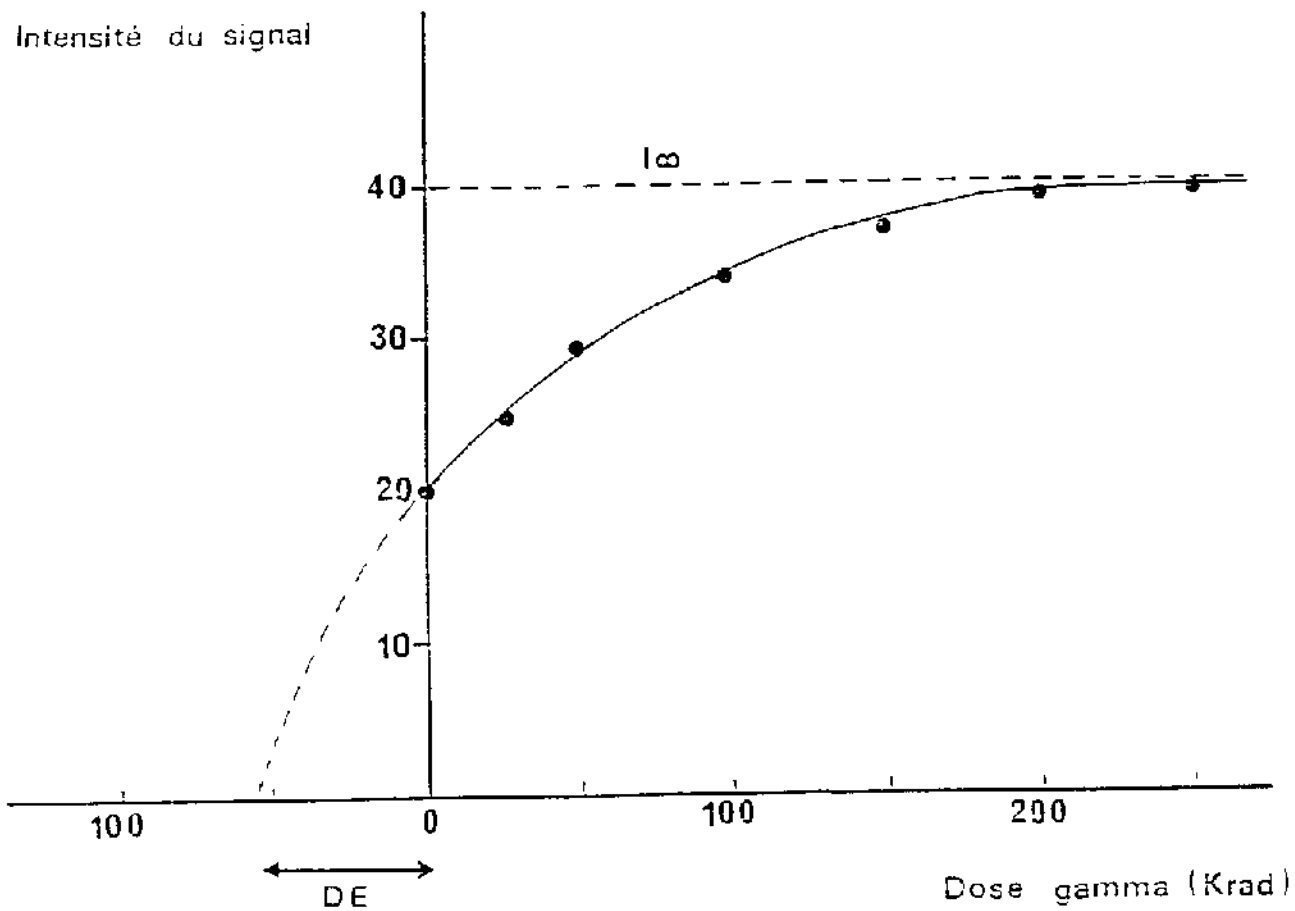


Figure I-8 Détermination mathématique de DE, par une loi exponentielle, en fonction des effets de saturation

2-2-2 Stabilité des pièges.

La stabilité des pièges est un élément de connaissance très important pour la détermination de l'âge. Considérons donc à présent plusieurs facteurs susceptibles d'influencer ou de modifier ce mécanisme.

- Expériences de recuit.

La relation entre la durée de vie τ et la température T (en Kelvin, K), des électrons piégés est donnée par l'expression:

$$1/\tau = \nu_0 \exp(-E/kT) \quad (7)$$

où E est la profondeur du piège (énergie d'activation pour la libération des électrons piégés), ν_0 est le facteur de fréquence (S^{-1}) et k est la constante de Boltzmann.

Wintle (1978) a mesuré la durée de vie des électrons dans six échantillons de calcite provenant de différents sites. Elle a obtenu une durée de vie, à 10°C, de $(1.1 \pm 0.5) \cdot 10^8$ ans. Les courbes de ces calcites, dans cette étude, sont caractérisées par un pic TL à 275°C avec une montée en température de 5°C/s.

En général, les spectres ESR d'échantillons naturels de calcites paléolithiques montrent trois raies d'absorption appelées par Yokoyama et al (1981a) h1, h2, h3.

h1 ($g = 2.0057$)

h2 ($g = 2.0021$)

h3 ($g = 2.0008$)

En outre l'existence d'une quatrième raie appelée large raie LR ($g = 2.0040$) a été mise en évidence par Apers et al (1981).

Ces types de pièges réagissent différemment quand on recuit

ces échantillons. En effet, après le recuit prolongé d'un échantillon à 180°C, tous les électrons piégés dans les sites marqués h2 et h3 disparaissent au profit du niveau h1 qui voit son intensité croître (figure I-9). Ceci suggère que l'existence des électrons dans le site h1 dans l'échantillon naturel est due à un transfert spontané mais partiel des sites h2 et h3 vers le site h1 à température ambiante durant les temps archéologiques.

Il est intéressant de constater que ces pièges réagissent de façon inverse lorsqu'on les soumet à une irradiation gamma artificielle (Yokoyama et al, 1981a). La figure I-10 comprend deux spectres I et II. Le spectre I correspond à l'échantillon naturel. Après une irradiation gamma de 47 Krad, le spectre II laisse apparaître une grande augmentation du site h3 alors que h1 et h2 ne bougent pratiquement pas.

Pour les quartz, des expériences concernant la stabilité de trois types de pièges (Al, Ti et Ge) en fonction de la température de recuit, sont exposées dans le paragraphe suivant.

- Effet de blanchiment (bleaching).

Des expériences de blanchiment par le soleil sur plusieurs échantillons de calcite (environ un mois d'exposition) ont révélé que seul le site h2 diminuait (Hennig et Grün, 1983). Mais ces expériences n'étant pas reproductibles, aucune conclusion ne peut être tirée à partir des calcites.

Par contre, les effets de blanchiment sont beaucoup mieux expliqués dans le cas des quartz et sont en fait à la base de la datation par TL (Wintle et Huntley, 1979, 1982). Ce mécanisme consiste à dater un échantillon à partir de l'instant où ses pièges, après avoir été vidés suite à une émission de lumière (soleil) ou de chaleur (lave volcanique), recommencent à fonctionner.

Nous avons tenté de dater par ESR, des quartz issus de sédiments éoliens provenant de la caune de l'Arago, ainsi que des quartz extraits de sables marins provenant du site de Terra Amata (Yokoyama et al, 1985b). Nous avons procédé à une irradiation par

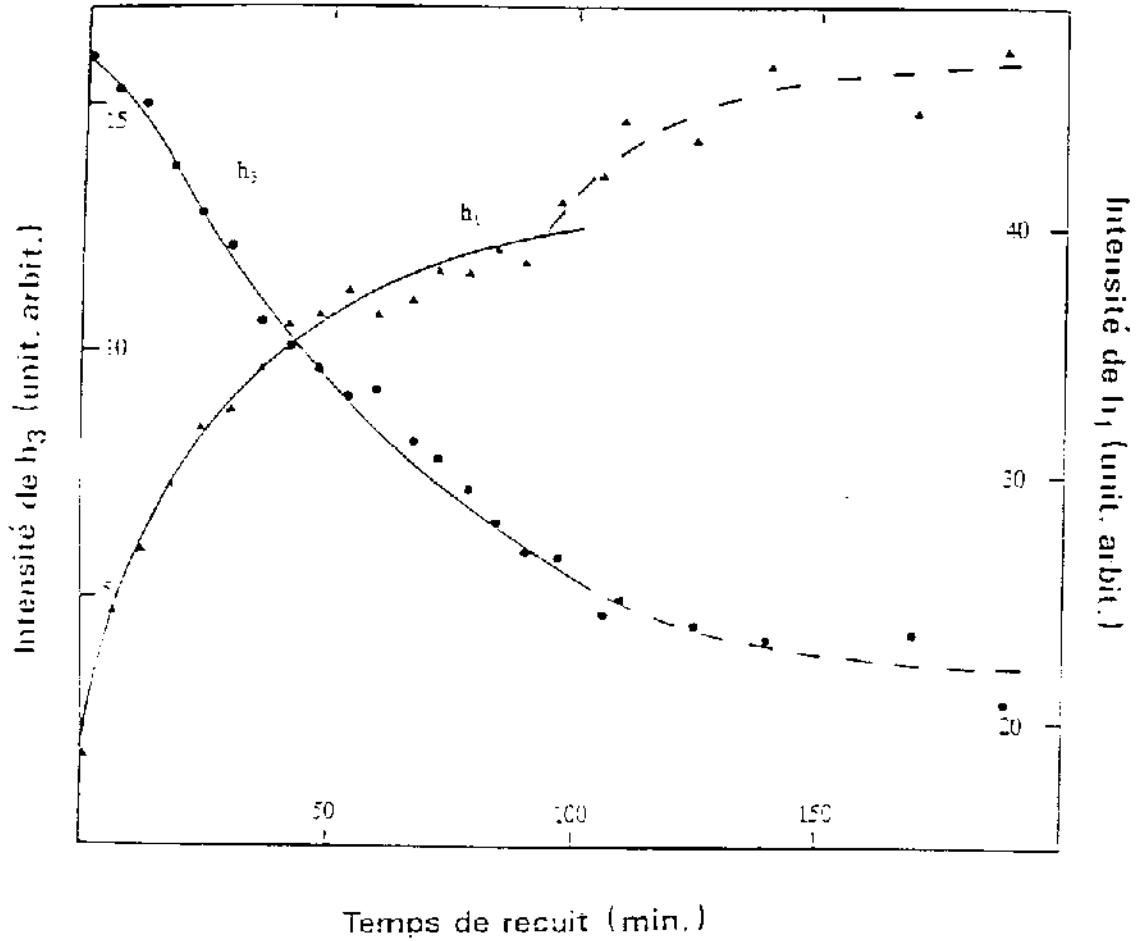


Figure I-9: Comportement de h_1 et h_3 en fonction du temps de recuit, à une température de recuit de 200 °C (d'après Yokoyama et al, 1983a).

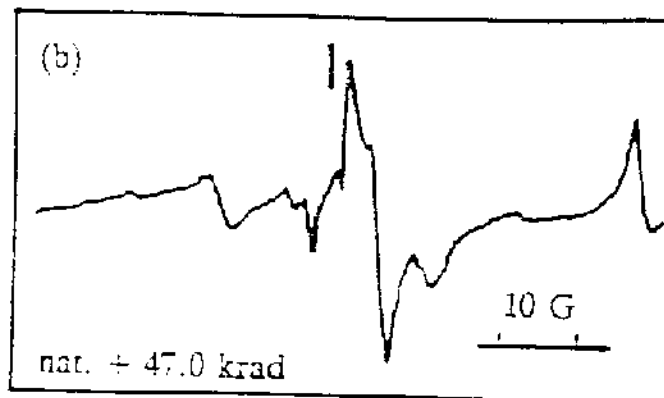
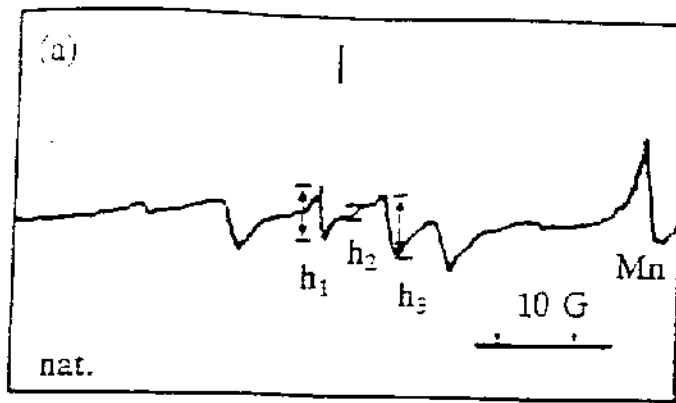


Figure E-30 Comportement de h_1 , h_2 et h_3 en fonction de l'irradiation gamma. Experience réalisée sur une calcite YC62 de l'Arago (Yokoyama et al, 1981a).

des rayons ultra-violet au moyen d'une lampe noire UV dont le spectre d'émission, de longueur d'onde comprise entre 300 et 400 nm, semblait bien correspondre aux UV émis par le soleil (Junger, 1983). Pour l'Araço (sédiment n°43), deux types d'échantillons ont été irradiés:

- Les quartz extraits du sédiment, dans lesquels l'intensité du centre aluminium décroissait. Les centres de l'aluminium et du titane sont décrits dans le paragraphe I-5.

- Les quartz dans le sédiment brut dont l'intensité du signal augmentait (figure I-11) et se comportait comme si l'échantillon avait subi une irradiation gamma. Une observation au microscope électronique à balayage du sédiment a montré que les grains de quartz sont recouverts par une fine pellicule d'oxyde ou de carbonate. Celle-ci ne laisse pas passer les UV et par conséquent, aucun drainage des centres Al ne peut s'effectuer. Cependant, des électrons créés à la surface de la pellicule, sous l'action des UV, migrent dans le quartz et sont piégés à leur tour. Après 160 minutes d'irradiation, l'intensité du signal résiduel représente 80% de l'intensité du signal de l'échantillon naturel, ce qui signifie que des améliorations doivent être effectuées dans le domaine expérimental.

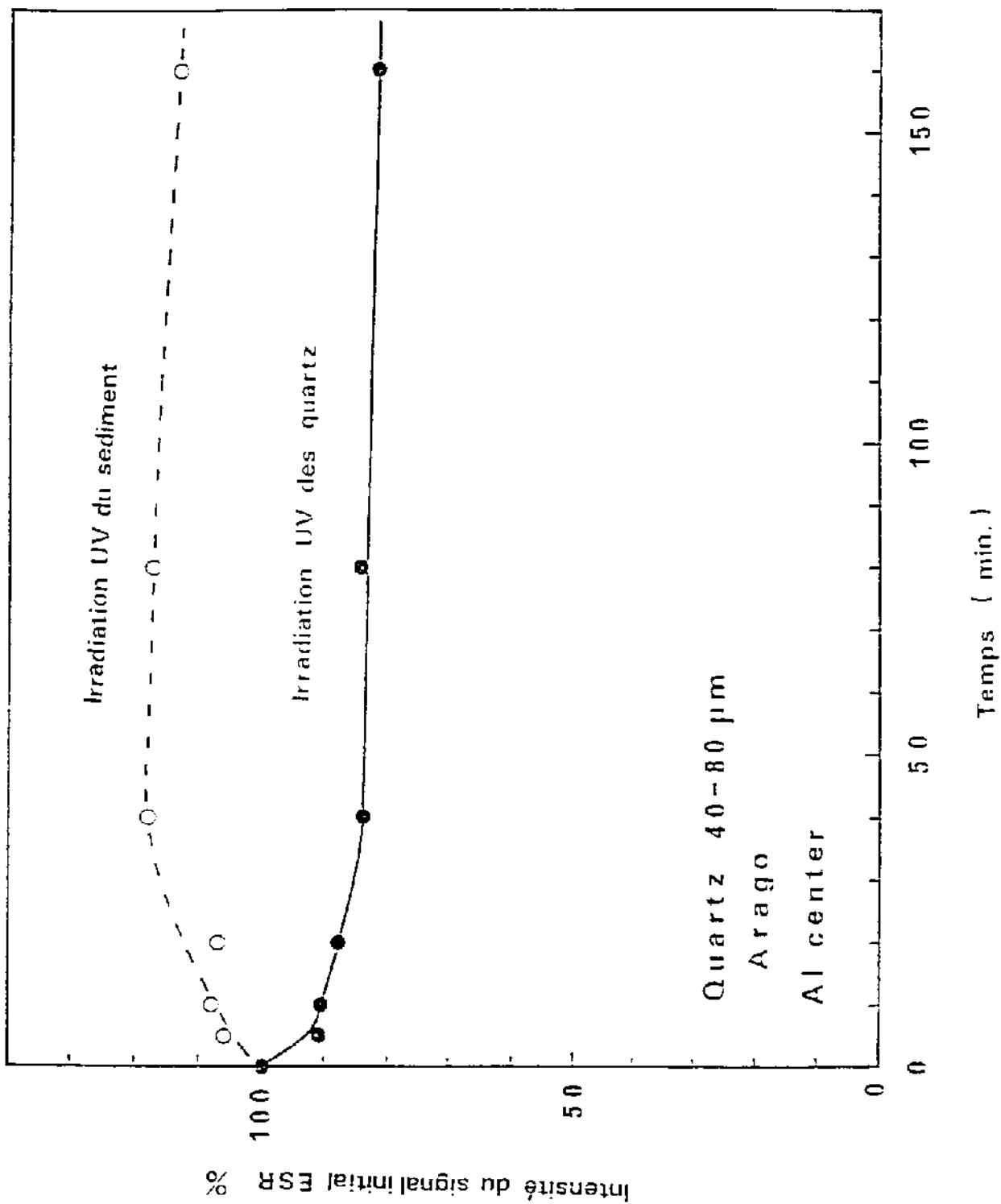


Figure I-11 Experience de blanchiment de quartz par irradiation UV (sédiment n°43, compris entre les sols E et F de l'ensemble III, zone I-18, de la Caune de l'Arago).

2-2-3 Principaux pièges utilisés.

Les principaux signaux pour lesquels nous mesurons la dose équivalente d'un échantillon sont :

- dans le cas de calcite ou aragonite, h1, h3 et LR.
- dans le cas de quartz, les centres Al et Ti.

- Justification de l'utilisation de h3 ou LR.

Dans le cas d'échantillons jeunes, dont l'âge est inférieur à 200.000 ans, il est possible d'utiliser indifféremment h1, h3 ou LR.

- Cependant, certains échantillons ne sont pas très purs. Des signaux de manganèse interagissent avec les pièges étudiés et modifient quelque peu leur hauteur. Il faut alors effectuer une correction par rapport au manganèse.

- Dans d'autres cas, le signal h3 est affecté par la superposition du signal h2. Celui-ci perturbe essentiellement la partie négative de h3. Ce dernier peut être également déformé par un pic dû au broyage et qui n'apparaît qu'après irradiation de l'échantillon.

Pour ces deux exemples, il est préférable d'utiliser le signal de Large Raie (LR).

Quand les échantillons sont plus anciens (âge supérieur à 200.000 ans), nous utilisons h1 ou LR étant donné que la durée de vie moyenne du piège h3 est de l'ordre de 200.000 ans (Yokoyama et al, 1983a).

En fait, chaque échantillon est un cas particulier. C'est la raison pour laquelle nous définirons pour tous les sites étudiés les problèmes inhérents aux échantillons.

- Problème du piège Large Raie (LR).

L'utilisation de la Large Raie a été proposée par l'équipe d' Apers (1981) pour la datation de planchers stalagmitiques de la

caune de l'Arago. Puis, le signal LR a été observé et étudié dans des travertins de Tchécoslovaquie et Turquie (Hennig et Grün, 1983). Dans ces échantillons jeunes, le signal LR, d'une largeur de 5 à 6 Gauss, croît linéairement en fonction de la dose gamma. Le calcul de la dose équivalente a donné un chiffre compris entre 10 et 40 Krad. Le signal LR ne disparaît pas après la dissolution totale de la calcite. Il est par conséquent attribué à la présence d'acide humique contenu dans la matière organique de l'échantillon.

De Cannière et al (1985) ont incorporé 1% d'acide humique à de la calcite synthétique. La différence entre les spectres de la calcite synthétique et celui de la calcite synthétique plus l'acide humique témoigne que la matière organique a une influence sur le signal LR. Cependant, lorsque l'on observe un spectre de calcite synthétique, après irradiation, il semble que le signal LR soit déjà présent bien que très petit et presque entièrement masqué. Ceci tend à impliquer que le signal LR est plutôt lié à des radicaux tels que CO_3^- , CO_3^{3-} qui sont présents à la fois dans le carbone d'origine minérale et le carbone organique (Yokoyama, communication personnelle).

Deux échantillons provenant des sites de l'Arago (Arago 19) et d'Atapuerca (TZY3) ont été analysés. Dans les deux cas, une teneur en matière organique inférieure à 0.1% a été observée. Ceci implique que la matière organique n'a pas d'influence sur le signal LR pour ces deux échantillons. Cependant, au-delà d'une certaine proportion, le carbone d'origine organique devient gênant lorsque l'on utilise le signal LR. Il faut donc éviter de prendre des échantillons dont la teneur en matière organique excède 0.1%.

2-3 Détermination de la dose annuelle (Da).

Rappelons qu'un âge ESR est obtenu par:

$$\text{Age} = DE/Da$$

L'incertitude d'un âge ESR résulte essentiellement de l'erreur provenant de l'évaluation de Da. La détermination de DE est en principe réalisée avec une incertitude inférieure à 5%. Par contre, l'estimation de la dose annuelle s'accompagne généralement d'une erreur de $\pm 10\%$.

La dose annuelle (Da) est déduite de la radioactivité de l'échantillon et de celle de son environnement.

$$Da = kD\alpha + D\beta + D\gamma + D_C \quad (8)$$

où $D\alpha$, $D\beta$, $D\gamma$ sont les doses annuelles déposées par la radioactivité alpha, bêta, gamma des différents radionuclides.

D_C est la dose due aux rayonnements cosmiques.

k = facteur tenant compte de la moindre efficacité des alpha à produire des électrons piégés.

Le calcul réel dépend de la nature de l'échantillon. En effet, selon que l'on travaille sur de la calcite, des ossements, des grains de quartz..., le calcul de la dose annuelle fait intervenir des facteurs différents.

De plus, chaque échantillon est un cas particulier, ce qui rend difficile l'établissement d'une règle générale permettant le calcul de Da. Il est donc préférable de voir comment se calcule la dose annuelle pour les différents types d'échantillons étudiés dans le cadre de ce travail.

2-3-1 La calcite.

Da peut s'écrire sous la forme:

$$Da = Da \text{ interne} + Da \text{ externe} \quad (9)$$

La dose interne correspond à l'activité de l'uranium, du thorium et du potassium à l'intérieur même de l'échantillon.

La dose externe est due aux concentrations d'U, Th et K dans le milieu environnant l'échantillon.

On peut écrire:

$$D_a \text{ interne} = kD\alpha_i + D\beta_i + D\gamma_i$$

$$D_a \text{ externe} = D\gamma_e + D_C$$

car pour la calcite, $D\alpha_e$ et $D\beta_e$ sont nulles (voir ci-dessous).

- La dose interne.

La contribution de la dose alpha dans la dose totale annuelle est petite pour une technique de gros grain (celle que nous utilisons, voir paragraphe suivant). Pourtant l'incertitude de D_a est principalement due à la dose alpha. Le calcul de la dose interne se fait comme suit:

On multiplie la radioactivité alpha, bêta, gamma émise par les radionuclides appartenant aux familles de l'uranium 238 et 235, du thorium 232, du potassium 40 par l'activité de ces radionuclides.

Remarques concernant le calcul de la dose alpha:

- Pour la famille de U-235, on tient compte du rapport d'activité U-235/U-238 dans la nature qui est égal à 0.046.

- Le potassium n'intervient pas dans ce calcul.

- Il faut également prendre en compte le facteur k défini précédemment. Il est déterminé en soumettant les échantillons à un rayonnement alpha artificiel.

La figure I-12 montre à titre indicatif l'influence de k sur l'âge d'une calcite de l'Arago.

- La dose externe.

Elle dépend de l'épaisseur de l'échantillon. En effet, si

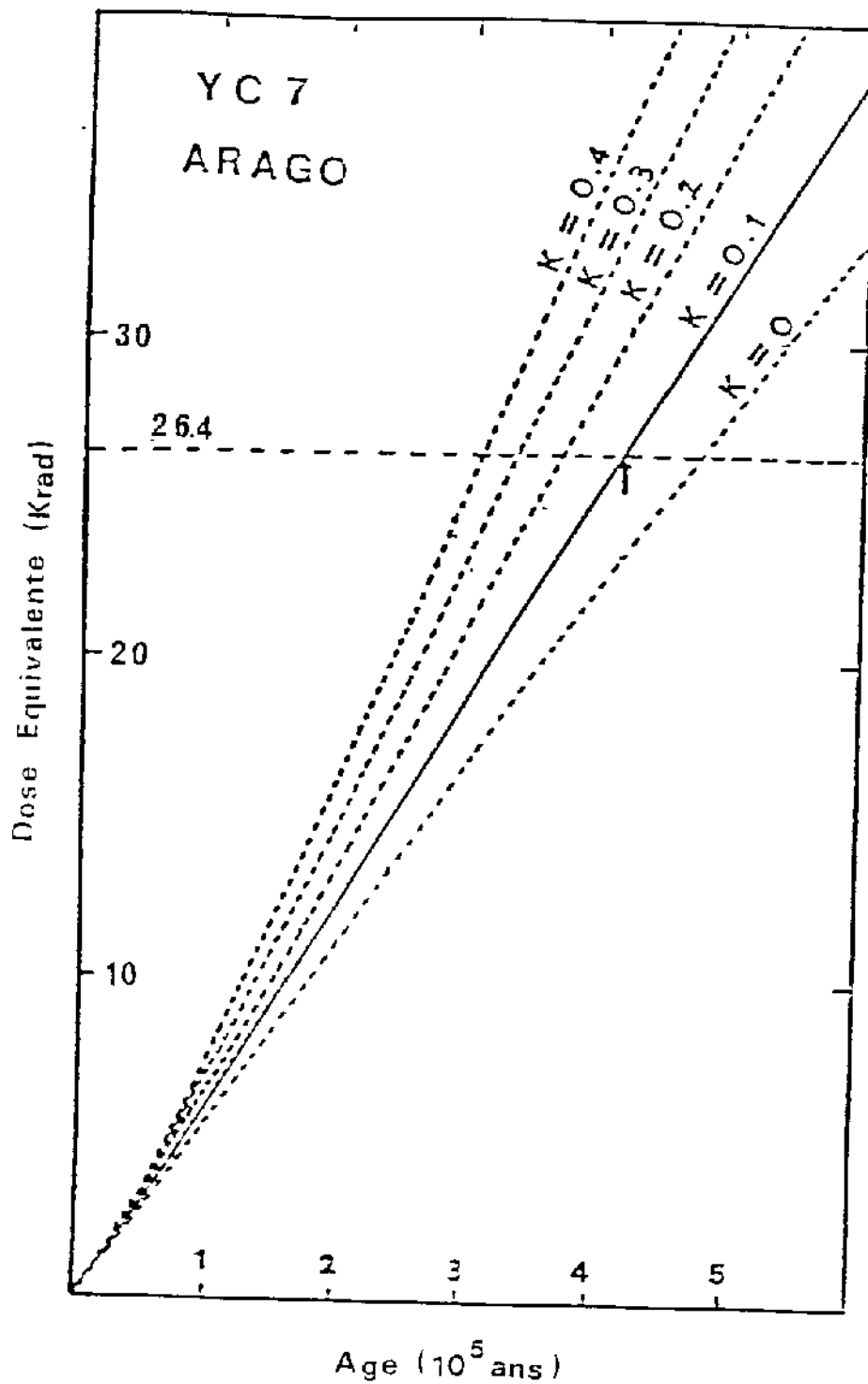


Figure I-12. Influence du facteur k sur la détermination de l'âge d'une stalagmite (YC7, Arago). L'âge est obtenu par l'intersection (indiquée par une flèche) de la ligne DE de 26.4 Krad et de la courbe de dose accumulées pour k = 0.1 (d'après Yokoyama et al, 1981a).

l'on tient compte du pouvoir pénétrant des rayons alpha et bêta (respectivement de 25 μ m et 2mm environ) et de la préparation des échantillons (on élimine les parties superficielles), la dose externe se calcule en fonction des doses gamma externe et cosmique. La dose gamma externe s'obtient en multipliant la radioactivité gamma émise par les radionucléides des familles de U-238, U-235, Th-232 et K-40 par leur activité respective.

La dose cosmique est faible mais non négligeable. Pour établir son calcul, on peut considérer trois composantes:

Les électrons

Les nucléons (qui sont essentiellement des neutrons)

Les muons dont la décroissance est très lente.

Les deux premières composantes peuvent être considérées comme quantités négligeables étant donnée leur décroissance très rapide. La profondeur x, à laquelle se trouve l'échantillon dans la grotte, est également prise en compte dans la formule utilisée par Yokoyama et al (1981b).

$$D_C = 5.2 e^{-x/20} + 12.1 e^{-x/160} + 12.5 e^{-x/2500} \quad (10)$$

Chaque terme correspond respectivement aux composantes électrons, nucléons, muons.

Les valeurs des doses alpha, bêta et gamma, pour les différents nuclides (classés en neuf groupes), sont données dans le tableau I-2.

2-3-2 La Quartz.

Pour ce type d'échantillon, la dose interne est considérée comme étant négligeable. Le calcul de la dose annuelle revient donc à considérer uniquement la dose externe du sédiment renfermant ce minéral.

La dose alpha est calculée en tenant compte de l'élimination de la partie superficielle des grains par l'acide fluorhydrique (HF). L'action de l'attaque par HF a été discutée par plusieurs auteurs (Bell et Zimmerman, 1978; Bell, 1979b; Valladas et Valladas, 1982). L'HF n'attaque pas le grain uniformément. En

Groupes de nuclides	$F_i D_{\alpha i}$ mrad/an	$D_{\beta i}$ mrad/an	$D_{\gamma i}$ mrad/an
$^{238}\text{U} + ^{234}\text{Th}$ $^{234m}\text{Pa} + ^{234}\text{Pa}$ \rightarrow	36.08	7.71	0.14
^{234}U	43.75	0.13	0
^{230}Th	42.35	0.14	0
^{226}Ra	43.98	0.03	0.05
^{222}Rn + descendants	251.51	11.67	14.79
$^{235}\text{U} + ^{231}\text{Th}$	38.75	1.06	1.38
^{231}Pa + descendants	395.07	9.06	3.46
^{232}Th + descendants	377.02	11.96	20.61
^{40}K (1% K)	0	83.03	24.92

TABEAU I-2 Valeur des doses alpha, bêta, gamma ($D_{\alpha i}$, $D_{\beta i}$, $D_{\gamma i}$) pour chaque groupe de nuclides.

F_i est le facteur de correction pour la dépendance d'énergie de la dose alpha.

$D_{\beta i}$ comprend les doses dues aux électrons.

$F_i D_{\alpha i}$, $D_{\beta i}$ et $D_{\gamma i}$ sont exprimées pour une activité de 1 dpm/g, sauf pour le potassium dont les valeurs sont exprimées en pourcentage.

$D_{\alpha i}$, $D_{\beta i}$ et $D_{\gamma i}$ sont calculées selon les valeurs données par Bell (1976, 1977, 1979).

effet, Bell et Zimmerman (1978), ont montré que l'HF diffusait dans les quartz créant ainsi des sortes de petites "tranchées". Après une attaque HF de 45 minutes, la dose alpha n'est pas complètement éliminée (figure I-13). Pour des grains de 100 μ m, nous avons multiplié par un facteur géométrique f_G de 0.5, étant donné que le pouvoir pénétrant des rayons alpha dans la matière est de 25 μ m. Ce facteur a un grand pourcentage d'erreur mais celle-ci est atténuée par le fait que la contribution alpha est inférieure à 10% pour la dose externe.

L'atténuation de la dose alpha provenant des séries de l'uranium et du thorium dans les grains de quartz compris entre 10⁻³ mm et 1mm est décrite dans le tableau I-3 (Bell, 1980).

La dose bêta se calcule en tenant compte de l'atténuation du rayonnement bêta dans le grain. Autrement dit, la dose bêta est moins forte à l'intérieur du grain qu'à l'extérieur. Il est clair que là aussi, la taille du grain a une importance. Le tableau I-4, établi par Mejdahl (1979), montre la proportionnalité qui existe entre la taille des grains et l'atténuation de la dose bêta.

Le pouvoir pénétrant des rayons gamma dans la matière est d'environ 40cm. Par conséquent, les facteurs de géométrie ou d'atténuation interviennent très peu dans le calcul de la dose gamma. Celui-ci se fait de la même façon que pour la calcite (dose externe bien entendu).

La dose due aux rayons cosmiques se calcule par la même équation (10) que pour la calcite.

Enfin, pour les sédiments, de même que pour les ossements, la teneur en eau W intervient. En effet, l'activité des radionuclides est plus forte dans un matériel imbibé d'eau. Pour calculer l'activité, on fait les mesures d'un poids sec par rapport à un poids humide.

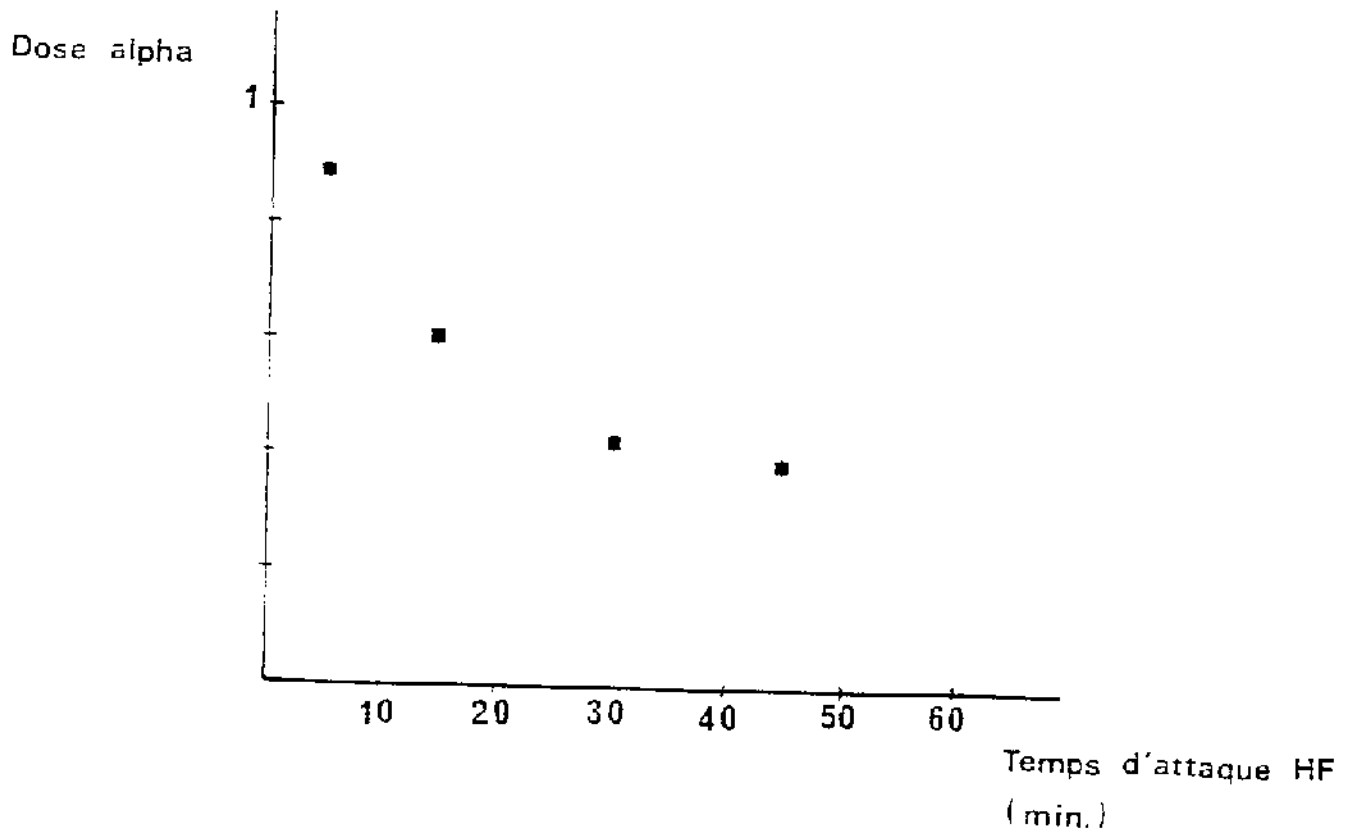


Figure I-13 Diminution de la dose alpha en fonction du temps d'attaque de HF

Grain Diameter (µm)	Uranium series	Thorium series
1.0	0.990	0.991
2.0	0.979	0.982
3.0	0.969	0.973
4.0	0.958	0.964
5.0	0.947	0.955
6.0	0.936	0.945
7.0	0.925	0.936
8.0	0.914	0.926
9.0	0.903	0.917
10	0.892	0.907
15	0.834	0.859
20	0.772	0.807
30	0.628	0.690
40	0.502	0.567
50	0.414	0.471
60	0.350	0.402
70	0.303	0.349
80	0.266	0.308
90	0.238	0.275
100	0.215	0.246
150	0.144	0.167
200	0.108	0.126
250	0.087	0.101
300	0.073	0.084
400	0.054	0.063
500	0.045	0.050
1000	0.022	0.025

TABLEAU I-3 Attenuation de la dose alpha en fonction de la taille des grains de quartz (d'apres Bell, 1980).

Diameter (mm)	⁴⁰ K β	²³² Th series			²³⁸ U series*		
		β	IC ^b	β-IC	β	IC ^b	β+IC
0.005	0.0018	0.0119	0.0917	0.0225	0.0072	0.0793	0.0120
0.010	0.0035	0.0188	0.1523	0.0366	0.0120	0.1530	0.0214
0.015	0.0053	0.0242	0.2060	0.0484	0.0166	0.2118	0.0296
0.020	0.0071	0.0289	0.2492	0.0582	0.0209	0.2563	0.0366
0.030	0.0106	0.0373	0.3154	0.0743	0.0282	0.3167	0.0475
0.040	0.0141	0.0449	0.3645	0.0875	0.0350	0.3558	0.0564
0.050	0.0177	0.0520	0.4030	0.0988	0.0413	0.3835	0.0642
0.060	0.0212	0.0587	0.4350	0.1088	0.0474	0.4051	0.0713
0.070	0.0248	0.0651	0.4630	0.1181	0.0532	0.4229	0.0779
0.080	0.0283	0.0713	0.4885	0.1269	0.0586	0.4386	0.0840
0.090	0.0318	0.0771	0.5122	0.1351	0.0641	0.4527	0.0901
0.100	0.0354	0.0828	0.5344	0.1427	0.0692	0.4659	0.0957
0.120	0.0424	0.094	0.574	0.158	0.079	0.490	0.106
0.140	0.0494	0.104	0.608	0.171	0.089	0.513	0.117
0.160	0.0563	0.114	0.637	0.184	0.098	0.534	0.127
0.180	0.0633	0.123	0.662	0.195	0.107	0.554	0.137
0.200	0.0702	0.132	0.684	0.206	0.115	0.573	0.146
0.250	0.0877	0.153	0.727	0.229	0.137	0.615	0.169
0.300	0.1052	0.173	0.759	0.251	0.156	0.651	0.189
0.400	0.1402	0.209	0.802	0.288	0.196	0.706	0.230
0.500	0.1748	0.241	0.831	0.320	0.229	0.744	0.263
0.600	0.209	0.271	0.851	0.348	0.261	0.773	0.295
0.800	0.275	0.325	0.879	0.399	0.318	0.812	0.351
1.00	0.337	0.373	0.898	0.443	0.369	0.838	0.400
1.2	0.394	0.416	0.911	0.482	0.412	0.857	0.442
1.4	0.447	0.456	0.921	0.518	0.451	0.872	0.479
1.6	0.495	0.491	0.929	0.550	0.485	0.884	0.512
1.8	0.535	0.523	0.936	0.578	0.516	0.893	0.541
2.0	0.571	0.553	0.941	0.604	0.544	0.902	0.565
2.5	0.643	0.614	0.951	0.659	0.602	0.917	0.623
3.0	0.696	0.672	0.957	0.701	0.644	0.929	0.667
4.0	0.763	0.729	0.963	0.760	0.716	0.944	0.731
5.0	0.807	0.772	0.970	0.794	0.751	0.953	0.773
6.0	0.835	0.802	0.974	0.825	0.782	0.959	0.803
8.0	0.873	0.840	0.978	0.859	0.833	0.967	0.842
10.0	0.896	0.864	0.980	0.879	0.855	0.972	0.866

* For ²³²Pa. F (x, x₀) values for ⁴⁰Ca has been used.
^b IC = internal conversion electrons plus Auger electrons.

TABLEAU I-4 Attenuation de la dose bêta en fonction du diamètre des grains de quartz (d'après Majdani, 1979).

2-3-3 Les coquilles marines.

La préparation des échantillons (élimination des parties superficielles) permet de supprimer $D\alpha_e$ mais pose un problème pour $D\beta_e$. D'autre part, on peut considérer que $D\gamma_1$ est négligeable. Pour calculer la dose annuelle d'une coquille marine, il faut tenir compte des doses alpha et bêta internes et des doses bêta et gamma externes.

2-3-4 Méthodes de mesures.

La détermination de l'activité des différents radionuclides concernés par cette étude se fait par spectrométrie gamma non destructive utilisant un détecteur de germanium à haute pureté (Ge HP). Le tableau I-5 donne un exemple de détermination de l'activité des radionuclides contenus en différents endroits au-dessus du sol F de l'ensemble III de la caune de l'Arago (Yokoyama et al, 1982). Les activités sont données en dpm/g de poids sec sauf pour le K où elle est donnée en %.

Nuclides	TA1 I-18 40cm au-dessus du sol F	TA2 J-18 40cm au-dessus du sol F
U-238	1.66±0.06	1.50±0.08
Ra-226	1.31±0.08	1.29±0.10
Rn-222	1.31±0.01	1.21±0.02
Ra-228	1.84±0.02	1.77±0.03
Th-228	1.84±0.02	1.77±0.03
K-40 (%)	1.31±0.01	1.22±0.01

TABLEAU I-5: activité des radionuclides déterminée en deux endroits de l'ensemble III de la caune de l'Arago.

Les mesures de dose gamma sont effectuées soit de la même façon, soit au moyen de dosimètres sensibles disposés in-situ. Cette dernière méthode est plus précise. Par exemple, les rayons gamma sont atténués dans un plancher stalagmitique, phénomène qui n'est pas décelable par la mesure de l'échantillon seul en laboratoire.

3- Préparation des échantillons.

Deux types d'échantillons sont utilisés.

3-1 La calcite.

Pour cette étude, la calcite est prélevée principalement sous forme de planchers stalagmitiques, stalagmites et coquilles marines. Seule la partie la plus pure de l'échantillon brut est conservée. Pour cela, il convient d'éliminer toutes les impuretés visibles telles que les encroûtements superficiels, les lits interstratifiés de nature et couleur différentes. Les échantillons ainsi préparés sont cassés en petits morceaux puis broyés dans un mortier en agate. Nous obtenons ainsi une poudre homogène.

Les échantillons de coquilles marines sont également préparés selon ce procédé.

3-2 Le quartz.

Les grains de quartz ont été extraits de sédiments quaternaires d'origine différents, à savoir :

- de sables eoliens (caune de l'Arago).
- de sables de plage (site de Terra Amata).
- de sédiments cuits par des laves (Massif Central, France).

Dans tous les cas, la méthode utilisée pour leur extraction est analogue à celle que pratiquent les personnes utilisant la TL. Une fraction qui varie de 40 à 200 μ m, en fonction de la nature du sédiment, est tamisée. Elle est lavée à l'eau, traitée à l'acide chlorhydrique concentré (HCl) afin de dissoudre les carbonates, lavée à l'eau puis à l'acétone.

Dans un deuxième temps, cette fraction est attaquée par de l'acide fluorhydrique à 40% (HF) durant une période qui varie de 5 à 60 minutes selon la nature du sédiment, puis abondamment rincée à l'eau et à l'acétone. Elle est enfin séchée dans une étuve à 60°C.

En ce qui concerne les sédiments cuits par des laves, il a été nécessaire d'utiliser:

- un séparateur magnétique pour éliminer les minéraux lourds.

- une cuve à ultra-sons, pour éliminer plus complètement les feldspaths que l'HF n'avait pas entièrement dissous.

Pour n'importe quel type d'échantillon (calcite, quartz...), un gramme ou deux de poudre sont suffisants pour la datation.

4- Limites de la méthode ESR.

Comme le montre la figure 0-2, le "champ d'action" de la méthode ESR couvre pratiquement toute la période du Paléolithique.

En ce qui concerne la limite inférieure, des grains de quartz issus de sédiments cuits par des laves du Massif Central ont été datés de 20.000 ± 3.000 ans. Tous les détails de cette étude sont donnés au paragraphe suivant. Il est possible de dater des échantillons plus récents par cette technique. Cependant pour cela, il est nécessaire d'utiliser par exemple, le dispositif d'accumulation de spectres, et le temps de mesure est plus long: une ou plusieurs heures au lieu de huit minutes sont indispensables pour obtenir un spectre ESR.

La limite supérieure de la méthode ESR est de l'ordre du million d'années et à ce titre cette technique est intéressante car elle permet de dater des sites préhistoriques très anciens. Le plancher stalagmitique de base de la grotte du Vallonet est daté de 1415.000 ± 198.000 ans (voir chapitre VI). Mais il est possible de dépasser cet âge. En effet, la technique de datation par ESR est dépendante de la durée de vie moyenne des pièces utilisées et de la saturation des pièces à électrons. Pour la calcite, une étude a été faite quant à la durée de vie de ces pièces (Yokoyama et al, 1985a). Les résultats de cette expérience sont exprimés dans le tableau I-6. L'utilisation de h3 est limitée à cause de sa durée de vie moyenne. Etant donné que la durée de vie des pièces h1 et LR est de l'ordre de 10^8 et 10^7 ans respectivement, la limite pratique de la datation peut dépendre plutôt de la saturation des pièces à électrons pour ces signaux.

Un exemple de datation d'échantillons anciens illustre bien ces données, à savoir la grotte de Colombo en Italie (figure A). Ce site se trouve près de la grotte de Basura dans laquelle une empreinte d'homme néandertalien a été retrouvée. Ces deux grottes sont situées dans le nord de l'Italie. La grotte de Colombo s'ouvre vers le sud-ouest, dans des calcaires dolomitiques du Trias.

Un échantillon (Co-C) a été daté par la méthode ESR. Celui-ci a été prélevé dans un plancher stalagmitique surmontant un témoin de remplissage ancien marqué n°10 sur la figure I-14.

Le calcul de la dose équivalente de Co-C est fait pour le signal Large Raie, LR. Les spectres obtenus sont pratiquement dépourvus de manganèse ce qui témoigne d'une assez grande pureté de l'échantillon. Une dose équivalente de 212 ± 15 Krad est obtenue.

La dose interne est déterminée en laboratoire par spectrométrie gamma non destructive utilisant un détecteur de germanium à haute pureté (GeHP). Une valeur égale à 73.7 mrad/an est obtenue pour cette dose.

La dose externe est estimée à 30 mrad/an.

Un âge de 2050.000 ± 270.000 ans est obtenu pour l'échantillon Co-C. Le tableau I-7 récapitule toutes ces données.

Cette expérience donne une bonne idée quant aux possibilités de la méthode ESR. En effet, le signal n'est pas encore saturé à deux millions d'années et il est possible de dater des échantillons plus anciens.

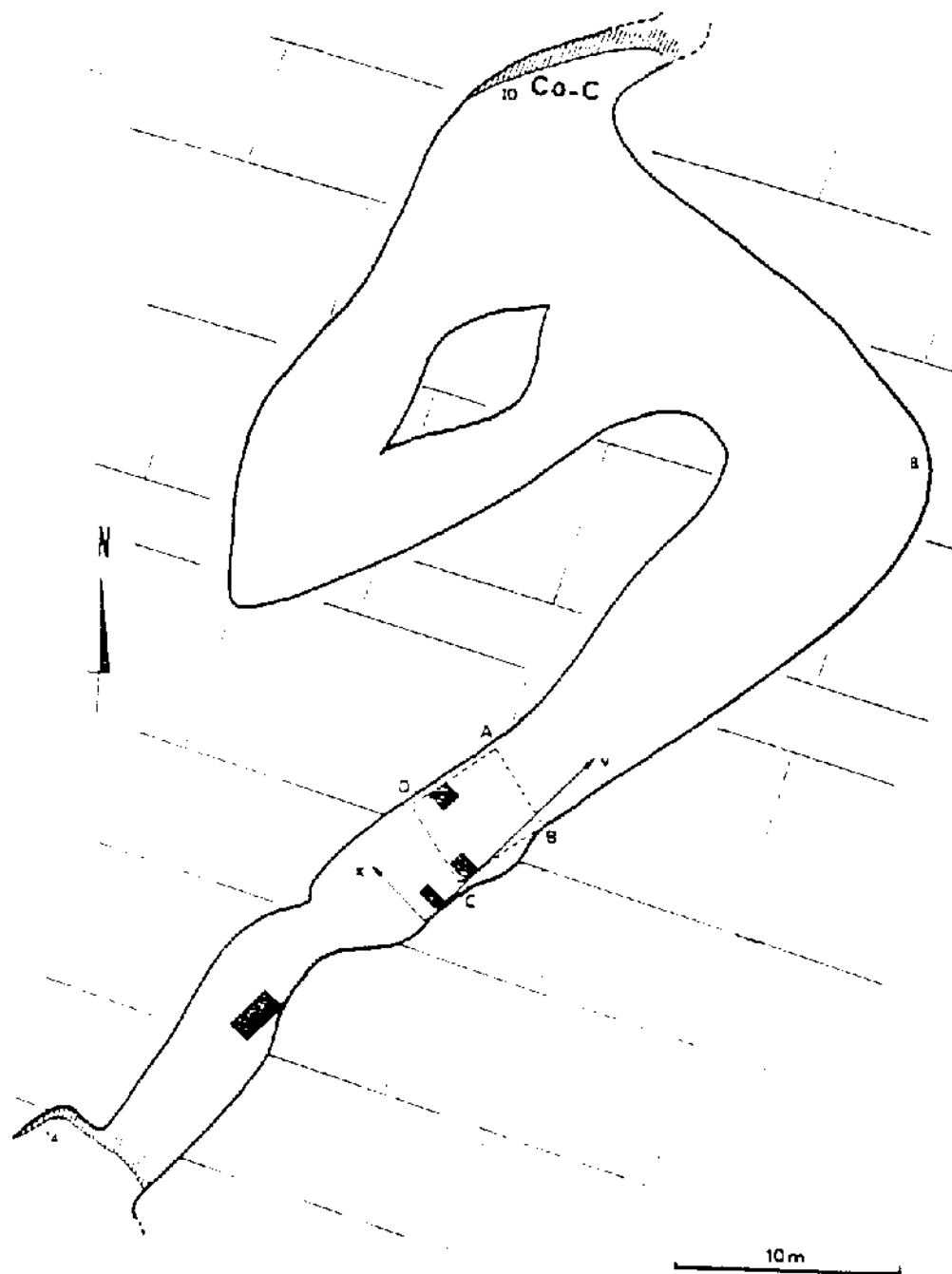


Figure I-14 Plan schematique de la grotte de Colombo.
 ABCD représente la tranchee preexistante.
 Les rectangles noirs indiquent les zones fouillees
 (1982).
 Les n^{os} 8, 10 et 14 sont des temoins de remplissage
 ancien.

Centres pièces	Durées de vie moyenne à 15°C (ans)
h1	10^8-10^9
h2	10
h3	10^5-10^6
LR	10^6-10^7

TABLEAU I-6: Durée de vie moyenne à 15°C, des structures utilisées pour la datation dans la calcite.

Echantillon Co-C	
Dose équivalente (Krad)	212 ± 15

Dose (mrad/an)	
Interne	73.7
Externe	30.0
Totale	103.7 ± 10

AGE (10^3 ans)	2.050 ± 270

TABLEAU I-7: Dose équivalente, dose annuelle et âge de l'échantillon stalagmitique Co-C de la grotte de Colombo.

5- Application: Quartz du Massif Central. France.

5-1 Expérimentation.

5-1-1 Présentation et situation.

Deux échantillons provenant de Beaumont et Neschers sont étudiés. Ces deux localités sont situées près de Clermont-Ferrand dans le Massif Central. Ce sont des sédiments sableux cuits par des laves

- Beaumont (Cler 13): C'est un sable blanc non compacté, contenant quelques nodules d'argile cuite, porcelanite (Miallier, 1982). La présence de celle-ci indique que la cuisson s'est faite à haute température. Ce sédiment a pour origine une arène granitique (Miallier, communication personnelle).

- Neschers (TL 44): C'est un matériau de couleur rouge, friable, très sableux et contenant quelques fragments de calcaire en plaquettes (Sanzelle et al, 1983). L'origine de ce sédiment n'est pas très bien déterminée, mais le matériel initial, riche en matière organique, permettrait de le classer comme un horizon de surface (Raynal et al, 1985).

5-1-2 Préparation.

Elle a été réalisée, pour chaque échantillon, conformément à la méthode décrite dans le paragraphe I-3. La fraction granulométrique utilisée est comprise entre 50 et 200 μ m. L'attaque à l'HF (40%) a été effectuée pendant 60 minutes. Après un traitement aux ultra-sons, la hauteur du signal ESR de l'échantillon de Neschers décroît de 30% par rapport à sa hauteur obtenue avant ce traitement. Pour les échantillons naturels et irradiés par rayonnement gamma, la proportion de la diminution du signal est identique, ce qui ne modifie donc pas la valeur des doses équivalentes obtenues. Pour l'échantillon de Beaumont, le traitement aux ultra-sons n'a pas diminué la hauteur des signaux.

5-1-3 Conditions d'expérience.

Le tableau I-8 récapitule les conditions expérimentales utilisées pour la mesure de ces échantillons.

5-2 Résultats et discussions.

5-2-1 Spectres obtenus.

La figure I-15 montre les spectres des centres aluminium et titane. Ils ne sont pas superposés ce qui nous a permis de faire une étude comparative.

Le centre Al a deux principales composantes à $g = 2.01$ et $g = 2.06$, et il est caractérisé par une structure hyperfine. La hauteur du signal mesurée est comprise entre le sommet de la première ligne hyperfine ($g = 2.018$) et la base de la ligne ayant la plus petite valeur de g ($g = 1.992$), ces deux valeurs sont indiquées par une flèche sur la figure I-15. Les lignes hyperfines dont le g est égal à 2.0019 et 2.0031 (figure I-16) sont vraisemblablement perturbées par un signal de fer superposé. La ligne dont le g vaut 1.996 est chevauchée par le signal du centre Ge. Ces lignes ne sont par conséquent pas utilisées.

Le centre Ti a trois pics principaux à $g = 1.91$, $g = 1.93$ et $g = 1.98$. Il est caractérisé par une structure superhyperfine de type alcali. La hauteur du signal est mesurée à partir du sommet jusqu'à la base de cette structure dont le g est égal à 1.93.

La résolution de ces structures devient beaucoup plus nette lorsqu'on abaisse la température de la cavité, comme en témoignent les figures I-16 et I-17. Cela n'a cependant pas d'influence sur le calcul des doses équivalentes qui peut être fait aussi bien à 93K qu'à 77K (Yokoyama et al, 1986a).

Le signal du centre Ge peut être observé à température ambiante. Nous l'avons mesuré à 163K (figure I-18), température à laquelle la structure hyperfine est nette.

centres étudiés	valeur de g	puissance micro-onde (mW)	modulation (G)	échelle d'enregistrement (G)	température de la cavité (K)
Al	2.01	5	5	400	77 ou 93
Ti	1.93	20	5	400	77 ou 93
Ge	1.996	0.5	1.25	80	163

Tableau I 8 Conditions d'expérience utilisées pour les échantillons TL44 et Cler13

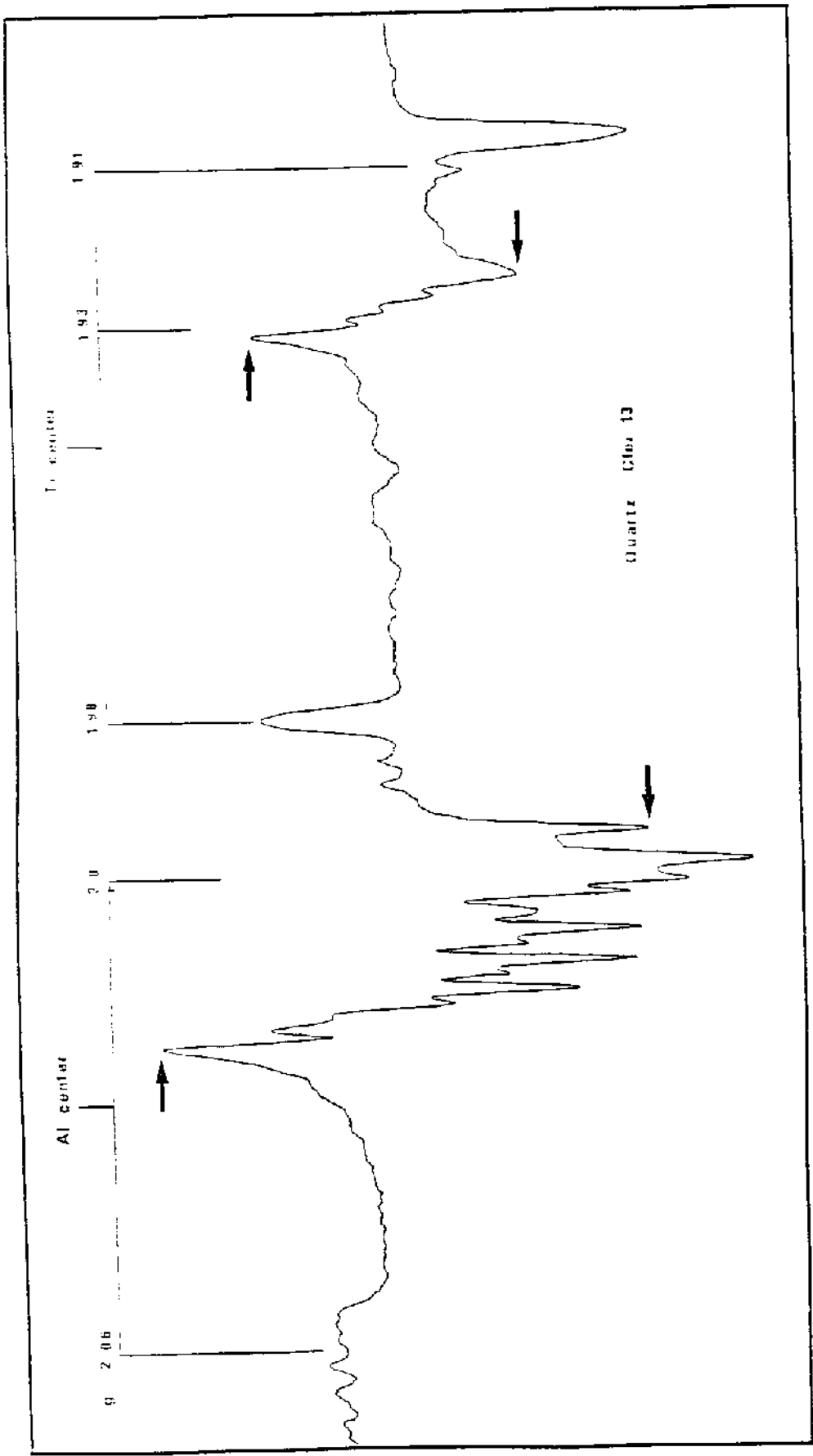


Figure 1-15: Spectres ESR de centres Al et Ti de quartz (Cler13) enregistrés en continu à une température de cavité de 93K. Les flèches indiquent les pics utilisés pour la mesure des hauteurs de signaux.

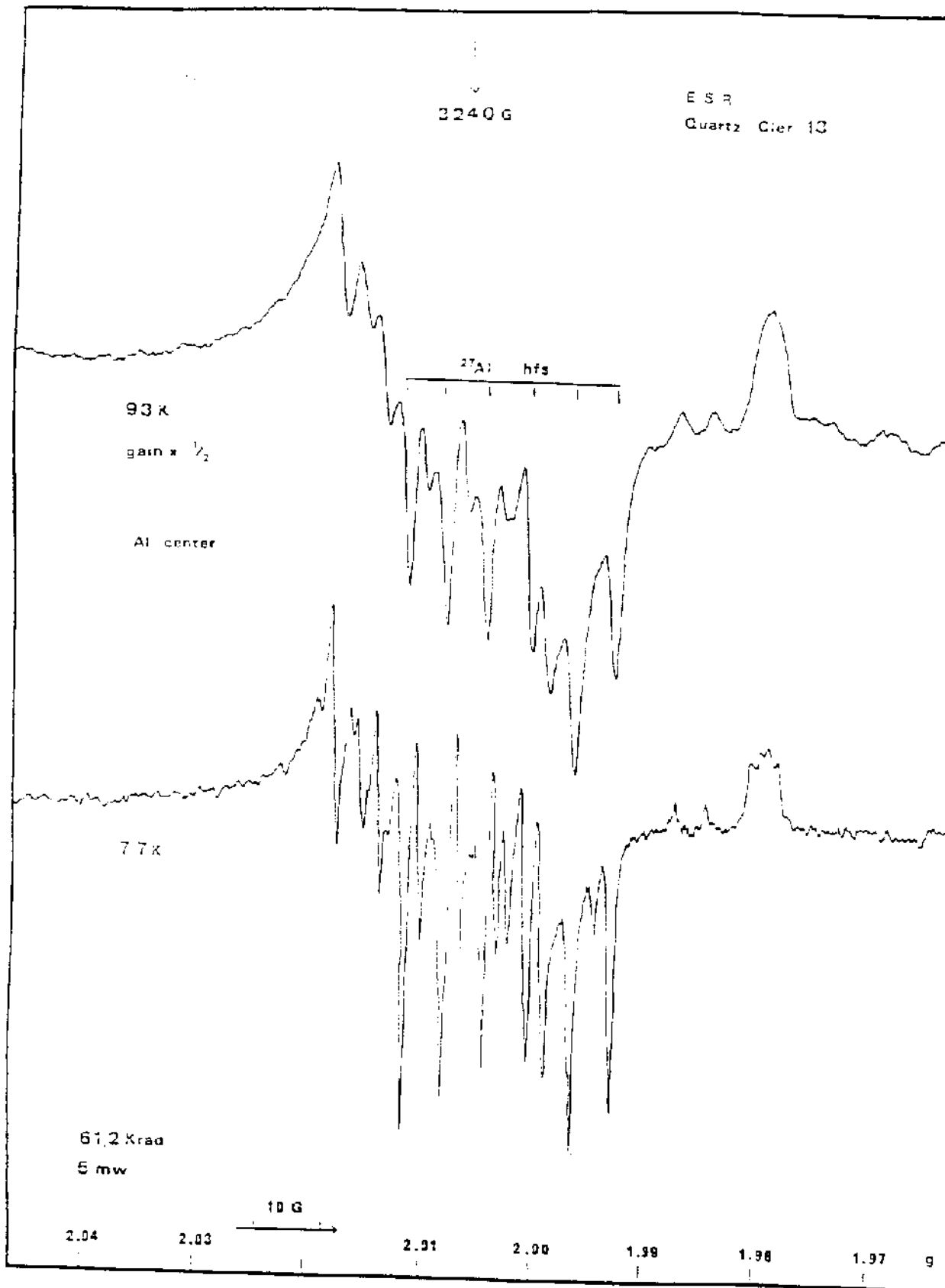


Figure I-16: Spectres ESR de centres Al enregistrés à 77K et 93K (Cler13). Chaque centre est composé de six Al-27 formant une structure hyperfine (hfs), chaque Al étant quadrupole. A une température de 77K (spectre du bas), les pics s'affinent et la résolution du spectre est nettement améliorée.

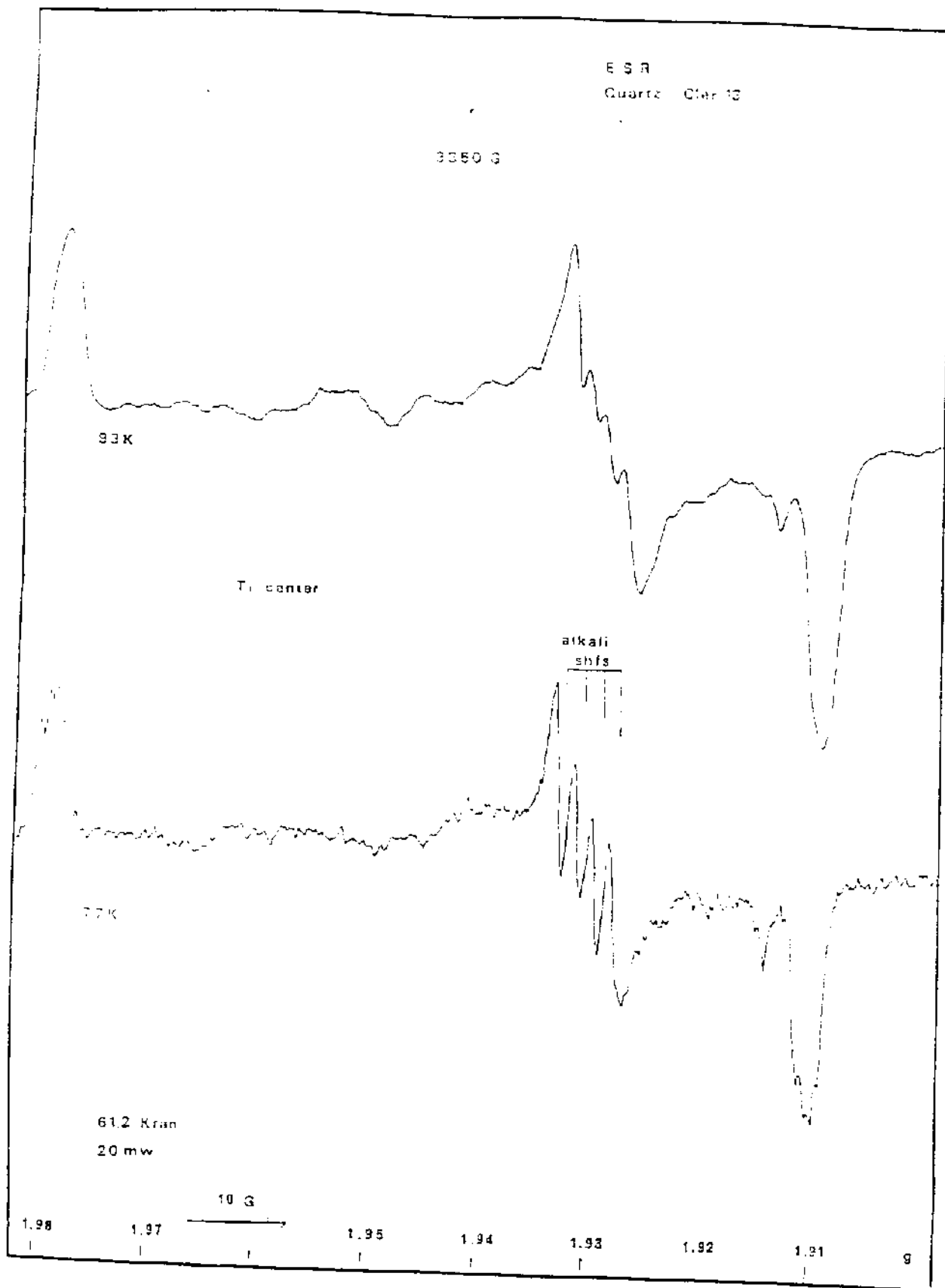


Figure I-17: Spectres ESR de centres Ti enregistrés à 77K et 93K (Clef 13). Mêmes constatations que pour la figure I-16.
Les centres Ti sont composés d'une structure superhyperfine (shfs) de type alcali.

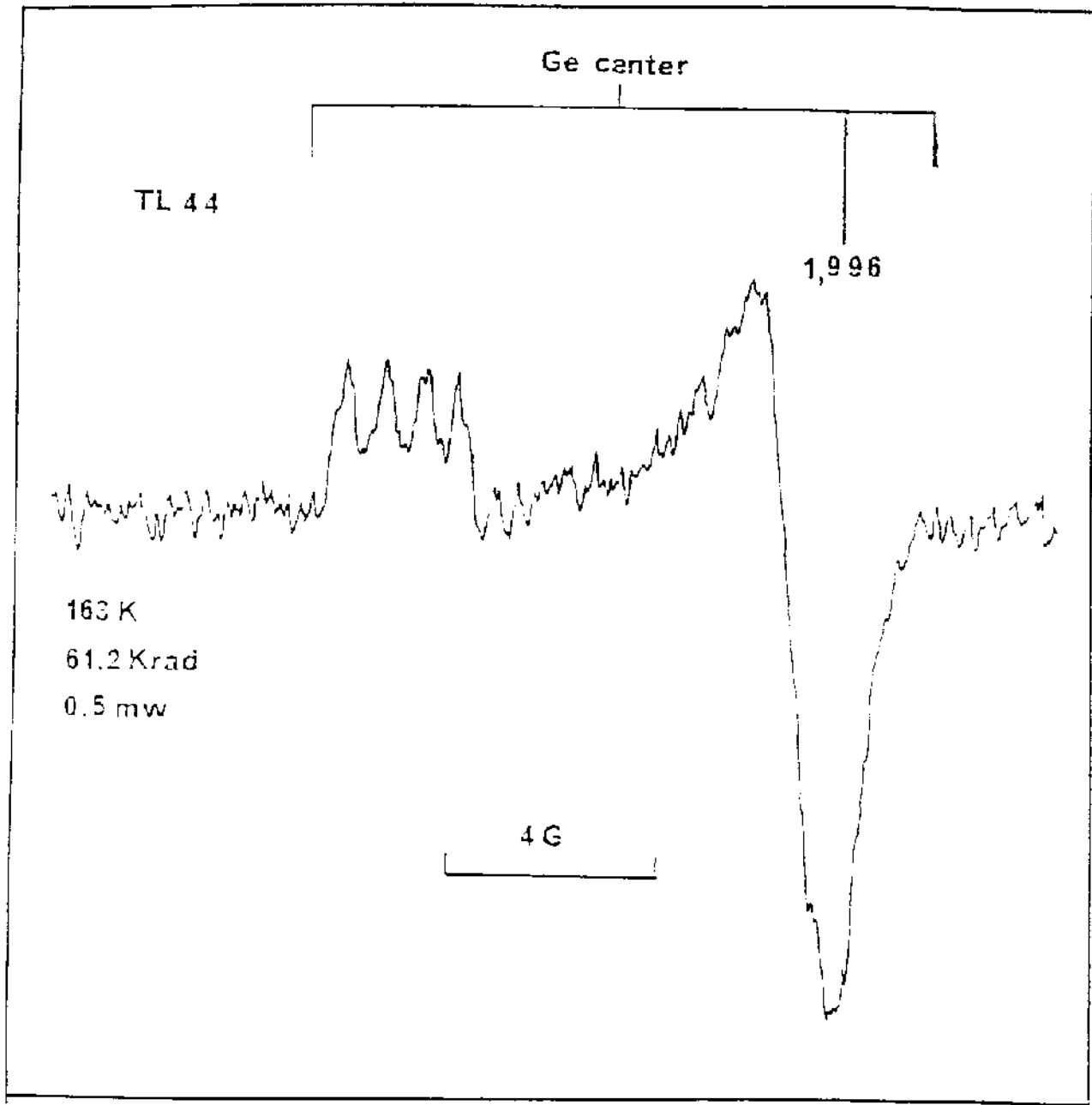


Figure I-18 Spectre ESR de centre GE enregistré à 163K (TL44)

5-2-2 Dose équivalente.

Les doses équivalentes sont déterminées par la méthode de l'addition (voir paragraphe I-2.2.1). La comparaison entre les centres Al et Ti, pour l'échantillon Cler 13 (figure I-19), montre que les points calculés à partir de l'aluminium sont pratiquement linéaires alors que la courbe établie à partir du titane a une tendance exponentielle, ce qui indique une saturation.

Ces caractères sont également observés pour l'échantillon de Neschers TL44 (figure I-20), bien que le centre Al commence à saturer à des doses plus faibles. Pour les courbes qui ont tendance à saturer (celles obtenues à partir du centre Ti), les doses équivalentes sont déterminées par une équation exponentielle de premier ordre (voir paragraphe I-2.2.1).

Les doses équivalentes obtenues pour les deux centres, sont en bon accord pour chaque échantillon (tableau ci-dessous).

Tableau I-9. Comparaison des doses équivalentes pour les centres AL et Ti.

centres	doses équivalentes (Krad)	
	Cler 13	TL 44
Al	32 ± 1	10 ± 1
Ti	34 ± 3	9 ± 2

5-2-3 Stabilité thermique.

Comme le montrent les figures I-21 (Cler 13) et I-22 (TL 44), les centres Al, Ti et Ge ont une stabilité thermique similaire. Ce fait est compatible avec les doses équivalentes obtenues par Al et Ti pour ces échantillons. L'absence de signal du centre Ge dans les échantillons naturels, donne cependant matière à réflexion.

Neschers TL 44

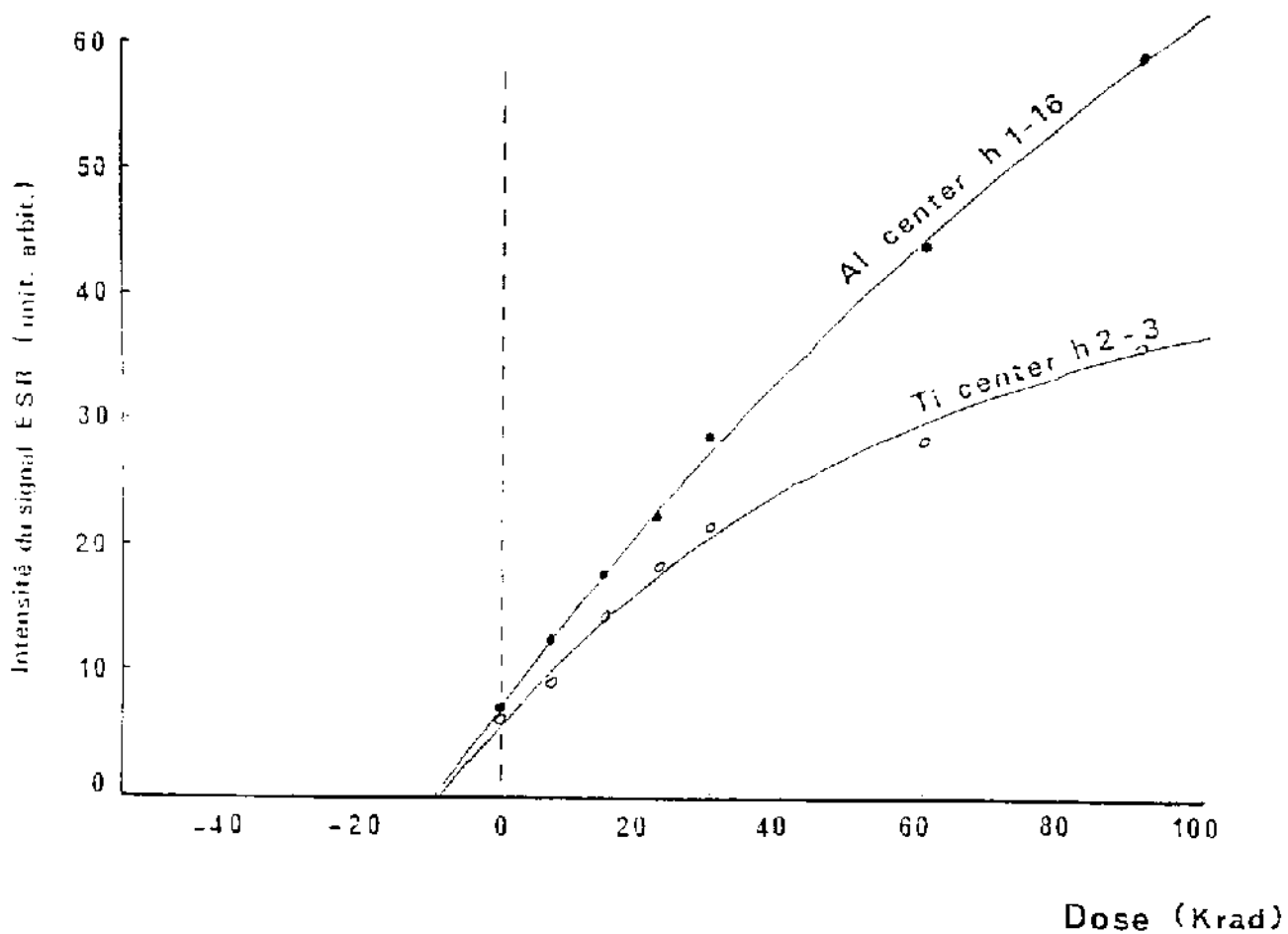


Figure I-20 Courbes de paléodose des centres Al et Ti des quartz de TL44

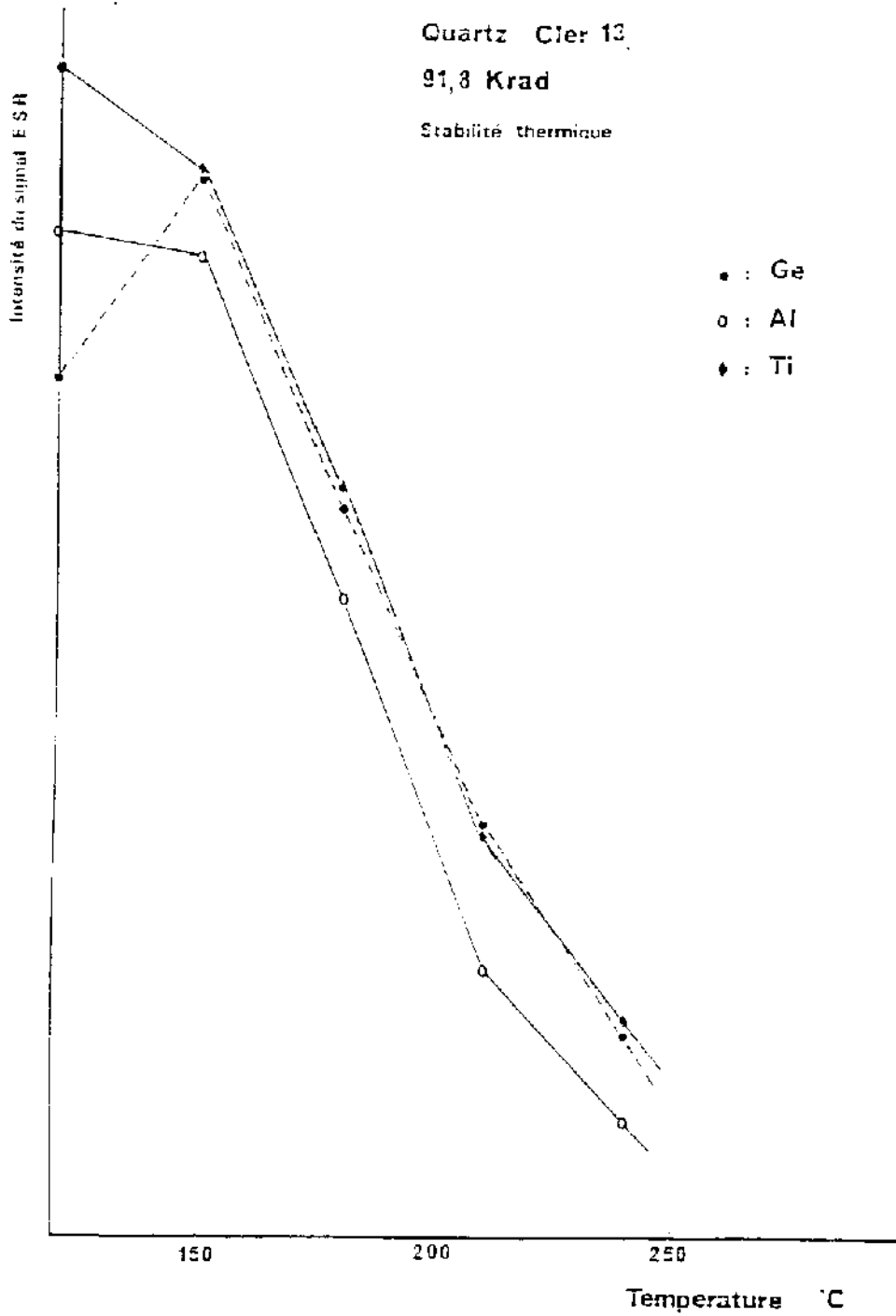


Figure I-21: Isochrones de stabilité thermique, en fonction de la température, pour les centres Al, Ti et Ge (Cler13).

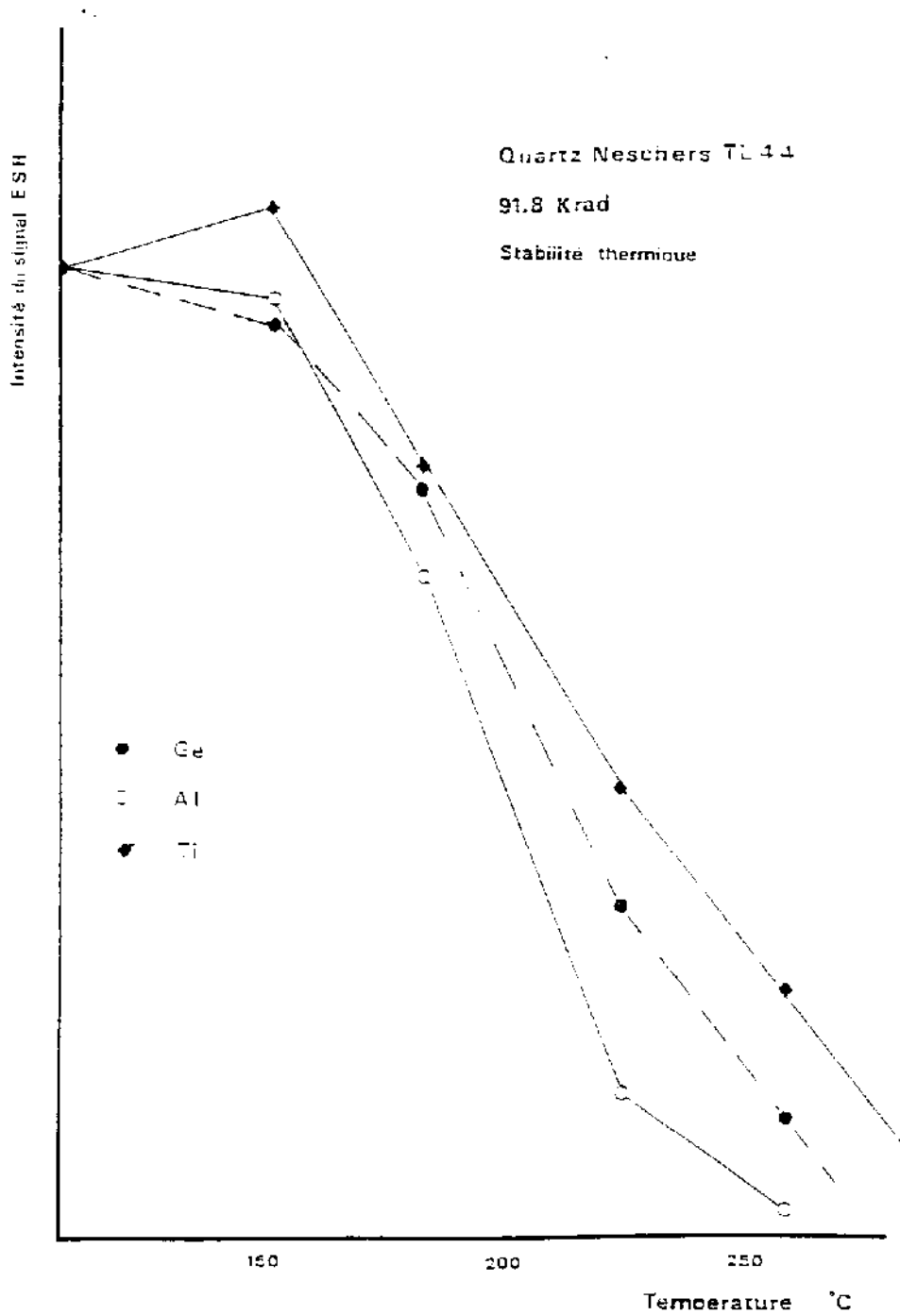


Figure I-22. Isochrones de stabilité thermique, en fonction de la température, pour les centres Al, Ti et Ge (TL44).

5-2-4 Le centre Ge.

Le centre Ge n'apparaît pas dans ces deux échantillons naturels étudiés. De la même façon, il n'est pas visible dans des échantillons paléolithiques blanchis par le soleil, dont nous reparlerons plus tard. Le signal devient détectable seulement après irradiation par rayonnement gamma. Mac Morris (1971) mentionnait également l'absence du signal du centre Ge dans les échantillons naturels et expliquait ce phénomène de deux façons:

- par le blanchiment naturel optique.
- par le changement naturel des états de l'ion alcali associé au centre Ge rendant ainsi plus étroite l'union spin-réseau motivée par un phénomène de relaxation analogue à celui de l'aluminium dans les feldspaths. En ce qui concerne nos échantillons, la première hypothèse semble exclue.

D'un autre côté, Shimokawa et al (1985) ont utilisé le signal du centre Ge pour dater par ESR des quartz extraits de roches volcaniques.

Tout ceci nous amène à penser que l'absence (ou la présence) de ce signal dépend de la nature de la roche étudiée et ne peut donc pas être généralisée.

5-2-5 Dose annuelle et âge.

Les activités de U-238, Ra-226, Rn-222, Ra-228 et K-40 de ces sédiments ont été mesurées par spectrométrie gamma utilisant un détecteur de germanium à haute pureté, GeHP (figure I-23).

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.

Pour la dose alpha interne, de même que pour la dose cosmique, les chiffres utilisés par G. Guérin (1983) ont été repris.

Détecteur utilisé : Ge(Hp)
 Échantillon : Sédiment TL 44
 Poids de l'échantillon : 320.64 g
 Temps de comptage : 157 282 sec

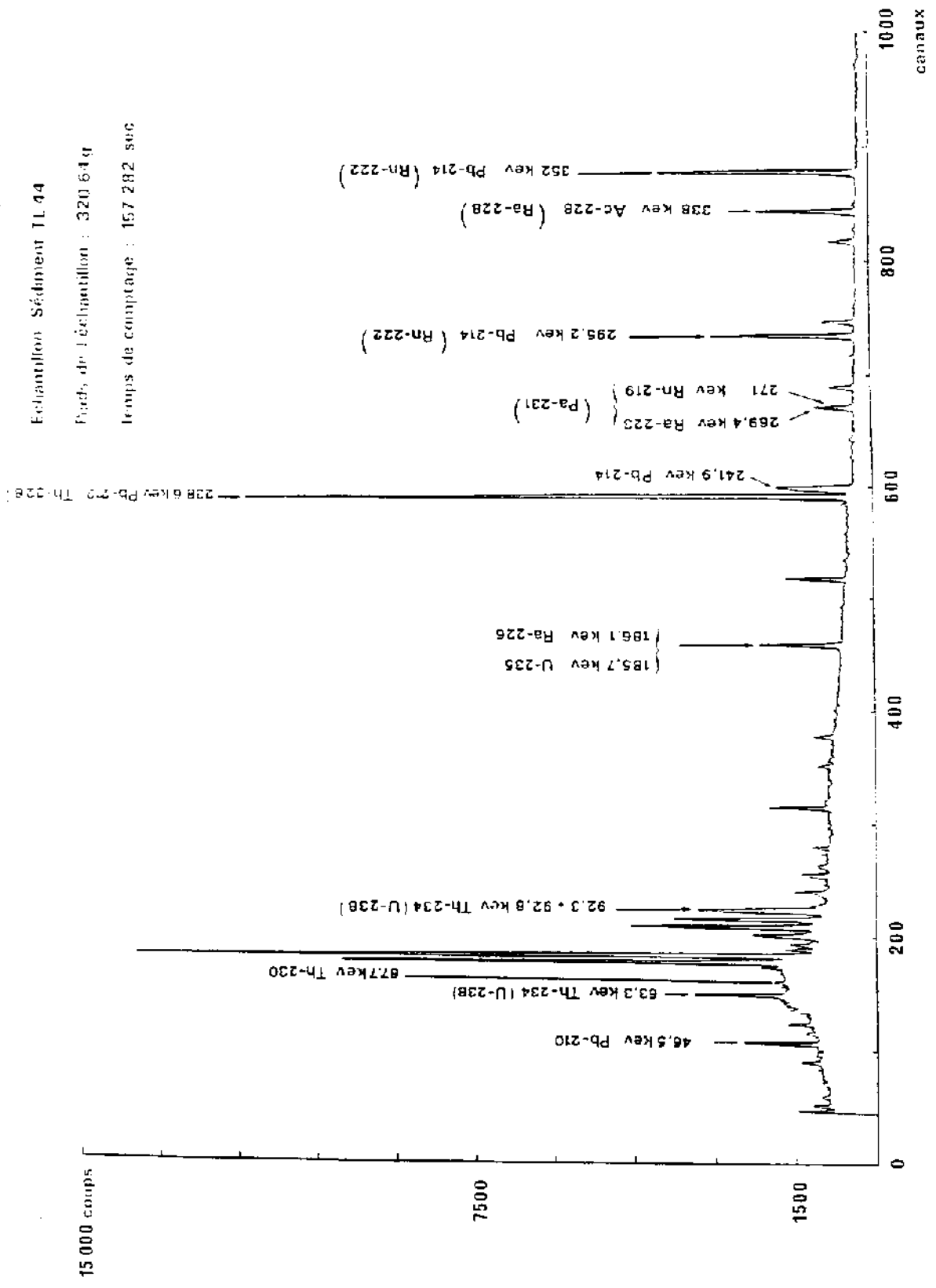


Figure I-23 Spectre gamma de 40 à 400 Kev d'un échantillon provenant de sédiments de Neschers (TL44)

Pour le calcul de la dose beta, nous avons tenu compte du départ du radon (10%).

Les doses annuelles estimées sont de 486 et 480 mrad/an pour Cler13 et TL44 respectivement.

De ces calculs sont déduits des âges de 67 ± 7 et $20 \pm 3 \cdot 10^3$ ans pour Beaumont et Neschers respectivement (tableau I-10).

	Beaumont Cler13	Neschers TL44
Activité		
U-238 (dpm/g)	1.56 ± 0.03	3.05 ± 0.07
Ra-226 (dpm/g)	1.16 ± 0.06	2.42 ± 0.14
Rn-222 (dpm/g)	1.23 ± 0.01	2.66 ± 0.03
Ra-228 (dpm/g)	1.11 ± 0.03	3.43 ± 0.06
K-40 (%)	4.29 ± 0.02	3.10 ± 0.03
Dose (mrad/an)		
α	11	11
β	331	291
γ	129	163
cosmique	15	15
TOTALE	486 ± 49	480 ± 49
	Al	
	32.5 ± 1.0	9.6 ± 0.9
Dose équivalente (Krad)		
	Ti	
	34.3 ± 3.4	9.1 ± 1.8
Âge (10³ ans)		
	67 ± 7	20 ± 3

TABLEAU I-10. Activité, doses annuelles, doses équivalentes et âges des échantillons de Beaumont (Cler13) et Neschers (TL44).

DEUXIEME PARTIE

DATATION DE SITES ACHEULEENS ET MOUSTERIENS PAR LA METHODE ESR.

Dans le cadre de ce travail, trois thèmes principaux sont envisagés :

- Une première partie regroupe des sites dont les datations effectuées s'efforcent de contribuer à la connaissance de l'homme. En effet, la méthode ESR s'appuie sur la stratigraphie des sites étudiés et s'attache à réduire les incertitudes qui subsistent dans ce domaine. Autrement dit, il s'agit de dater les formations (principalement les planchers stalagmitiques) qui encadrent les couches dans lesquelles les restes humains ont été trouvés.

- Le deuxième thème est consacré à la datation de plages marines que nous essayons de corréler à la stratigraphie de quelques sites préhistoriques de la région de Nice. Celle-ci est un endroit privilégié pour la réalisation de cette étude dans la mesure où le nombre de sites préhistoriques est important et où les terrasses marines sont abondantes.

- Enfin, une comparaison des résultats obtenus, entre la méthode ESR et celle de l'U-Th, est réalisée sur deux sites: Orqnac et Aldène.

La figure A indique la position géographique de tous les sites concernés par cette étude.

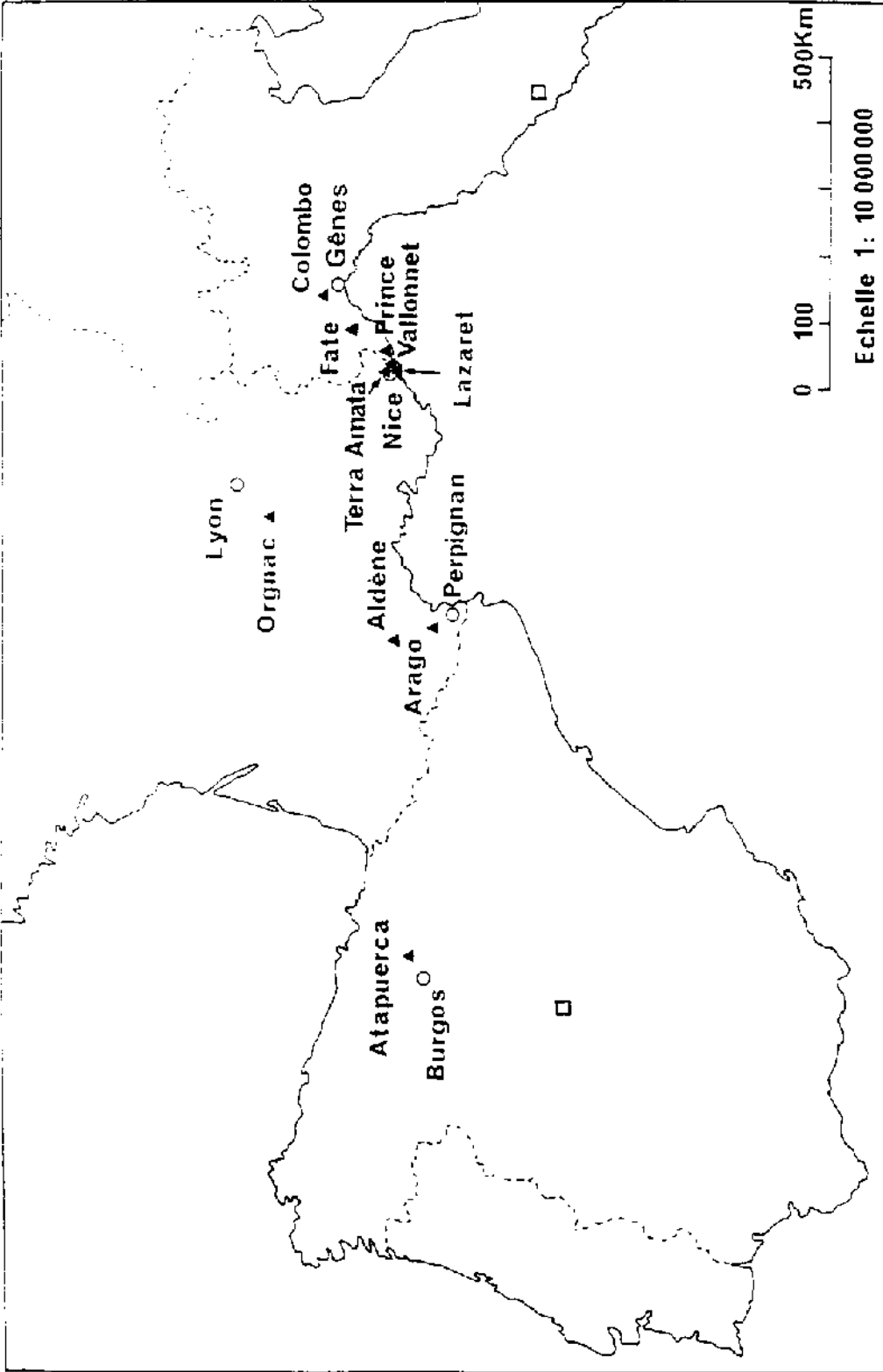


Figure A Position géographique de tous les sites étudiés

A/ DATATION DE CALCITE EN RAPPORT AVEC L'EVOLUTION DE L'HOMME.

L'Europe occidentale méridionale regorge de sites préhistoriques célèbres. Nous nous attacherons à l'étude de quatre sites parmi les plus importants puisqu'il s'agit de:

- la Caune de l'Arago.
- la grotte d'Atapuerca.
- la grotte du Prince.
- la grotte de Fete.

CHAPITRE II. LA CAUNE DE L'ARAGO

1- Introduction

La Caune de l'Arago est située sur la commune de Tautavel, à 30 Km au nord-ouest de Perpignan (Pyrennes orientales), (figure II-1).

C'est un site du Paléolithique inférieur dans lequel une soixantaine d'ossements humains ont été découverts parmi lesquels le crâne de l'homme de Tautavel. Ce haut-lieu de la préhistoire en Europe a suscité un grand intérêt dans le domaine des datations.

En 1981, le colloque de Tautavel (Lumley de et Labevrie, 1981) réunit vingt deux laboratoires de sept pays au cours duquel s'établit un vaste programme de datations. C'est ainsi que plus de 150 échantillons sont traités et près de 550 analyses effectuées dans les différents laboratoires par toutes les méthodes disponibles: déséquilibre des familles de l'uranium, résonance de spin électronique (ESR), Thermoluminescence (TL), Paléomagnétisme, traces de fission, acides aminés etc...

La stratigraphie est formée de deux grands complexes sédimentaires:

- Le complexe de base essentiellement constitué d'argiles et d'argiles sableuses.

- Le complexe sommital se distingue du précédent par ses caractéristiques sédimentologiques à savoir moins d'argiles et plus de sables, présence de cailloux. Cinq ensembles ont été individualisés (figure II-2).

Afin de connaître d'une façon plus complète l'épaisseur totale du remplissage et la stratigraphie des dépôts quaternaires, une série de huit carottages est effectuée en 1981 et 1983 (Lumley de et al, 1984). D'après la stratigraphie établie (Lumley de, 1979), l'ensemble IV se situe au-dessous du plancher stalagmitique supérieur. La base de celui-ci étant âgée de plus de 350.000 ans, il apparaît logique que l'ensemble IV soit plus ancien que 350.000 ans.

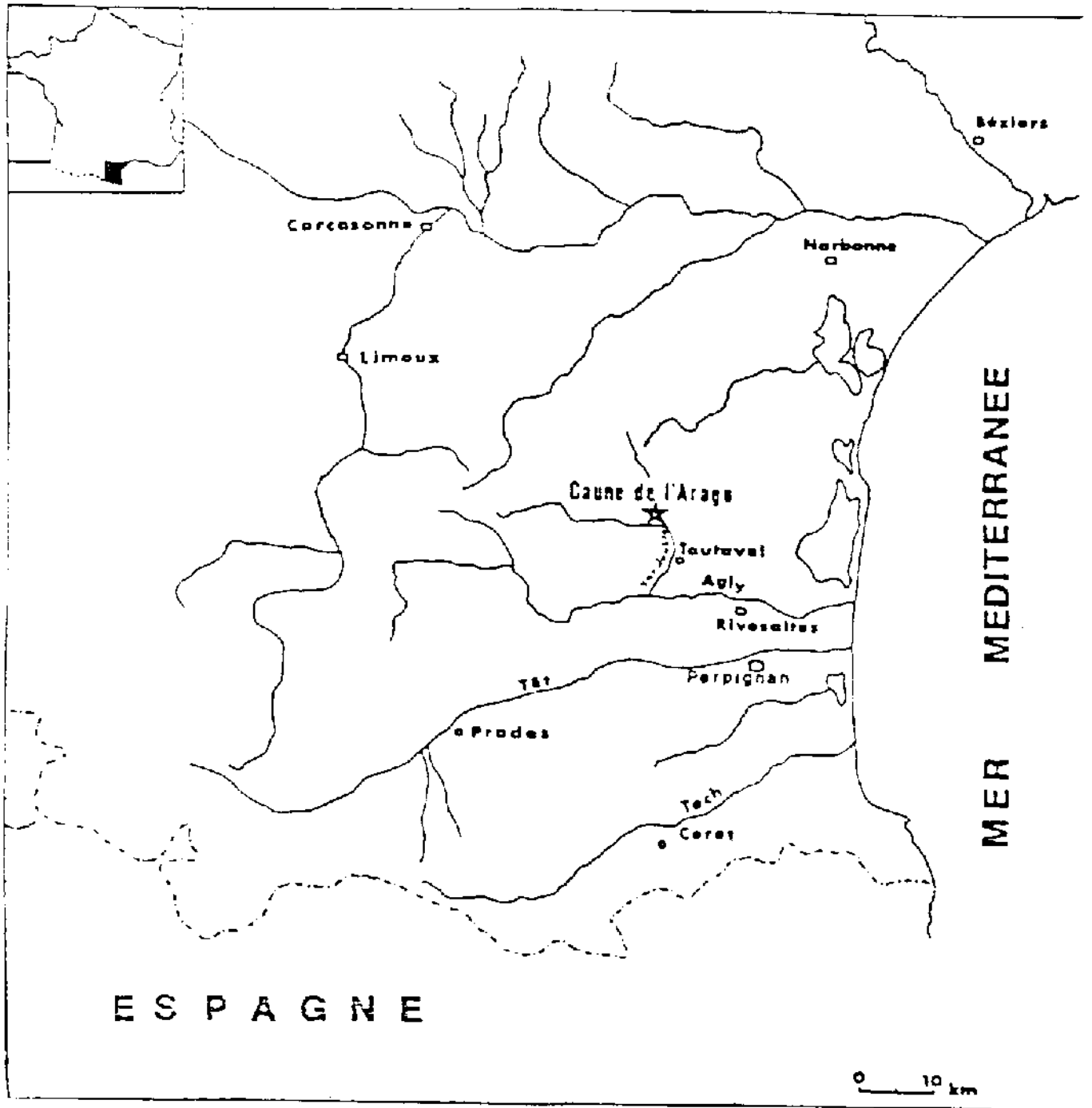


Figure II-1 Situation géographique de la Caune de l'Arago

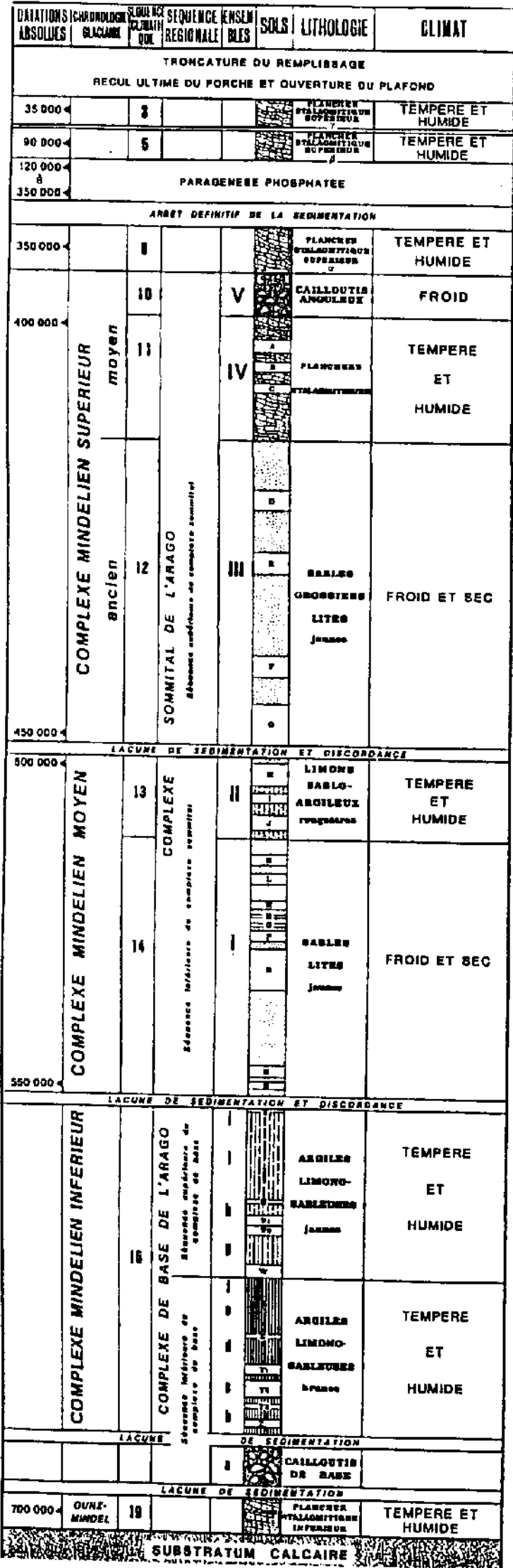


Figure II-2: Stratigraphie de la Caune de l'Arago (d'après H. de Lumley).

Or la datation, par la methode U-Th, de six echantillons stalactitiques preleves en divers endroits de l'ensemble IV (Shen, 1985), donne des ages beaucoup plus jeunes que ce que la stratigraphie laisse supposer.

Le rajeunissement de certains echantillons, par ajout recent d'uranium (Labevrie et Lalou, 1981; Yokoyama et al. 1983b), ou par le fait qu'ils sont constitues d'un melange de calcites jeunes et vieilles (Shen, 1983), est bien verifie mais cependant ne remet pas forcement en cause la stratigraphie deja etablie. Il n'en est pas de meme pour l'echantillon YC5 preleve au sommet de la coulée stalactitique contre la paroi nord (figure II-4). Cet echantillon, tres pur et bien cristallise, n'a pas ete altere et par consequent, la formation a laquelle il appartient est posterieure a l'ensemble IV. La figure II-3 indique l'ensemble de la stratigraphie de la grotte. La zone encadree correspond a la zone etudiee. Elle est detaillee au paragraphe suivant.

2- Localisation des echantillons

Suite a ces resultats et pour ameliorer la connaissance de la sequence sedimentaire, une tranchee ainsi qu'une serie de huit nouveaux carottages sont effectuees dans la zone de l'ensemble IV, au debut de l'annee 1985. Les echantillons etudies dans le cadre de ce travail proviennent de ces derniers prelevements. Il s'agit des echantillons 12C, 16 et 17A (figure II-4).

3- Datation des calcites

A l'exception de l'echantillon 16 qui est un prelevement unique au coeur de la stalactite, les echantillons etudies sont issus de carottes dont le diametre exterieur est de 60 mm. Ce sont des calcites claires et compactes.

3-1 Calcul de doses equivalentes

Les spectres ESR d'echantillons naturels de calcites paleolithiques montrent trois raies d'absorption: h1 ($g = 2.0057$), h2 ($g = 2.0021$) et h3 ($g = 2.0008$), auxquelles un signal plus large

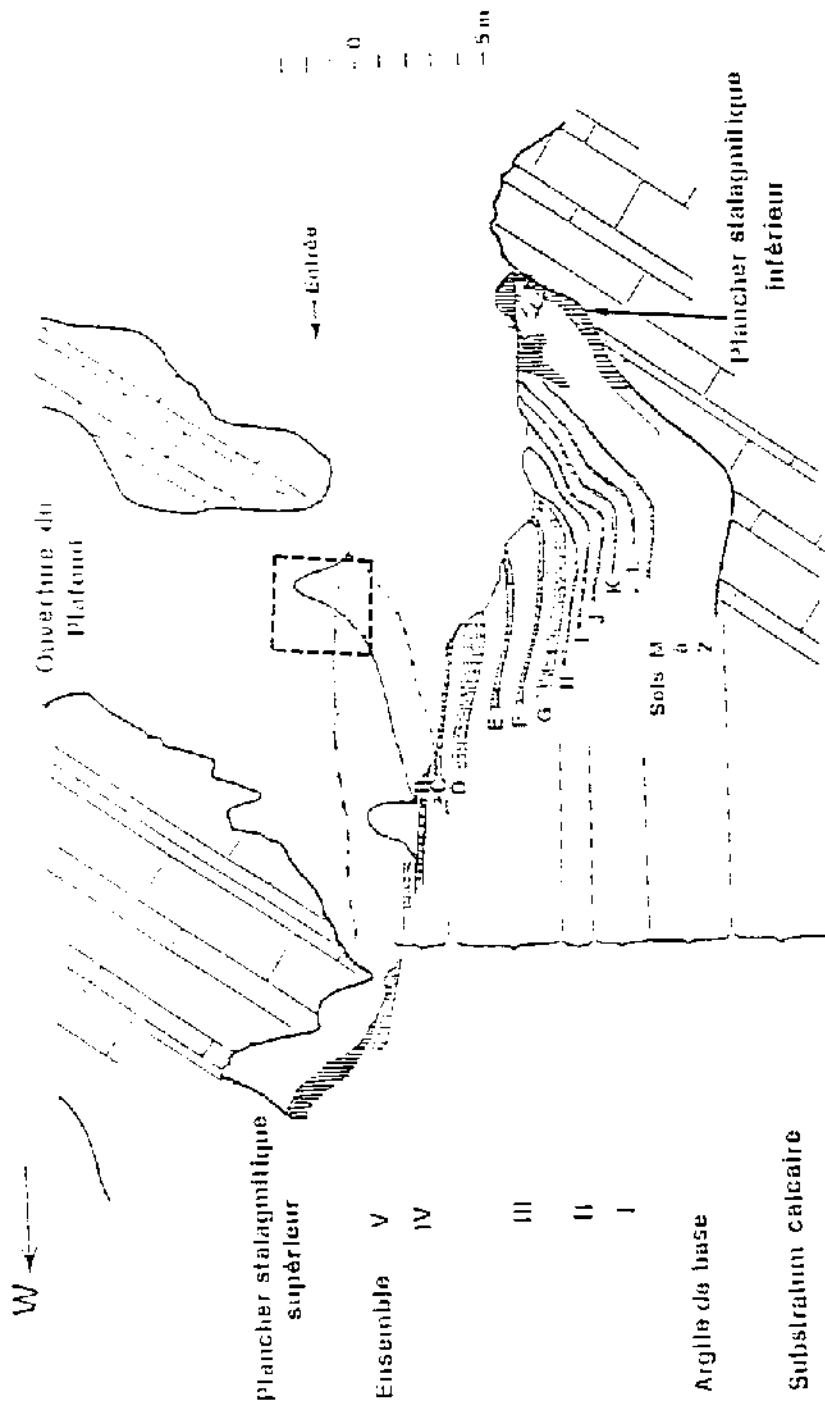


Figure II-3 Ensemble stratigraphique de la Caune de l'Arago La zone encadrée représente la région étudiée

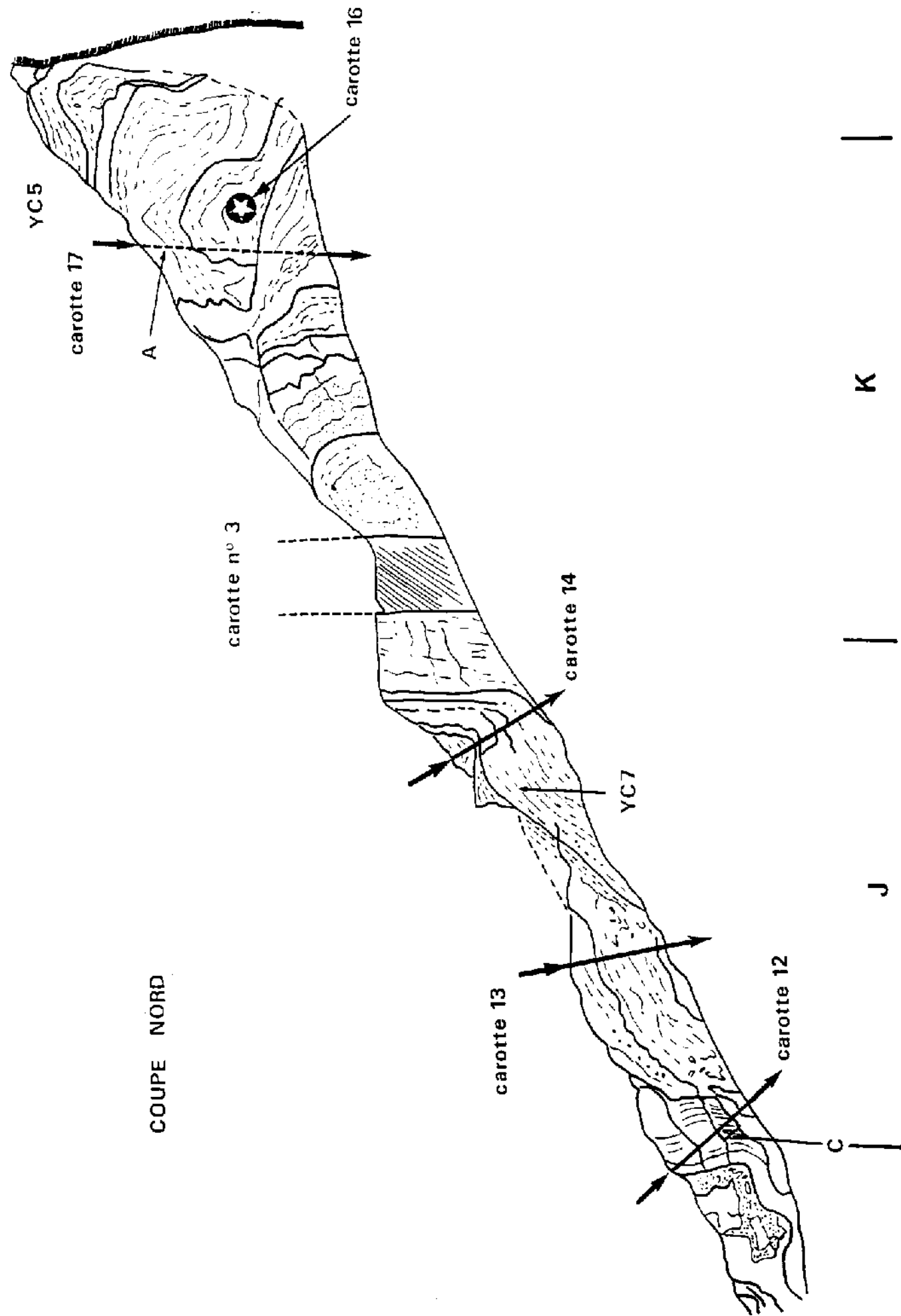


Figure II-4 Position des échantillons étudiés

se superpose. Ce signal est appelé Large Rate, LR ($q = 2.0040$). Ces différents types de pièges ont une durée de vie et un comportement différents. Ainsi, la durée de vie des électrons piégés dans h3, déterminée par des expériences de recuit thermique, est d'environ $2 \cdot 10^5$ ans, à 15°C (Yokoyama et al, 1983a). Par contre, la durée de vie de h1 est longue (environ 10^9 ans). Apers et al (1981), ont proposé l'utilisation de LR qui a également une durée de vie plus longue que h3. Quant au comportement des pièges, nous avons vu précédemment (paragraphe I-2-2-2), de quelle façon il variait en fonction de l'irradiation gamma et de la température de recuit. Rappelons que la hauteur de h1 peut être déterminée après un chauffage de l'échantillon de 16 heures à 180°C.

Les doses équivalentes ont été obtenues par la méthode de l'addition (figure II-5). Les droites, extrapolées, sont calculées par la méthode des moindres carrés. Les erreurs sont comprises entre 5 et 10 %.

Le tableau II-1 présente les résultats des doses équivalentes obtenues avec h1, h3 et LR pour les trois échantillons étudiés.

Pour des échantillons dont l'âge est inférieur à la durée de vie de h3, les valeurs de doses équivalentes obtenues par h1, h3 et LR devraient être sensiblement voisines. Pour des échantillons plus anciens, les valeurs de doses équivalentes obtenues par h1 et LR devraient être comparables. Ce fait est bien vérifié dans le cas de h1 et LR. Par contre, les doses équivalentes obtenues pour h3 sont deux fois plus faibles, ce qui signifierait que ces échantillons sont plus vieux que la vie moyenne de h3. Les doses équivalentes ont donc été calculées à partir de h1 et LR.

Pour les trois échantillons, un signal dû au broyage et qui n'apparaît que sous l'effet de l'irradiation gamma, se superpose à h3 et rend sa mesure plus délicate.

Les expériences de recuit faites sur Araço 17A confirment les disparitions de h2 et h3 et l'augmentation de h1, à 180°C.

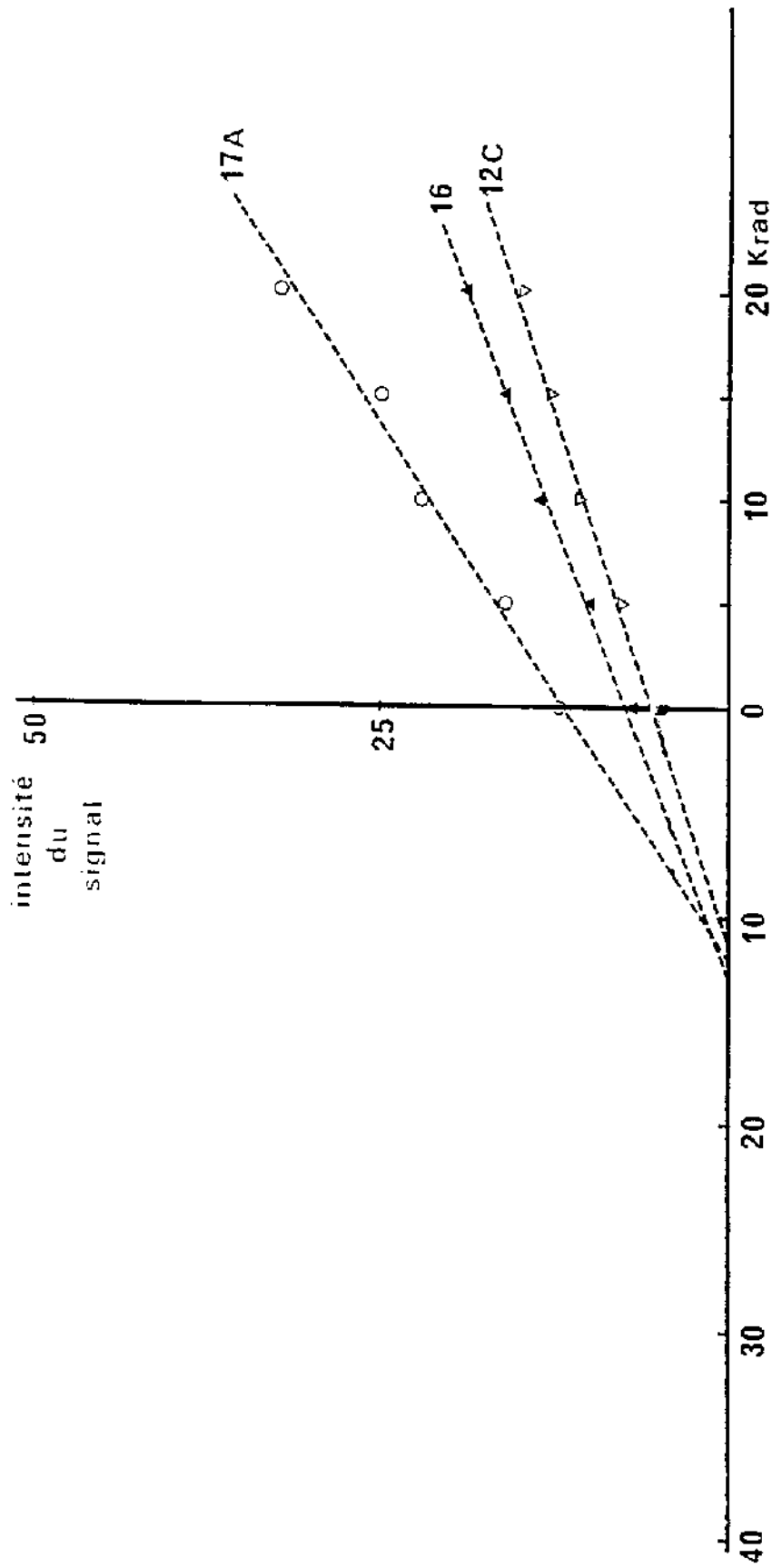


Figure II-5 Doses équivalentes des échantillons de l'araço

Raies	h3		L.R.		h1
	sans	120°C	sans	120°C	180°C
ARAGO					
12C	5.2±0.6	-	-	10.6±1.0	-
16	5.1±1.5	-	12.1±0.6	-	-
17A	6.1±0.4	5.2±0.7	12.1±0.7	12.4±0.6	11.9±1.2

TABLEAU II-1: Doses équivalentes, en Krad. obtenues en utilisant h1, h3, LR pour les trois échantillons étudiés de l'ensemble IV.

3-2 Doses annuelles et âges

Pour le calcul de la dose annuelle (Da) des échantillons, la dose interne est principalement due à U-238 et ses descendants (Th-232 et à ses descendants) ainsi qu'au K-40 (très peu important). Au moment de la formation des calcites, il n'y a que U-238, U-234 et U-235. Au fur et à mesure que le temps passe, les activités de Th-230 (et Pa-231) et leurs descendants respectifs augmentent.

Les activités de ces nucléides sont déterminées en laboratoire au moyen d'un détecteur de germanium haute pureté (GeHP).

- Quand on dispose d'une quantité importante (300g), on détermine l'activité de U-238 directement par spectrométrie gamma.

- Quand on ne dispose que d'une faible quantité d'échantillon (30g), on ne peut que mesurer l'activité du Rn-222. L'activité de U-238 est calculée à partir de celle du Rn-222, par l'équation:

$$U-238 = Rn-222 / (1 - e^{-\lambda t})$$

λ est la constante de désintégration et t, l'âge supposé de l'échantillon.

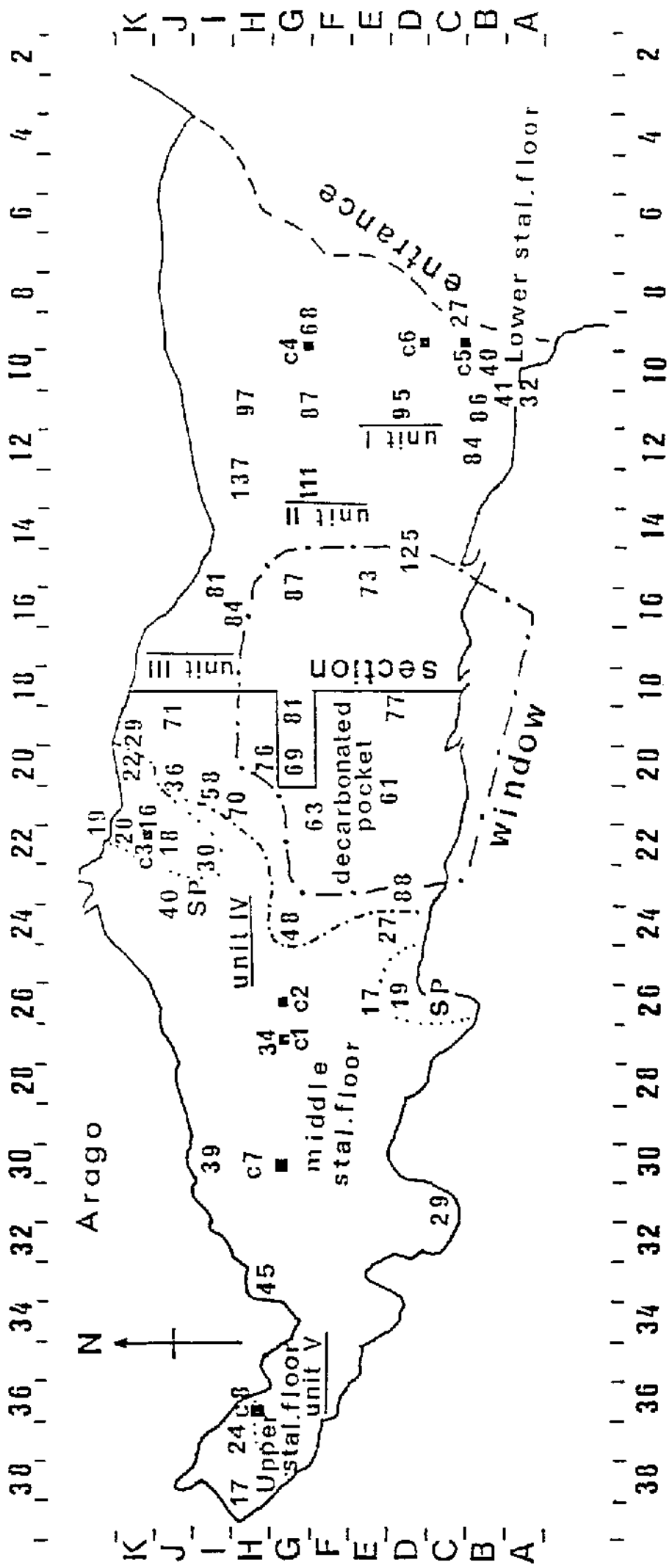
Pour rendre compte du déséquilibre des familles de l'uranium dans le temps, nous calculons le Th-230 moyen dans le passé (que nous considérons en équilibre avec Ra-226 et Rn-222) à partir de l'activité de U-238, par l'équation:

$$Th-230 \text{ moyen} = 1 - 1/\lambda t * (1 - e^{-\lambda t}) * U-238$$

Les doses externes ont été évaluées in-situ en plusieurs endroits de la grotte par la spectrométrie gamma (figure II-6).

Le tableau II-2 indique le détail des doses annuelles calculées pour chaque échantillon.

Les âges obtenus sont donnés dans le tableau II-3.



Gamma dose rate (mrad/y)

Figure II-6 Mesures in situ de doses externes (Arago)

	12C	16	17A
activité(dpm/g)			
U-238	(0.147) [*]	0.374 ^{**}	0.374
Rn-222	0.119	0.280 ^{**}	0.280
dose(mrad/an)			
α	16.22	41.33	41.33
int. β	4.49	8.90	8.90
γ	2.71	6.09	6.09
ext. γ	18.35	14.10	14.10
cosmique	5.50	5.50	5.50
TOTALE	47.27	75.92	75.92

TABLEAU II-2: activités et doses annuelles des échantillons de l'Araço.

* calculée à partir de l'activité de Rn-222.

** utilisée la valeur de 17A

	Doses équivalentes (Krad)	Doses annuelles (mrad/an)	Âges (10 ³ ans)
<hr/>			
ARAGO			
12C	10.6 ± 1.0	47.3 ± 4.7	224 ± 31
16	12.1 ± 0.6	75.9 ± 7.6	159 ± 17
17A	11.9 ± 1.2	75.9 ± 7.6	157 ± 22

TABLEAU II-3: récapitulatif des résultats obtenus sur les échantillons stalagmitiques de l'Arago (ensemble IV).

4- Datation de sédiments éoliens.

Indépendamment du travail effectuée sur les calcites, une étude a été faite sur des quartz issus d'un sédiment éolien. Il s'agit du sédiment I-18 (n°43), prélevé entre les sols E et F, dans l'ensemble III (figure II-7).

C'est dans le sol G de cet ensemble que le crâne de l'homme de Tautavel a été découvert. L'ensemble III n'a pas de plancher stalagmitique. Les datations absolues ont par conséquent été effectuées sur des ossements dont les résultats sont assez dispersés (Bischoff et Rosenbauer, 1981; Ikeya et Miki, 1981; Lalou et Hoang, 1981; Yokoyama et Nguyen, 1981; Yokoyama et al, 1981b). Il est donc intéressant d'étudier un autre type de matériel et en l'occurrence des grains de quartz extraits de sédiments, ces derniers étant pratiquement toujours présents dans les sites préhistoriques.

La datation des grains de quartz est largement développée dans le domaine de la TL (Wintle et Huntley, 1982). Pour la méthode ESR, à l'exception d'une étude préliminaire réalisée sur des quartz provenant également de l'Arago (Quaegebeur et Yokoyama, 1981), aucune tentative de datation par ESR sur ce type de matériel n'a été réalisée à notre connaissance.

Les conditions de préparation des échantillons de quartz sont explicitées dans le paragraphe précédent (paragraphe I-3).

Le principe de cette méthode consiste dans le fait que les centres-pièges des quartz sont drainés par les rayons ultra-violet du soleil lors du déplacement des grains de quartz dans l'atmosphère. Les électrons sont de nouveau piègés à partir du moment où les sédiments se déposent dans la grotte.

4-1 Le choix d'un centre stable.

En premier lieu, nous avons étudié le centre E' qui est le plus connu dans le quartz. De plus, il s'observe à température ambiante. Mais très rapidement, le centre E' s'est avéré peu stable et inutilisable dans le cas de nos échantillons. Nous avons dès lors orienté nos travaux sur le centre d'aluminium qui s'observe de

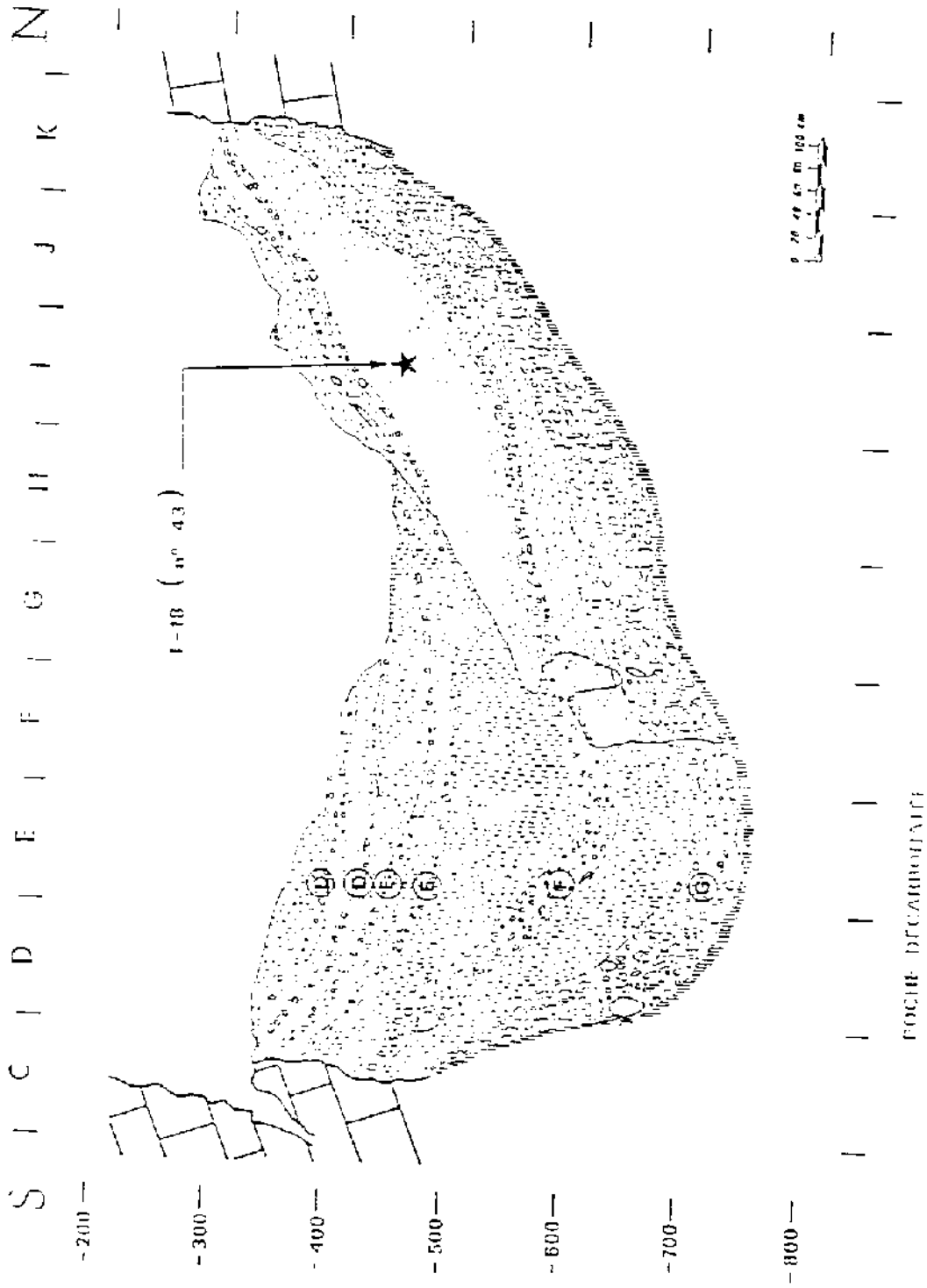


Figure II-7 Stratigraphie de l'ensemble III (Arago)

façon optimale à une température de 77K et dont la structure est détaillée dans le paragraphe I-5 (figure I-15). Ce centre, facilement identifiable, s'est avéré très stable comme en témoignent les expériences de stabilité thermique réalisées sur les quartz du Massif Central (figures I-21 et I-22).

Le centre du titane a également pu être observé dans le sédiment n°43.

Nous avons évoqué, dans le chapitre précédent, les problèmes posés par l'irradiation UV de cet échantillon (figure I-11). Le résultat de cette expérience (l'intensité du signal résiduel représentait 80% de l'intensité du signal initial après 160 minutes d'irradiation), confirme que les mécanismes de drainage des centres-pièges sont encore mal connus. Une exposition au soleil, de l'ordre de 20 à 30 jours, de l'échantillon placé dans l'eau qui favorise l'absorption des rayons UV, serait un procédé plus efficace de drainage. Nous avons donc envisagé le calcul de la paléodose d'une autre façon.

4-2 Paléodose, dose annuelle et âge.

Afin d'évaluer l'intensité du signal résiduel, des grains de quartz ont été extraits d'alluvions actuelles provenant de la plaine de Tautavel. Cet échantillon, prélevé dans le Verdoubeil, peut être considéré comme étant "d'âge zero". L'intensité du signal du centre Al de cet échantillon correspond à $60 \pm 5\%$ de l'intensité de l'échantillon naturel n°43 et à 32% de l'intensité de saturation.

La courbe de croissance du centre Al en fonction de l'irradiation γ indique une nette saturation à partir de 1 000 Krad (figure II-8). La dose équivalente DE est déterminée par l'équation (4) et dont le détail de calcul est expliqué au paragraphe I-2-2.

Les valeurs de 206 ± 14.0 et 203 ± 10.9 Krad sont obtenues pour DE, après une semaine et dix mois de stockage respectivement, ce qui indique qu'il n'y a pratiquement pas de fadings anormaux après irradiation γ . La dose résiduelle DoE est estimée par le même

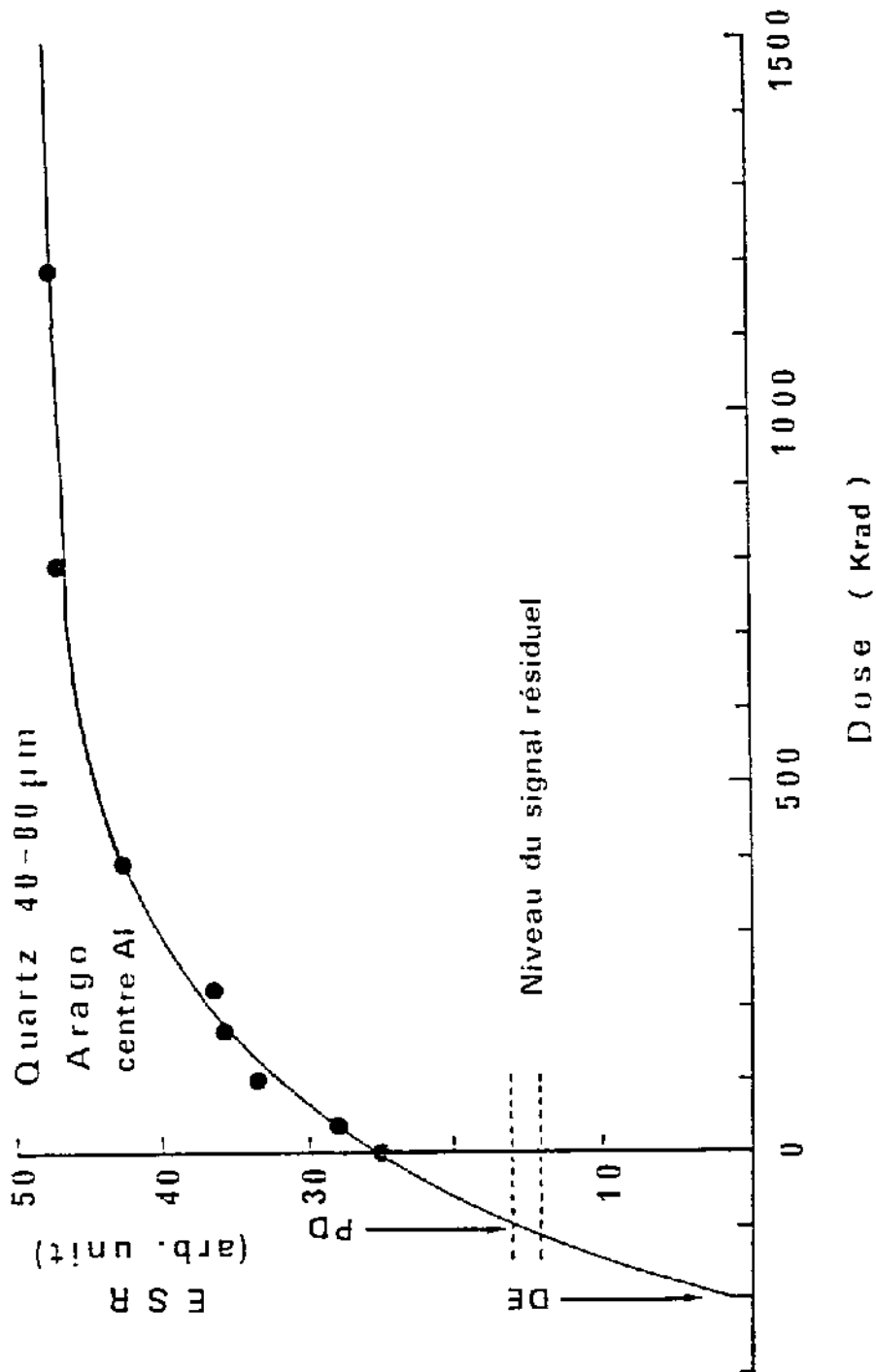


Figure II-2 Dose équivalente d'un centre Al de quartz (Arago)

type d'équation (4) à partir de l'intensité du signal "d'âge zéro". On obtient 102 Krad ($\pm 10\%$).

La paléodose PD est obtenue par la soustraction de la dose résiduelle DoE à la dose équivalente DE.

$$PD = DE - DoE$$

On obtient une paléodose de 101 ± 14.9 Krad.

Les activités de U, Ra, Rn, Th et K du sédiment n°43 sont déterminées par spectrométrie gamma. Les doses gamma et cosmiques ont été mesurées par spectrométrie gamma in situ (Yokoyama et al, 1981b).

Une dose annuelle de 234 ± 31 mrad/an est obtenue pour le sédiment n°43 (tableau II-4).

A partir de ces données, un âge de $430\ 000 \pm 85\ 000$ ans est obtenu pour cet échantillon.

4-3 Conclusion.

L'âge obtenu par la méthode ESR sur le sédiment n°43 est en bon accord avec les études de faune de ce site. De plus, le plancher stalagmitique supérieur qui, stratigraphiquement, est au-dessus de l'ensemble III a été daté par plusieurs méthodes. Malgré des résultats dispersés, un âge supérieur à 350 000 ans est donné par la méthode U-Th (Shen, 1985) et un âge de $490\ 000 \pm 50\ 000$ ans est obtenu par la méthode ESR (Yokoyama et al, 1981a) pour ce plancher stalagmitique. Ce résultat est par conséquent compatible avec l'âge que nous obtenons sur le sédiment I-18 dans cette étude.

ARAGO n°43, ensemble III
entre les sols E et F

Activités des nucléides

U-238 (dpm/g)	1.30 ± 0.06
Ra-226 (dpm/g)	1.02 ± 0.08
Rn-222 (dpm/g)	1.04 ± 0.02
Th-232 (dpm/g)	1.37 ± 0.02
K-40 (%)	1.05 ± 0.01

DOSE (mrad/an)

α	38 ± 30
β	122 ± 6
γ	70 ± 4
cosmique	4 ± 1
TOTALE	234 ± 31

TABLEAU III-4. dose annuelle des quartz extraits du sédiment I-18
de l'ensemble III (Arago).

5- Résultats et discussions.

La Caune de l'Arago a fait l'objet d'une grande quantité de datations dont les résultats sont assez dispersés. Le but de ce travail est de comparer les datations faites par ESR à celles obtenues par d'autres méthodes et ainsi de comprendre la succession stratigraphique des couches de l'ensemble IV. Les données répertoriées dans le tableau II-5 représentent les âges calculés par ESR et les résultats obtenus par la méthode du déséquilibre des familles de l'uranium. Toutes ces datations ont été faites sur des échantillons appartenant à l'ensemble IV.

La lecture de ces résultats conduit à penser que les couches qui se trouvent au centre de la coupe (figure II-4), c'est à dire à la limite J-K, sont les plus anciennes. En effet, les échantillons appartenant à cette zone ont des âges compris entre 273.000 ans (14A) et supérieurs à 350.000 ans (carotte n°3, YC7, 13D). Etant donné que cet ensemble se trouve en superficie, des formations postérieures se sont déposées de part et d'autre, suite à l'érosion. C'est ainsi que nous obtenons des âges beaucoup plus jeunes pour YC5 (119 et 138.000 ans) par exemple. La quasi verticalité des couches au centre de la coupe peut s'expliquer par la croissance d'une stalagmite appartenant à la base du plancher stalagmitique de l'ensemble IV.

En conclusion à cette étude, il apparaît que la collaboration, entre géologues et physiciens pour l'étude stratigraphique de l'ensemble IV, a permis d'éclaircir quelques points. Cette conjugaison d'efforts permet d'accorder une meilleure crédibilité aux méthodes physiques qui fournissent des points de repère importants aux stratigraphes.

A partir de l'ensemble III, la stratigraphie n'est pas remise en cause. Ceci est attesté par la datation des grains de quartz extraits du sédiment I-18.

	U-Th (KU)	U-Th (SHEN)	ESR (ce travail)
YC5	-	119 ± 11	-
		138 ± 12	-
16	-	-	159 ± 19
17A	142 ± 15	-	157 ± 22
	141 ± 12		
carotte 3	-	> 350	-
14A	273 ± 50	-	-
14B	289 ± 50	-	-
YC7	-	> 350	520 ± 50*
13D	368 ± 133	-	-
13F	> 350	-	-
12B	140 ± 13	-	-
12C	-	-	224 ± 31

TABLEAU II-5. tableau comparatif des datations obtenues sur l'ensemble IV de la Caune de l'Arago.

* Yokoyama et al (1982)

CHAPITRE III: LE SITE D'ATAPUERCA

1- Introduction.

La Sierra de Atapuerca est située près du village de Ibeas de Juarros, à quinze kilomètres de Burgos (Espagne). Une importante karstification de la structure mésozoïque recouverte par des terrains néogènes, a creusé ce plateau au cours du Miocène, formant ainsi une série de galeries qui communiquent par des cheminées et des siphons. Des affondrements importants ont provoqué l'apparition de grandes salles, ainsi que des dolines dans lesquelles s'accumulent des restes animaux et des sédiments clastiques (Aquirre et al, 1976). C'est dans l'une des plus importantes cavités qui s'ouvrent sur le flanc de la Sierra (la Cueva Mayor), que Trinidad Torres découvre, en 1976, une dizaine de fragments humains. En 1984, une campagne de fouilles dirigée par E. Aquirre permet d'exhumer une quarantaine de fragments d'os crâniens et de dents isolées supplémentaires. Au total, plus de quatre-vingts fragments, dont quatre mandibules, constituent l'un des plus importants vestiges humains en Europe. Les mandibules qui présentent de nombreux caractères communs avec celles de la Caverne de l'Arago, de Mauer et de Montmaurin, appartiennent à la famille des Anténéandertaliens.

À la fin du XIX^e siècle, un chemin de fer, dont le tracé passe par le bord sud-ouest de la Sierra de Atapuerca, a été construit pour faciliter l'exploitation minière de la région (figure III-1). L'ouverture d'une tranchée (Trincheras) a ainsi mis à jour de nombreux gisements paléontologiques, remplissages d'anciennes grottes (figure III-2).

2- Stratigraphie de la Trincheras et localisation des échantillons.

Les réseaux karstiques de la Cueva Mayor et ceux de la Trincheras sont sans relation directe. Cependant, les coupes de la Trincheras sont étudiées car elles donnent des informations sur la stratigraphie et la chronologie, par les données faunistiques et la

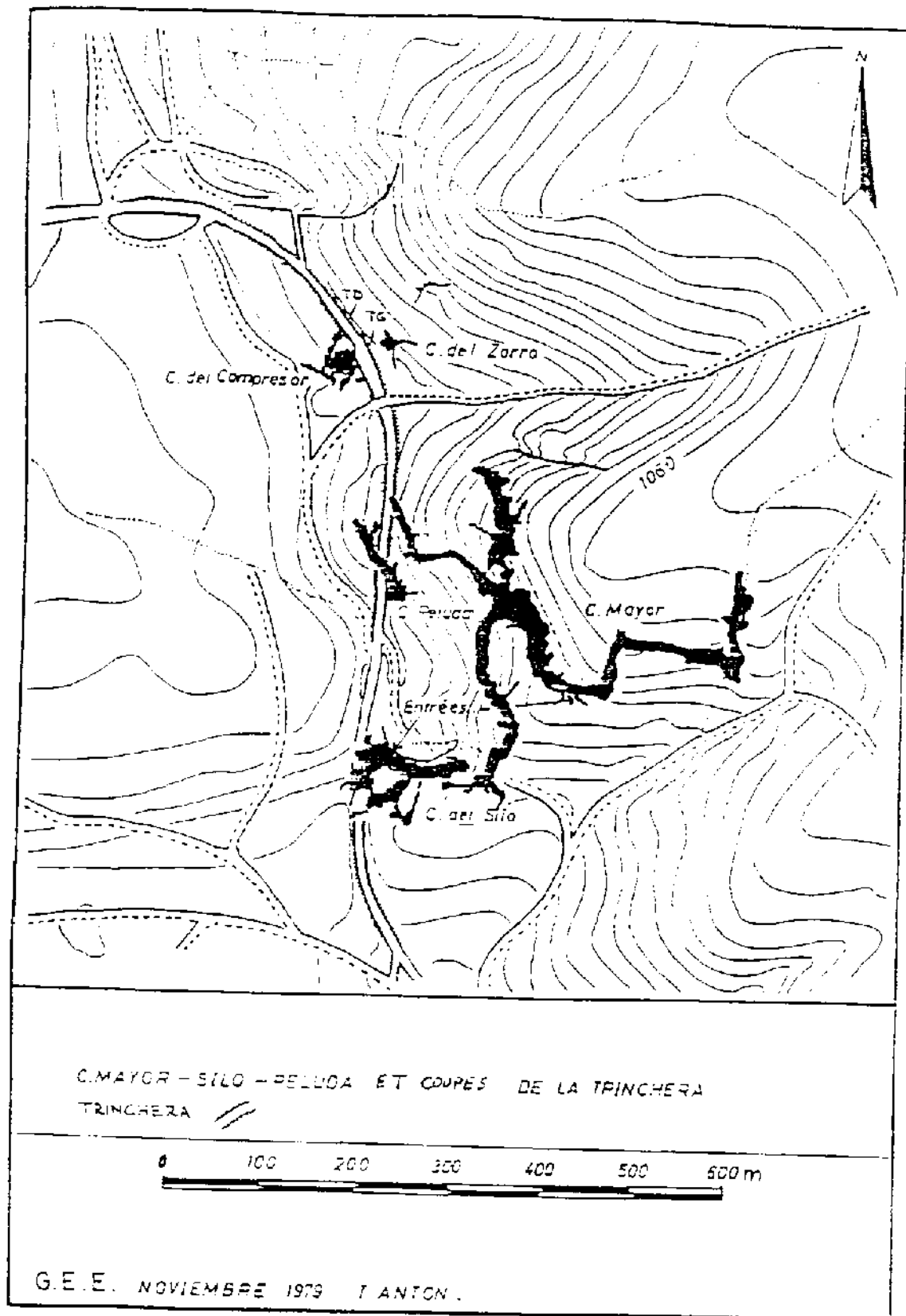


Figure III-1 Vue d'ensemble de la Cueva Mayor et de la Trinchera (Atacuerca)

PLAN GENERAL DE LA TRINCHERA

ALABOTICA (TRINCHERA)

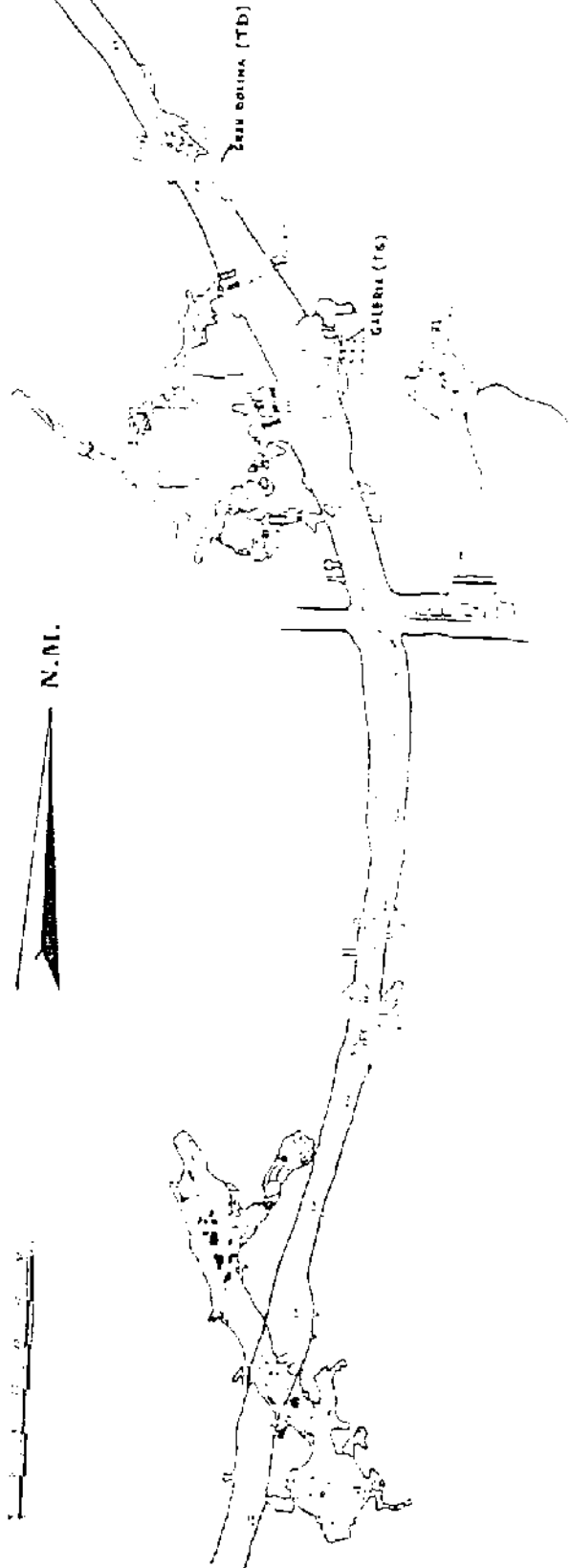


Figure III-2 Plan general de la Trinchera

formation des karsts. La comparaison entre les datations de calcite par ESR et les études de faunes peut également permettre d'éclaircir certains points.

La Trincheira est divisée en trois ensembles appelés Atapuerca I, II et III (IIIa et IIIb) (Gil, sous presse). Quatre coupes principales permettent d'observer les couches appartenant à ces trois unités (figure III-3).

La Gran Dolina (TD), haute de dix-huit mètres, est la seule coupe dans laquelle on observe la présence des trois ensembles. Elle est formée essentiellement de brèches enveloppées par une matrice argileuse et entrecoupées de niveaux sableux. Les couches inférieures (3 à 6) contiennent une microfaune abondante et notamment *Pitymys gregaloides*, *Miomys savini* et *Pliomys episcopalis*. On peut situer ces rongeurs dans les premières phases du Pléistocène moyen (Gil et Sese, 1986). On trouve aussi dans ces mêmes couches, une macrofaune assez importante (*Ursus stehlini*, *Crocota intermedia*, *dicerorhinus hemitoechus...*).

La faune est en relation avec celle du gisement de Isarnia la Pineta (Italie) qui est datée à 730.000 ans.

A la base de l'ensemble II, un galet taille a été trouvé.

Cette coupe ne contient pas de plancher stalagmitique.

Dans les coupes de la Galeria (TG) et de Tres Simas (TS), les ensembles II, IIIa et IIIb sont également bien représentés.

L'ensemble II est une série fluviatile sableuse, comprenant des niveaux de grès, sables, argiles et limons. Dans la couche 11 de la Galeria, on trouve une faune plus moderne telle que *Pitymys subterraneus*, *Pliomys lenki* et *Microtus agrestis*.

L'ensemble IIIa est constitué d'une matrice argileuse comprenant des brèches et des blocs calcaires.

L'ensemble IIIb est formé d'un gravier très compact, carbonaté qui, en TG, s'intercale avec du matériel argileux. Des sols d'occupation humaine ont été retrouvés dans cet ensemble.

Dans chacune des deux coupes, ces ensembles sont surmontés par des planchers stalagmitiques dans lesquels nous avons prélevé nos échantillons. Il s'agit de TGY2 pour la Galeria et de TSY12 pour Tres Simas.

Enfin, la coupe de la Cueva de los Zarpazos ou Covacha (TZ)

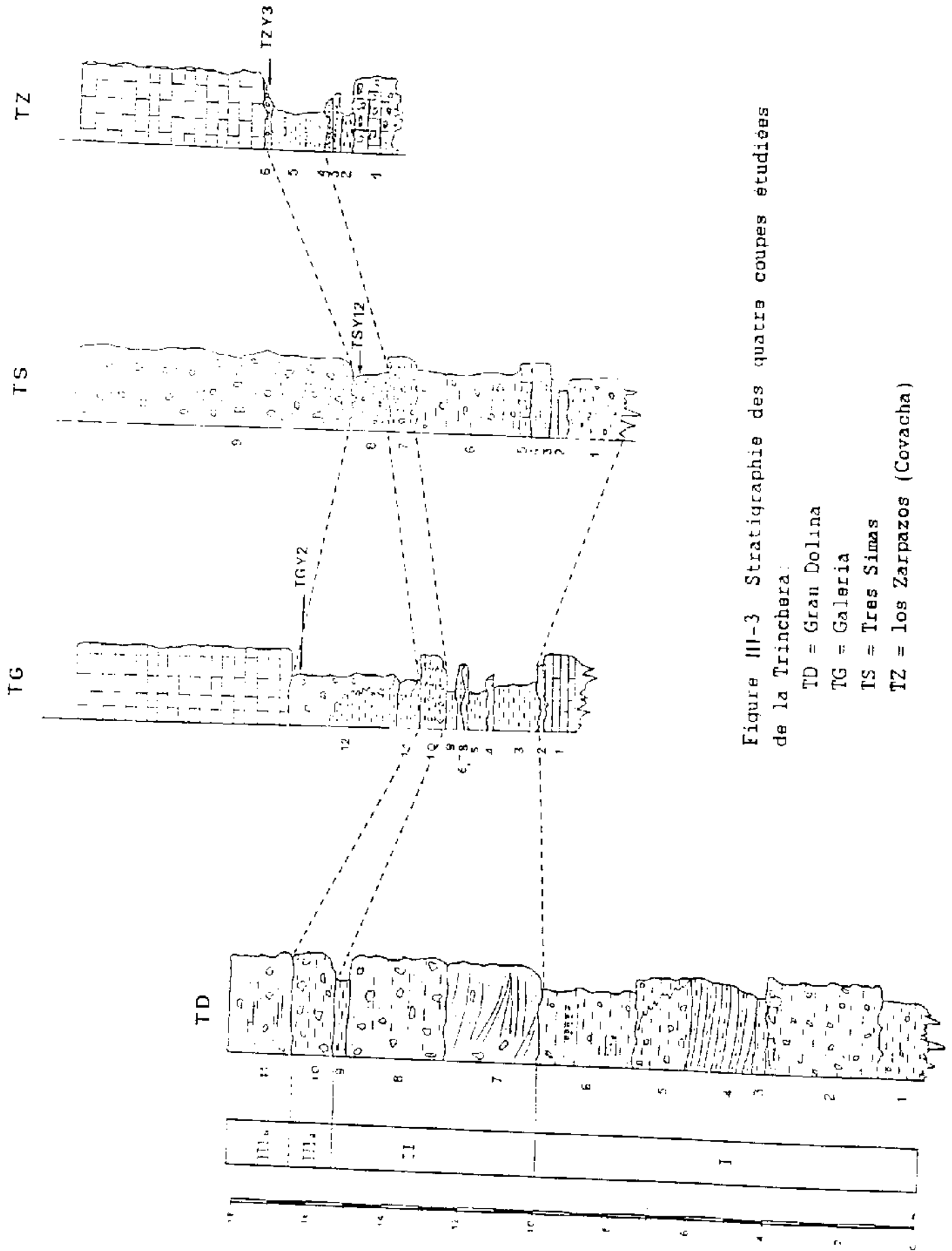


Figure III-3 Stratigraphie des quatre coupes étudiées de la Trinchera:

TD = Gran Dolina

TG = Galeria

TS = Tres Simas

TZ = los Zarpazos (Covacha)

est beaucoup plus mince d'un point de vue lithologique. Nous avons prélevé un échantillon dans le plancher stalagmitique qui semble être contemporain des deux autres.

3- Datation de calcites par la méthode ESR.

3-1- Doses équivalentes.

Les doses équivalentes sont déterminées pour LR et h1, (l'échantillon TGY2 a été recuit à 180°C pendant 16 heures pour la détermination de h1).

Le tableau III-1 montre que les valeurs obtenues à partir de LR et h1 sont en bon accord.

A 180°C, le piège LR est déformé mais pas détruit. Cette destabilisation se traduit par une augmentation importante de la dose équivalente. Ce phénomène a été constaté pour tous les échantillons qui ont été recuits à 180°C.

Les trois échantillons étudiés sont assez purs et bien cristallisés, et ne contiennent pas ou très peu de manganèse.

3-2- Doses annuelles et âges.

Les doses annuelles sont estimées en laboratoire. La dose interne est calculée à partir des activités, en U-238 des échantillons stalagmitiques. La dose externe est évaluée à partir de l'activité des sédiments environnant les planchers stalagmitiques.

En ce qui concerne la dose gamma externe, la teneur en eau, d'environ 10%, et un facteur de géométrie égal à 0.90 ont été pris en compte.

La dose cosmique, pour ces trois échantillons, a été estimée à 12 mrad/an. Le tableau III-2 récapitule toutes ces données.

Les âges obtenus pour TGY2, TSY12 et TZY3 sont respectivement de 211.000 ± 32.000 , 256.000 ± 33.000 et 222.000 ± 31.000 ans. Ces âges sont identiques, si l'on tient compte des erreurs (un sigma). Par conséquent, selon notre datation, ces

	non recuit LR	recuit 120°C LR	recuit 180°C h1
TGY2	12.8 ± 1.2	12.5 ± 0.5	10.9 ± 1.2
TSY12	13.6 ± 1.2	-	-
TZY3	10.6 ± 1.0	-	-

TABLEAU III-1. doses équivalentes, en Krad, des échantillons de la Trinchera (Sierra de Atapuerca).

calcite	TGY2	TSY12	TZY3
Activité			
U-238 (dpm/g)	0.05 ± 0.005	0.05 ± 0.005	0.05 ± 0.005
D. interne (mrad/an)	5.35	5.35	5.35
sédiment	TGY9	TSY15	TZY10
Activité			
U-238 (dpm/g)	1.01 ± 0.06	0.97 ± 0.06	1.11 ± 0.05
Th-232 (dpm/g)	0.91 ± 0.05	0.96 ± 0.05	0.77 ± 0.04
K-40 (%)	0.60 ± 0.02	0.57 ± 0.02	0.40 ± 0.01
D. externe (mrad/an)	46.41	47.70	42.37
D. totale (mrad/an)	51.76	53.05	47.72

TABLEAU III-2: activités et doses annuelles des échantillons de la Trinchera (Atapuerca).

planchers stalaqmitiques situés dans trois remplissages voisins mais indépendants sont contemporains.

3-3-Autres datations.

Une mandibule (AT-75) prélevée dans le sol intact de la Cueva Mayor a été datée par spectrométrie gamma non destructive qui

utilise la méthode U-Th. (Yokoyama et al, 1986b). Un âge de 320 ± 233 ans a été trouvé par le rapport Th-230/U-234, et un âge

supérieur à 175.000 ans a été obtenu par le rapport Pa-231/U-235.

4-Conclusion.

Les sites de la Cueva Mayor et de la Trinchera ne peuvent pas être mis en relation directe.

Les caractères morphologiques des mandibules et les datations effectuées sur celles-ci confirment leur appartenance à la famille des Anténéandertaliens.

Les études faunistiques et les datations faites sur les planchers stalaqmitiques tendent à donner un âge compris entre 200 et 300.000 ans pour les couches de la Trinchera.

Les âges donnés par la technique ESR et la position stratigraphique des échantillons laissent penser que les planchers stalaqmitiques ont pu se former au cours d'une phase de réchauffement du Riss.

	DE (Krad)	Da (mrad/an)	âge (10 ³ ans)
TGY2	10.9 ± 1.5	51.76 ± 5.2	211 ± 32
TSY12	13.6 ± 1.2	53.05 ± 5.3	256 ± 33
TZY3	10.6 ± 1.0	47.72 ± 4.8	222 ± 31

TABLEAU III-3: doses équivalentes (DE), doses annuelles (Da) et âges des échantillons stalagmitiques de la Trinchera (Atapuerca).

CHAPITRE IV. LA GROTTTE DU PRINCE

1- Introduction.

La grotte du Prince fait partie des grottes de Grimaldi situées en Ligurie italienne, près de la frontière franco-italienne. Cette vaste cavité, orientée sud-est nord-ouest a révélé une industrie paléolithique importante lors des fouilles effectuées au début du siècle sous la direction du Prince Albert Premier de Monaco. En 1968, lors de nouvelles recherches entreprises par L. Barral et S. Simone, un vestige humain anténeandertalien est découvert dans les niveaux rissiens. Il s'agit d'un fragment d'os iliaque droit de femme adulte. L'industrie découverte dans ces mêmes niveaux est classée comme étant acheuléenne.

Une tranchée d'un mètre de large sur douze mètres de haut a permis d'observer en détail des formations marines antétyrrhéniennes et des brèches continentales antewürmiennes sur lesquelles vient s'appuyer un remplissage continental wurmien contenant une industrie moustérienne (Simone, 1970).

Un revêtement stalagmitique enveloppe la majeure partie des couches antewürmiennes et a fourni la matière à plusieurs datations. Dans le cadre de cette étude, deux types d'échantillons sont datés par la méthode ESR: trois proviennent de divers endroits de la couverture stalagmitique et un est extrait d'une couche marine (M3) dont l'étude fera l'objet d'un chapitre ultérieur.

La figure IV-1 illustre la stratigraphie révélée par la tranchée et indique la position des échantillons étudiés. L'abréviation v.h. (vestige humain) indique l'endroit où l'os iliaque a été découvert.

2- Datation des planchers stalagmitiques.

Les brèches à ossements (Br2) qui se composent de cailloutis calcaires, sont interstratifiées par un plancher stalagmitique. En effet, la stratigraphie indique que ce revêtement stalagmitique s'est déposé juste avant les brèches Br2. Donc, dater la calcite,

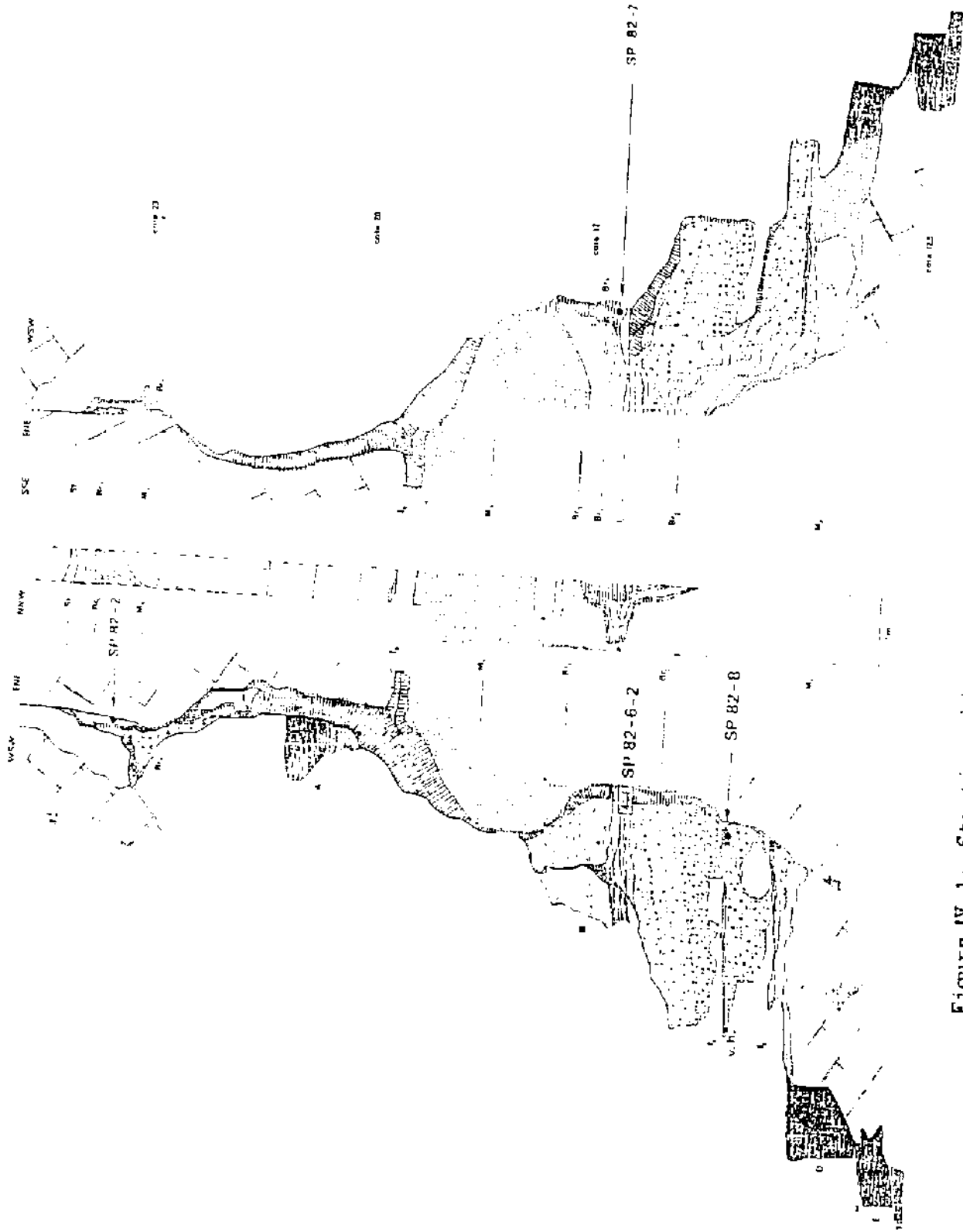


Figure IV-1: Stratigraphie revelée par la tranchée qui est au centre et position des échantillons (grotte du Prince).
v.h. indique la position de l'os iliaque.

La dose gamma a été déterminée par spectrométrie gamma in situ.
La dose cosmique, très faible, est de 0.5 mrad/an pour les trois échantillons.

La valeur des doses annuelles oscille autour de 30 mrad/an (27.9 mrad/an pour SP-82-8(4) et 31.5 mrad/an pour SP-82-6(2)).
Le tableau IV-2 récapitule toutes ces données.

Les âges obtenus pour SP-82-6(2) et SP-82-8(4) sont compris entre 130.000 et 179.000 ans.

L'os iliaque a été daté par spectrométrie gamma non destructive (Yokoyama et Nguyen, 1982; Yokoyama et al, 1986b). L'âge obtenu par

cette technique (méthode U-Th) est de 220.000 + 150.000 ans.
- 50.000

D'autre part, le Pa-231 est en équilibre avec U-235. L'âge de cet échantillon est par conséquent supérieur à la limite de la méthode U-Pa, donc à 150.000 ans.

Les échantillons SP-82-6 et SP-82-8 ont également été mesurés par la méthode U-Th qui utilise la spectrométrie alpha (Shen, 1985). Les âges obtenus sont compris entre 143.000 et 216.000 ans (tableau IV-3)

Tous ces âges sont en bon accord, si l'on tient compte des erreurs statistiques. Par conséquent, on peut estimer que la base de ce plancher stalagmitique a un âge d'environ 200.000 ans.

L'échantillon SP-82-7(4) est beaucoup plus jeune puisque le plancher stalagmitique dont il est issu est une formation postérieure qui recouvre les brèches à ossements Br2. L'âge obtenu par ESR, de 89.000 ± 28.000 ans, est cohérent avec les données stratigraphiques et l'âge obtenu par la méthode U-Th, 79.000 ± 4.000 ans (Shen, 1985).

	non recuit		recuit 120°C		recuit 180°C
	h3	LR	h3	LR	h1
SP-82-6(2)	4.1±0.3	9.2±0.8	-	-	-
SP-82-7(4)	2.6±0.8	5.7±0.7	-	-	-
SP-82)8(4)	3.2±0.7	11.8±0.5	5.4±1.3	10.3±1.3	5.0±1.0

TABLEAU IV-1. Doses équivalentes en Krad, des échantillons de calcite de la grotte du Prince.

	SP-82-6(2)	SP-82-7(4)	SP-82-8(4)
U (ppm)	0.444	0.277	0.276
doses (mrad/an)			
α	13.56	8.72	10.42
β	4.21	3.84	4.06
γ + cosmique	13.70	16.70	13.40
dose totale	31.47 ± 3.1	29.26 ± 2.9	17.88 ± 2.8

TABLEAU IV-2: doses annuelles des échantillons de la grotte du Prince.

	ESR [*]	U-Th(α) ^{**}	U-Th(γ) ^{***}	U-Pa(γ) ^{***}
plancher stalag				
mitique sup.				
SP-82-7(4)	89 \pm 28	79 \pm 4	-	-
plancher stalag				
mitique inf.				
SP-82-6(2)	130 \pm 16	143 \pm 15	-	-
SP-82-8(4)	179 \pm 39	190 \pm 21	-	-
os iliaque				
	-	-	220	> 175
			+120	
			-50	

TABEAU IV-3: comparaison des âges obtenus (10^3 ans) par ESR avec d'autres méthodes.

* ce travail

** spectrométrie alpha (Shen, 1985)

*** spectrométrie gamma (Yokoyama et al, 1986b)

3- Conclusion.

L'os iliaque a été découvert dans la partie inférieure des brèches Br2. Les âges obtenus par la méthode ESR sont en bon accord avec les résultats obtenus par d'autres méthodes telles que la spectrométrie gamma et la méthode U-Th. D'autre part, les données typologiques qui font de l'industrie recueillie dans la couche Br2, une industrie acheuléenne plus les caractères morphologiques de l'os iliaque permettant de penser que l'on est en présence d'un anténéandertalien, corroborent les résultats de cette étude.

CHAPITRE V: LA GROTTTE DE FATE

1- Introduction.

"La Caverna delle Fate" (grotte des fées) est située à 5Km au nord-est de Finale (Ligure, Italie). Elle s'ouvre largement vers le sud-ouest avec une première salle assez vaste, qui se prolonge, vers le sud, par un couloir qui mène à une série de galeries et de salles sur environ 150m.

Les fouilles dirigées par G.B. Amerano dans cette grotte, à la fin du siècle dernier (1887-1888), ont fourni une grande quantité de restes osseux et d'industries lithiques qui se rattachent au début du Würm. Des restes humains fossiles de la grotte de Fate, ont été identifiés récemment au cours de la révision des restes osseux pléistocènes de la collection recueillie par Amerano. Ils étaient enfermés dans une caisse, mêlés à des ossements de mammifères extraits des couches à *Ursus spelaeus*, et présentaient les mêmes conditions de fossilisation. Ils sont représentés par un fragment de frontal (Le Fate I) et une hémimandibule (Le Fate II) d'enfant, et par un fragment de mandibule d'individu adulte (Le Fate III), (Giacobini et al, 1983).

2-Prélèvement des échantillons.

Dans le couloir qui prolonge la première salle (figure V-1), les fouilles d'Amerano ont permis d'identifier des couches archéologiques qui se succèdent depuis le Moustérien jusqu'au Néolithique moyen. Les couches du début du Würm renferment une industrie moustérienne typique riche en racloirs, de débitage levallois et de facies non levalloisien (Lumley de H., 1969).

Les restes humains proviennent vraisemblablement de cette galerie appelée aussi corridor n°3.

Les échantillons étudiés ont également été prélevés dans cette partie de la grotte. Comme l'indique la figure V-2, ils appartiennent à deux planchers stalagmitiques interstratifiés dans les couches wurmiennes.

3-Datation des calcites par ESR.

3-1- Doses equivalentes (DE).

Les doses equivalentes sont déterminées pour la mesure de h3 et LR, par la méthode de l'addition.

Pour F-85-2, h1 est pratiquement inexistant ce qui suggère que l'échantillon est jeune. La ligne de base inclinée plus la perturbation causée par le manganèse rendent difficile la mesure de LR. Le piège h3 a donc été utilisé pour la mesure de la dose équivalente de F-85-2.

Les doses equivalentes des échantillons F-85-9 et F-85-10 sont déterminées pour la mesure de LR. La ligne de base est plus horizontale que dans le cas de F-85-2. Pour F-85-10, le signal de h2 perturbe quelque peu la mesure de LR en ce sens qu'il diminue la hauteur de LR.

Un signal cause par le broyage des échantillons et qui croît avec l'irradiation gamma, se superpose aux h3 de F-85-9 et F-85-10. Ce signal parasite ne s'observe pas pour F-85-2.

Les doses equivalentes obtenues pour F-85-2, F-85-9 et F-85-10 sont respectivement de 3.1 ± 1.3 , 6.0 ± 0.3 et 6.0 ± 0.8 Krad.

3-2- Doses annuelles et âges obtenus.

Les échantillons stalagmitiques étudiés dans ce chapitre, ont une teneur très faible en uranium (0.04 ppm d'U-238). Ces échantillons sont à la limite de mesure par spectrométrie gamma.

La dose externe est déterminée par mesure de spectrométrie gamma des sédiments environnant les échantillons étudiés (tableau V-1). Pour ce calcul, la teneur en eau, de 15%, et un facteur de géométrie égal à 0.71, ont été pris en compte. La dose cosmique est évaluée à 5mrad/an.

Calcite (Fate)	
Teneur	
U-238 (ppm)	0.04
Dose alpha (mrad/an)	13.50
Sédiment F-85-14	
Activité	
U-238 (dpm/g)	2.55 ± 0.07
Ra-226 (dpm/g)	1.15 ± 0.11
Rn-222 (dpm/g)	1.32 ± 0.02
Th-232 (dpm/g)	1.90 ± 0.05
K-40 (%)	1.53 ± 0.02
Dose (mrad/an)	
gamma	58.7
cosmique	5.0
TOTALE	77.2

TABLEAU V-1: teneur en U-238 des calcites, activité et dose des sédiments environnants.

Les âges obtenus sont de 40.000 ± 12.000 , 78.000 ± 9.000 et 78.000 ± 13.000 ans pour F-85-2, F-85-9 et F-85-10 respectivement (tableau V-2).

4- Conclusions.

Les restes humains ont été datés par spectrométrie gamma utilisant un détecteur de germanium à haute pureté (GeHP). Les âges, calculés par les méthodes des rapports Pa-231/U-235 et

	+21.000		+36.000	
Th-230/U-234 ont donné	75.000	et	82.000	ans
	-14.000		-25.000	

respectivement (Giacobini et al, 1984).

Ces dates confirment les caractères morphologiques de ces ossements et les classent parmi les Néandertaliens.

Les résultats obtenus par la méthode ESR sur les échantillons de calcite confirment ces données. Le plancher stalagmitique, noté STD (figure V-2), se serait formé après le premier stade de glaciation du Würm. Le plancher stalagmitique contenant l'échantillon F-85-2 se serait quant à lui formé à la fin du Paléolithique moyen ou au début du Paléolithique supérieur.

	DE (Krad)	Da (mrad/an)	Age (10^3 ans)
F-85-2	3.1 ± 1.3	77.2 ± 7.7	40 ± 12
F-85-9	6.0 ± 0.3	77.2 ± 7.7	78 ± 9
F-85-10	6.0 ± 0.8	77.2 ± 7.7	78 ± 13

TABLEAU V-2. doses équivalentes (DE), doses annuelles (Da) et âges des échantillons stalagmitiques de la grotte de Fate.

B/ CORRELATION ENTRE PLAGES MARINES ET STRATIGRAPHIE.

Contrairement à la partie précédente, nous nous limiterons, d'un point de vue géographique, à l'étude de sites appartenant à la région comprise entre Nice et la frontière franco-italienne. En effet, dans ce cadre géographique, la grande amplitude relative des mouvements de la mer au cours du Plio-Pléistocène, permet d'avoir des dépôts marins littoraux qui constituent autant de niveaux-repères dans les séries sédimentaires: l'âge des sédiments continentaux (de plein air ou de grottes) et des gisements préhistoriques qui peuvent leur être associés peut donc être défini avec plus de précision (Bonifay, 1975).

Les variations glacio-eustatiques et la néotectonique ont eu, dans cette région, une influence majeure quant à la répartition en altitude de ces rivages marins.

Les sites étudiés (figure B) sont les suivants.

- la grotte du Vallonnet (stalagmite de fermeture).
- le site de Terra Amata (cordon littoral).
- la grotte du Lazaret (plage de Villa Marcella)
- la grotte du Prince (couche marine).

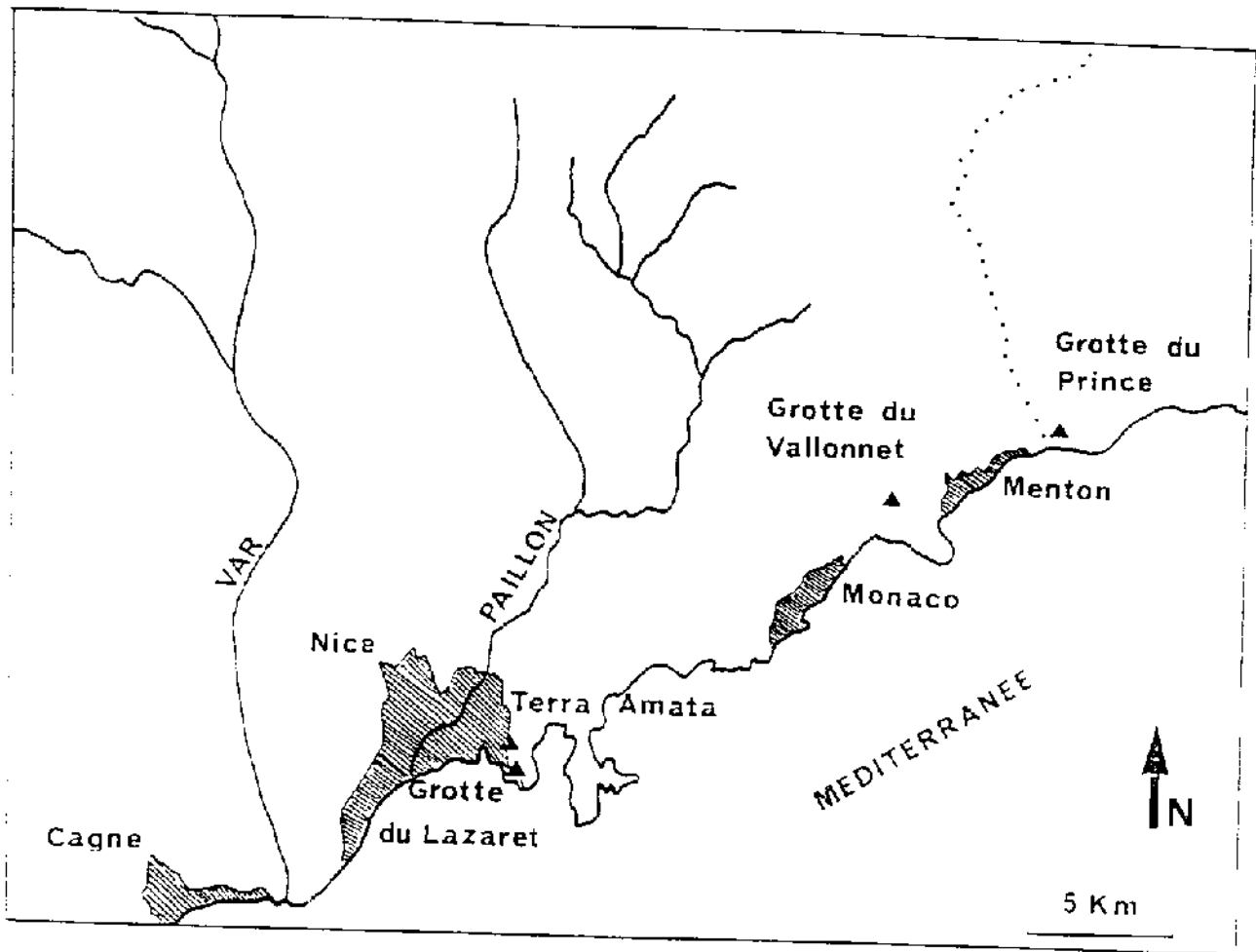


Figure B Sites etudies dans la région de Nice

CHAPITRE VI: LA GROTTTE DU VALLONNET.

1- Presentation et stratigraphie du site.

La grotte du Vallonnet, située à Roquebrune Cap-Martin (Alpes maritimes), est la plus ancienne habitation en grotte connue en Europe (Lumley de et al, 1963). Le remplissage de cette petite grotte est peu épais (1.50 metre environ).

Un remplissage continental, antérieur à la transgression calabrienne (voir ci-dessous), est formé de gros blocs déchiquetés par la mer. Le plancher stalagmitique de base (E) est également quelque peu demantelé par la mer.

Au-dessus, les traces d'un niveau marin se voient à la base du second remplissage continental, à l'altitude de 108 metres. Ce niveau qui correspond à un maximum transgressif, est daté paléontologiquement du Calabrien (Iaworsky, 1973). La faune marine et l'abondance des foraminifères témoignent d'un milieu très littoral.

Après le retrait de la mer, au Calabrien supérieur, un remplissage continental colmate presque entièrement la grotte. Il est formé essentiellement de sables argileux à cailloux anguleux et galets (C, B2, B1). Un violent ravinement a, par la suite, arraché du couloir ce remplissage qui a été creusé en surface. Des argiles rouges sableuses colluvieses (A) ont comblé la profonde rigole qui s'était formée à la suite du ravinement.

Enfin, un épais plancher stalagmitique (S) surmonte et a par conséquent protégé ce qui restait du remplissage des érosions postérieures.

La figure VI-1 schématise la stratigraphie de la grotte du Vallonnet.

2- Repères chronologiques.

L'âge calabrien du niveau de 108 mètres résulte, d'après Iaworsky (1973), de la coexistence de *Griphaea virletti* et de *Griphaea cucullata* avec *Pecten maximus*. Cette transgression est contemporaine de l'interglaciaire Donau-Günz (Lumley de et al, 1976).

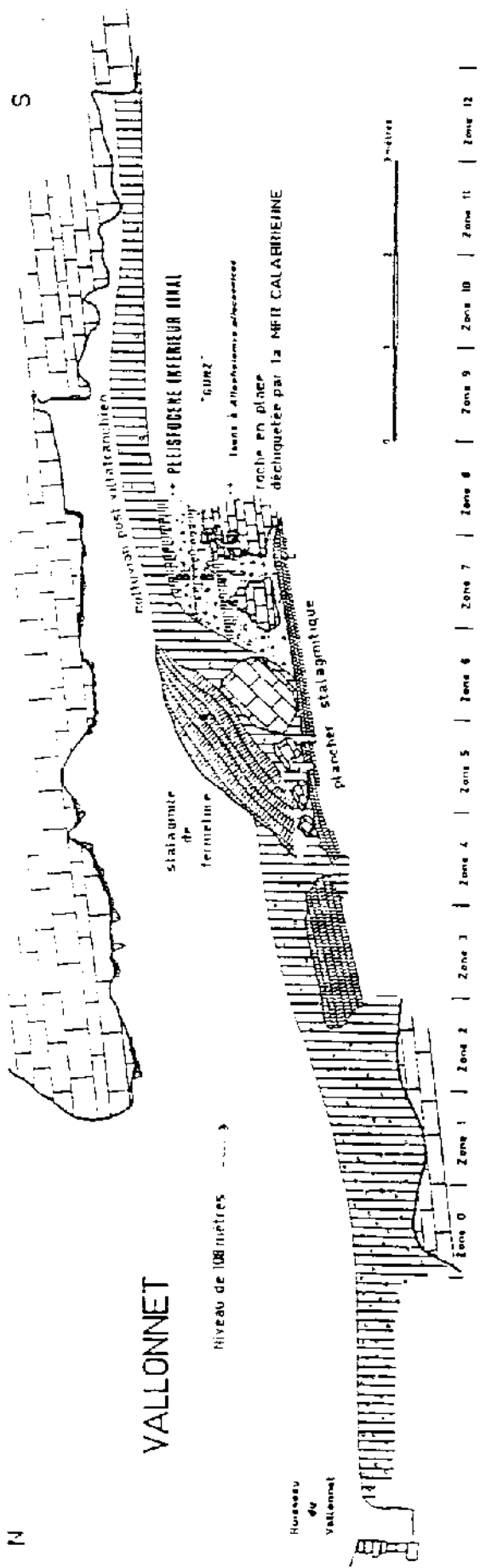


Figure VI -1 Stratigraphie de la grotte du Vallonnet

La partie inférieure du second remplissage continental (couches C, B2 et B1) est riche en ossements de mammifères fossiles. Elle comprend de nombreuses espèces parmi lesquelles *Canis sp.*, *Acinonyx pardinensis* et *Leptobos sp.* Cette association annonce les faunes du Pléistocène moyen. De plus, la présence de rongeurs tels qu'*Allophaiomys pliocenicus* indique que cette faune appartient au Pléistocène moyen très ancien (Chaline, 1971).

Le remplissage du Vallonnat, qui présente une aimantation positive, pourrait dater de l'épisode de Jaramillo (0.9-0.95 MA); ceci étant en accord avec les datations obtenues par les faunes.

Quelques outils sur galet ont été ramassés dans les couches inférieures du second remplissage.

3- Datation d'échantillons stalagmitiques par ESR.

Deux échantillons font l'objet de cette étude.

- SV-82-3 prélevé dans la partie supérieure du plancher stalagmitique de base E.

- SV-82-6 qui appartient à la partie inférieure du plancher de fermeture S.

Ces deux échantillons ont déjà été datés par la méthode ESR (Michelot, 1982; Yokoyama et al, 1983b).

3-1- Doses équivalentes (DE).

Lorsque l'on effectue une succession de recuits à 180°C sur un échantillon naturel pendant des périodes de temps donné (1, 2, 4, 8 heures...), les pièges h1 et h3 ont un comportement opposé en ce sens que le premier augmente et le second diminue. Autrement dit, il y a un transfert d'électrons de h3 vers h1 (figure VI-2). Nous avons considéré que le transfert d'électrons de h2 vers h1 était négligeable.

Les doses équivalentes sont calculées par l'équation suivante:

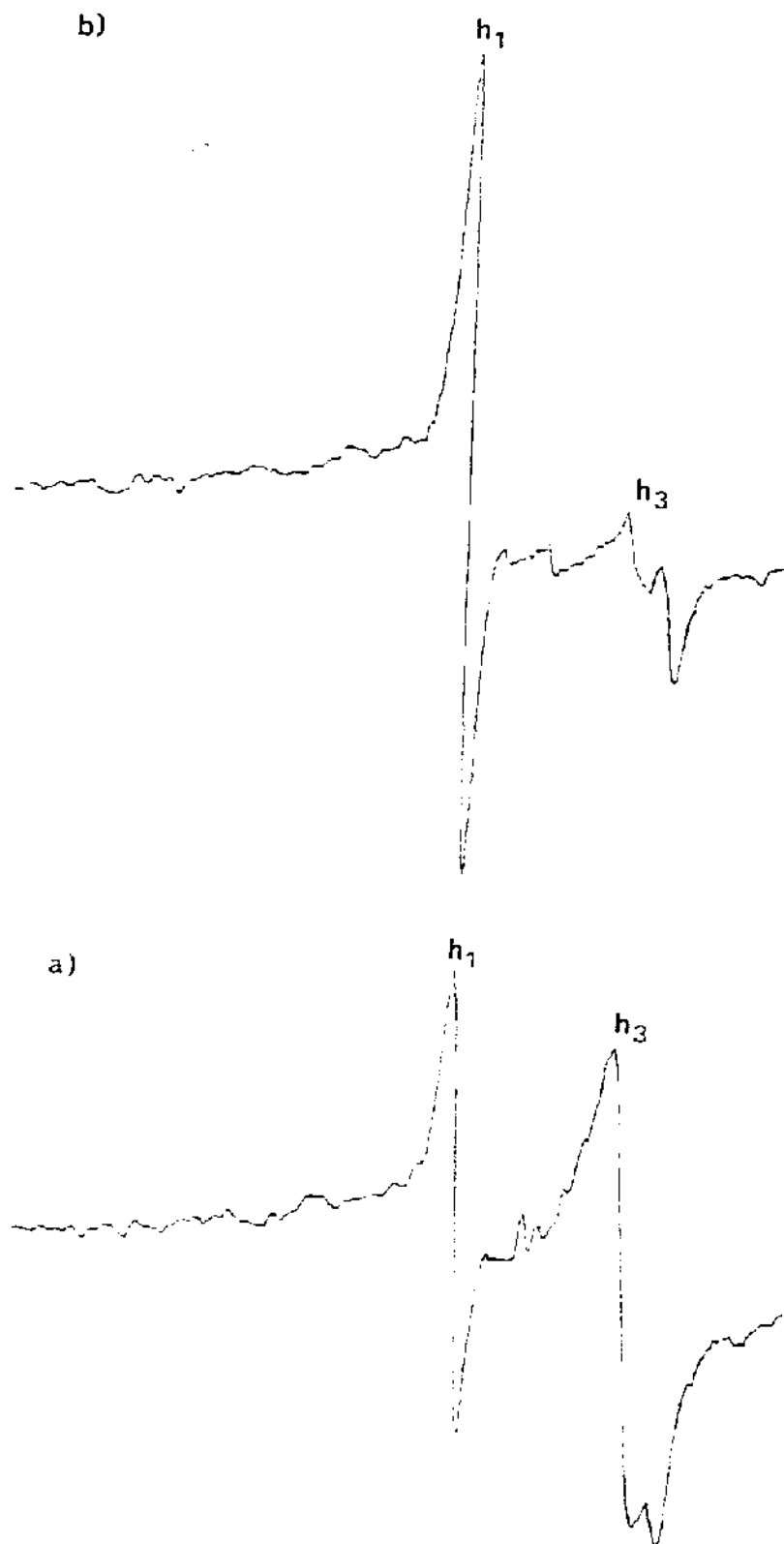


Figure VI -2. Processus de transfert d'électrons de h3 vers h1, après un recuit à 180°C dans l'échantillon naturel SV-82-6 (Vallonnet)

- a) 1 heure
- b) 17 heures

$$DE_{réelle} = DE_{h3} * (1 + h3_{décrû} / h3)$$

dans laquelle DE_{h3} et $h3$ correspondent respectivement à la valeur de la dose équivalente pour $h3$ et la mesure de $h3$ obtenues dans l'échantillon naturel non recuit.

$h3_{décrû}$ s'obtient en divisant la hauteur de $h1$ naturel par le coefficient k de transfert d'électrons (figure VI-3).

Pour $h3$, en mesurant de pic à pic, Michelot obtient des doses équivalentes égales à 28 et 27 Krad respectivement pour SV-82-3 et SV-82-6.

Le signal $h3$ est superposé à celui de $h2$. Si on superpose le signal $h3$ de SV-82-6 naturel et non irradié à ceux des échantillons irradiés, on remarque que la partie négative est accrue par le signal $h2$. Nous avons par conséquent mesuré la partie positive du signal (depuis la ligne de base jusqu'au sommet du pic $h3$).

Par cette technique, nous obtenons une dose équivalente de 42 Krad pour $h3$. De ce fait, la dose équivalente réelle devient alors égale à 69 Krad.

Pour l'échantillon SV-82-3, nous obtenons une dose équivalente de 43 Krad pour $h3$ et une dose équivalente réelle de 75 Krad. Le tableau VI-1 récapitule ces données

3-2- Doses annuelles et âges obtenus.

D'un point de vue expérimental, la présente étude s'attache à trouver les doses équivalentes réelles des échantillons SV-82-3 et SV-82-6

En ce qui concerne les doses annuelles, les résultats calculés par Yokoyama et al (1983b) sont repris (tableau VI-2).

Les âges obtenus pour SV-82-3 et SV-82-6 sont respectivement de $1.415 \pm 198 \cdot 10^3$ ans et $1.045 \pm 146 \cdot 10^3$ ans (tableau VI-2).

4- Conclusions.

Si l'on tient compte de l'erreur faite sur l'âge calculé par la méthode ESR sur SV-82-6, ce résultat est en bon accord avec le paléomagnétisme ainsi qu'avec les études réalisées sur les faunes.

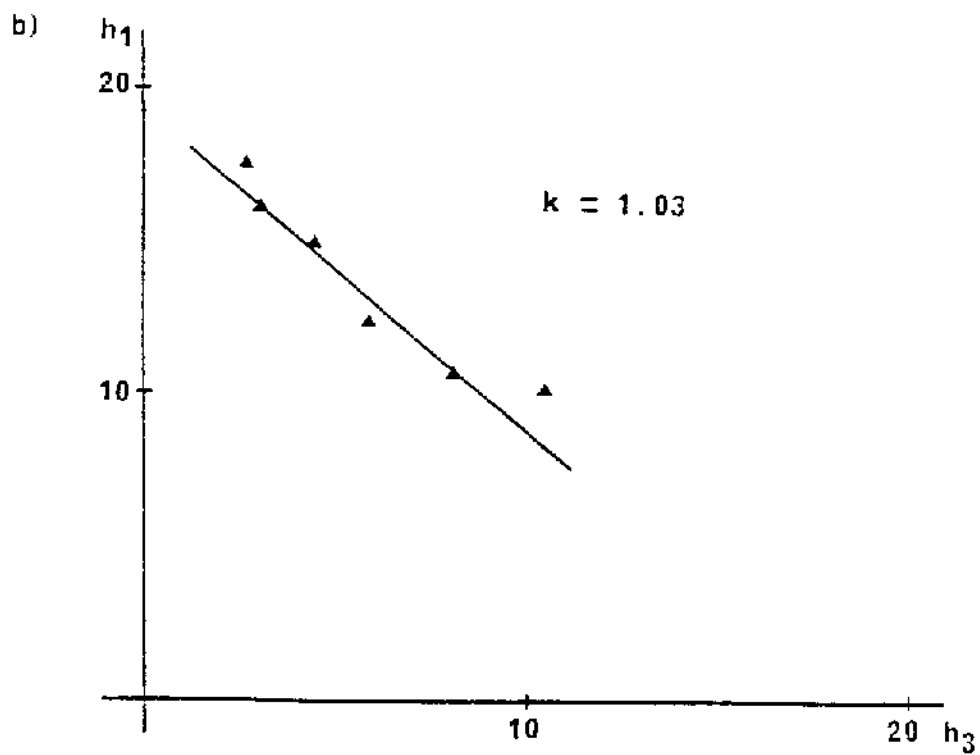
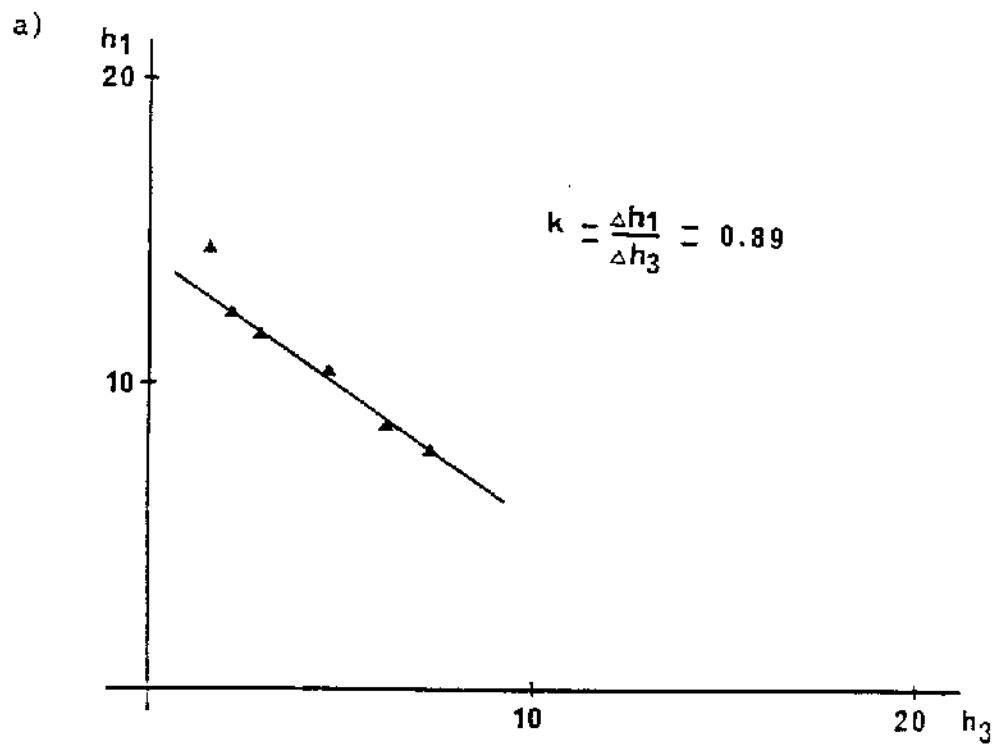


Figure VI -3 Calcul du coefficient k de transfert d'électrons dans SV-82-3 et SV-82-6 (Vallonnet)

	SV-82-3	SV-82-6
k	0.89	1.03
h3 (unité arbitraire)	77	98
h3 décru (unité arbitraire)	56.7	64.0
DE h3(Krad)	43	42
DE réelle	75	69

TABLEAU VI-1: coefficient de transfert k, hauteurs de h3 et h3 décru, dose équivalente de h3 et dose réelle des échantillons SV-82-3 et SV-82-6 du Vallonnet.

	SV-82-3	SV-82-6
teneur en U(ppm)	0.30	0.42
Dose (mrad/an)		
interne	32	45
externe	21	21
totale	53 ± 5.3	66 ± 6.6
Âge (10 ³ ans)	1.415 ± 198	1.045 ± 146

TABLEAU VI-2: teneur en uranium, dose annuelle et âge des échantillons SV-82-3 et SV-82-6 (Vallonnet).

Les datations effectuées sur SV-82-3 et SV-82-6 encadrent et confirment l'âge calabrien du niveau marin repéré à l'altitude de 108 mètres.

Le second remplissage continental de la grotte du Vallonet s'est déposé pendant la période glaciaire du Günz.

CHAPITRE VII: LE SITE DE TERRA AMATA

1- Introduction.

Le site de Terra Amata est un site acheuléen situé sur les pentes occidentales du Mont Boron, à Nice.

Des fouilles de sauvetage, organisées par H. de Lumley avant la construction d'un immeuble en 1966, ont permis de dégager vingt et un niveaux d'habitat successifs. Les chasseurs qui occupaient ce site de plein air, utilisaient le feu. En effet, plusieurs foyers ont été trouvés dans les habitats de la dune, au centre des buttes temporaires qui abritaient les hommes de Terra Amata.

Une faune abondante, composée de grands mammifères (cerf, éléphant, sanglier, bouquetin, rhinocéros de Merck) mais aussi de carnivores (loup) et de divers rongeurs et oiseaux, a été découverte sur les aires d'habitation.

Des études comparatives de la faune, des sols d'habitat et de l'industrie lithique de ce site avec ceux d'autres gisements européens comme Vertesszöllös (Hongrie), Cava Molinaro, Torre in Pietra (Italie), Torralba et Ambrona (Espagne) placeraient Terra Amata entre 600-550.000 ans pour la plage inférieure et 370.000 ans pour les niveaux d'habitat.

2- Stratigraphie.

Les sédiments quaternaires, d'une dizaine de mètres d'épaisseur, reposent sur un socle constitué de calcaires et marnes crétacés. Celui-ci est surmonté par des dépôts du Pliocène essentiellement constitués de sables limoneux.

Les dépôts du Pléistocène moyen ancien peuvent être subdivisés en quatre ensembles dont les trois premiers (A, B et C1) débutent chacun par une plage marine transgressive recouverte par des sédiments continentaux. Ces trois plages sont postérieures à la ligne de rivage de 26 mètres (Mindel) et antérieures à celle de 23 mètres (Mindel-Riss). Le cycle C2 qui ne commence pas par une plage marine transgressive, est formé par des limons argilo-calcaires.

Un sol de 2.50 mètres d'épaisseur constitue les dépôts du Pléistocène moyen moyen (Mindel-Riss).

Quelques dépôts appartenant au Riss et au Riss-Würm sont présents dans la zone Sud et Sud-Est de la coupe.

Enfin, une épaisse couche de colluvions récentes (environ 3 mètres) repose en discordance sur les dépôts quaternaires (figure VII-1).

3- Datation de quartz par la méthode ESR.

La datation de grains de quartz par la méthode de la thermoluminescence a été considérablement développée ces dernières années. Cependant, l'application de cette technique s'est limitée aux échantillons relativement jeunes.

Pour le cas de sites du Pléistocène moyen, le choix de l'utilisation de la méthode ESR s'explique par le fait qu'elle permet d'identifier différents centres-pièges parmi lesquels on peut choisir un ou plusieurs centres de vie moyenne assez longue

3-1- Echantillon et spectres étudiés.

Des grains de quartz sont extraits d'un sable marin (échantillon n°3155). Cet échantillon a été prélevé dans l'ensemble C1a qui est formé de dépôts marins littoraux. Ce cycle correspond à une transgression marine qui a taillé une grande surface d'abrasion, située entre 24.25 mètres et 26.55 mètres d'altitude. L'échantillon n°3155 appartient à la coupe XVII (prélèvement n°4) qui a elle-même été effectuée dans un cordon littoral (figure VII-2).

A l'endroit du prélèvement, le sable est constitué d'environ 60% de quartz, 25% de feldspaths, 8 à 10% de gres-quartzites, les grains altérés et divers étant très peu importants (Abdessadok, 1985).

Le diamètre des grains de quartz utilisés après séparation (voir paragraphe I-3), est compris entre 40 et 160 μm .

Dans le cas de cet échantillon, le centre aluminium s'est avéré le plus stable (comme pour le sédiment solien n°43 de l'Araço). La dose équivalente a par conséquent été mesurée à partir

5

H

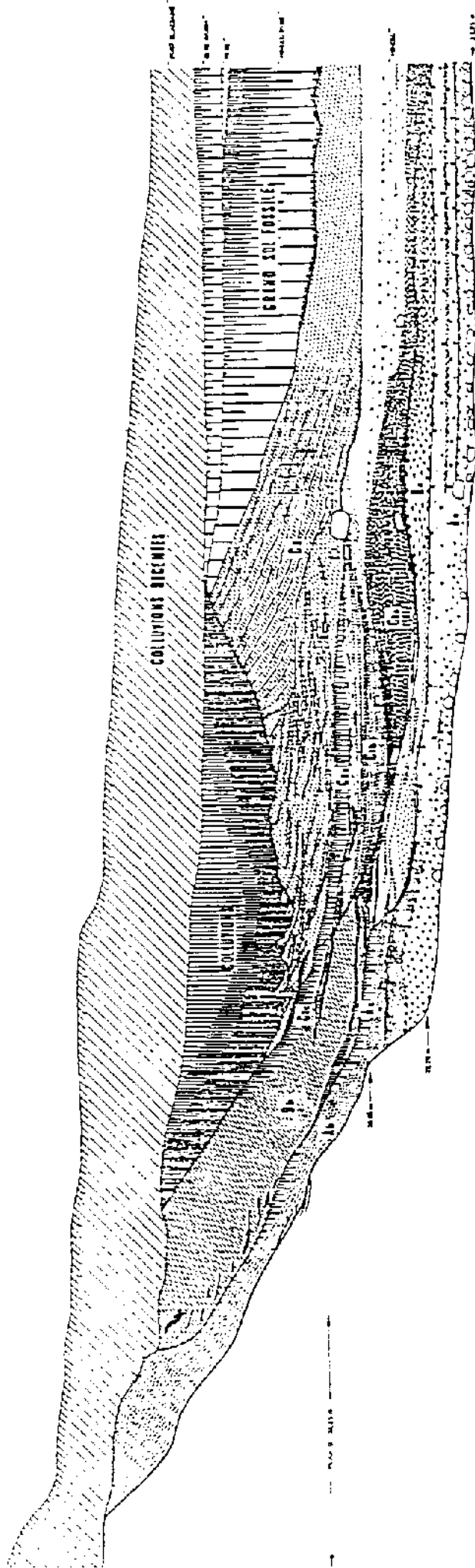


Figure VII -1 Stratigraphie du site de Terra Amata

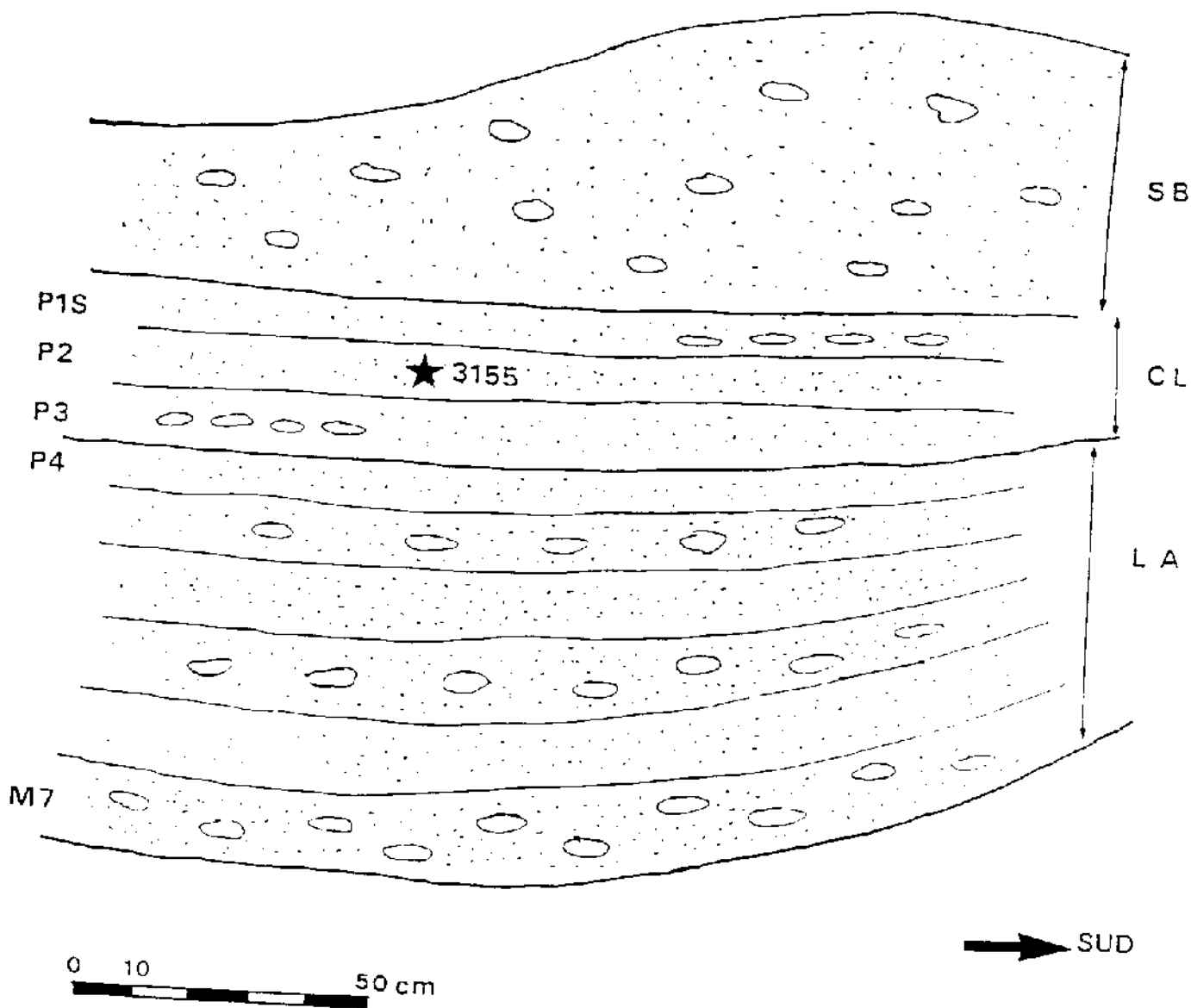


Figure VII -2: Schéma stratigraphique de l'ensemble Cia (Terra Amata)

- LA = sables limono-argileux
- CL = cordon littoral
- SB = sables blancs

du centre Al. La figure VII-3 montre un de ces centres mesurés dans un échantillon naturel et un mesuré dans un échantillon irradié (1450 Krad). La hauteur du signal est mesurée depuis le sommet du pic n°1 jusqu'à la base du pic n°16.

Des courbes de croissance ont été tracées pour chaque ligne hyperfine qui compose le centre aluminium (Yokoyama et al, 1985). Les courbes obtenues sont toutes parallèles entre elles, à l'exception de celles tracées à partir des pics n°9 et 10 qui sont perturbées par d'autres signaux (probablement des signaux de Fe^{+++}). Cette étude témoigne de la pureté des spectres obtenus.

3-2- Dose équivalente, dose annuelle et âges obtenus.

Le principe de datation est identique pour les sédiments éoliens et les sables marins. En effet, les sables, avant de se déposer, sont longuement remués par la mer et en même temps exposés au soleil.

L'intensité du signal résiduel est calculée à partir de grains de quartz extraits de sables de plages actuelles près de Terra Amata; cet échantillon est considéré comme étant "d'âge zéro". L'intensité du signal du centre Al de cet échantillon correspond à $60 \pm 5\%$ de l'intensité de l'échantillon naturel n°3155 et à 18% de l'intensité de saturation.

La figure VII-4 indique que la courbe de croissance du centre Al, en fonction de l'irradiation gamma, est légèrement saturée à partir 1500 Krad. La dose équivalente est déterminée par l'équation (4)

Les valeurs de doses équivalentes de 171 ± 9 et 179 ± 10 Krad sont obtenues respectivement une semaine et sept mois après l'irradiation gamma des échantillons. Aucun "fading" anomal significatif (diminution du signal) est à noter après cette irradiation.

La dose résiduelle DoE est également calculée par l'équation (4) à partir de l'intensité du signal "d'âge zéro". Une dose de 104 Krad ($\pm 10\%$) est obtenue.

Une paléodose Pd de 75 ± 15 Krad est obtenue en retranchant DoE à DE.

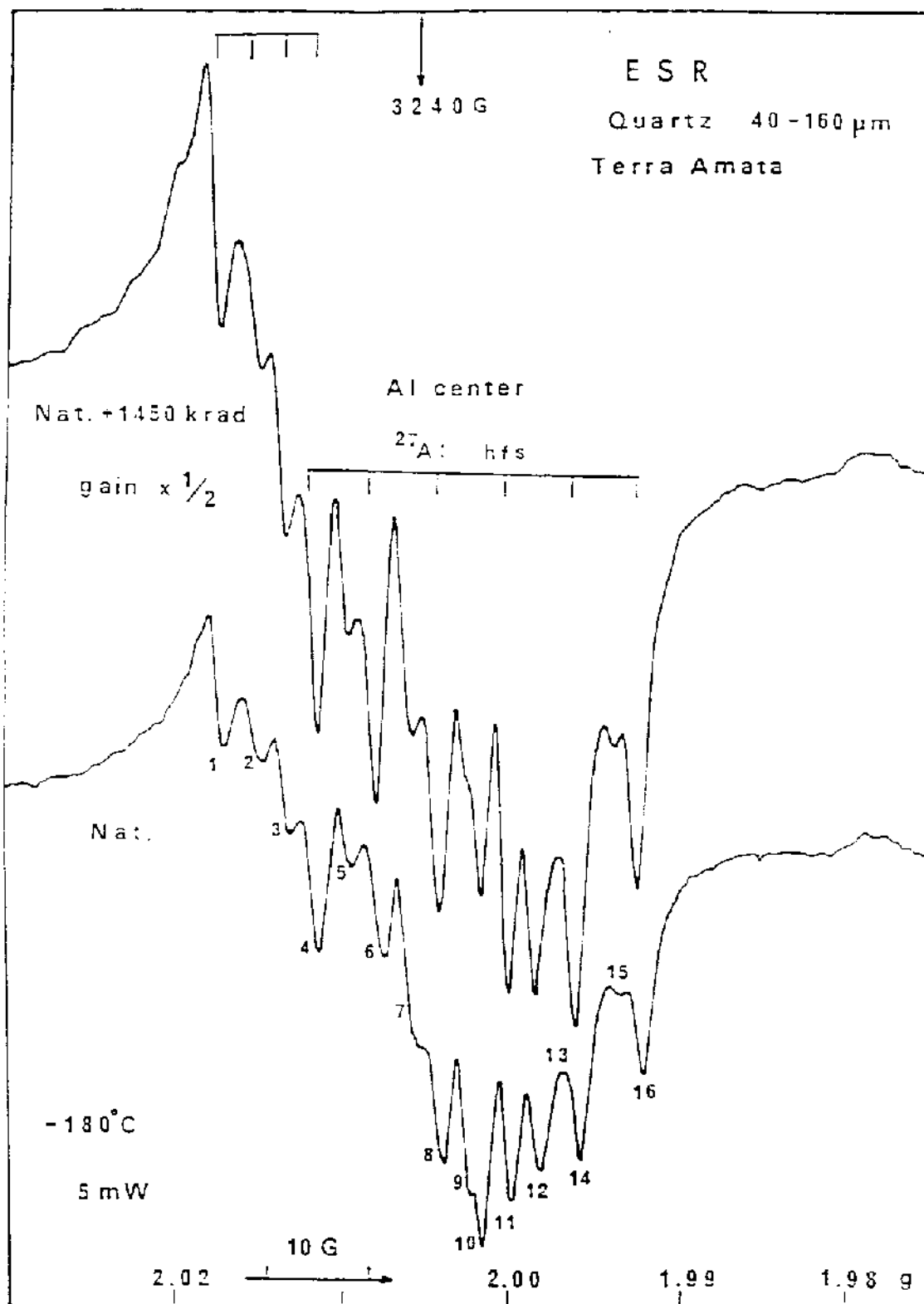


Figure VII -3 Spectres ESR de centres Al de quartz (naturel et irradié) de Terra Amata

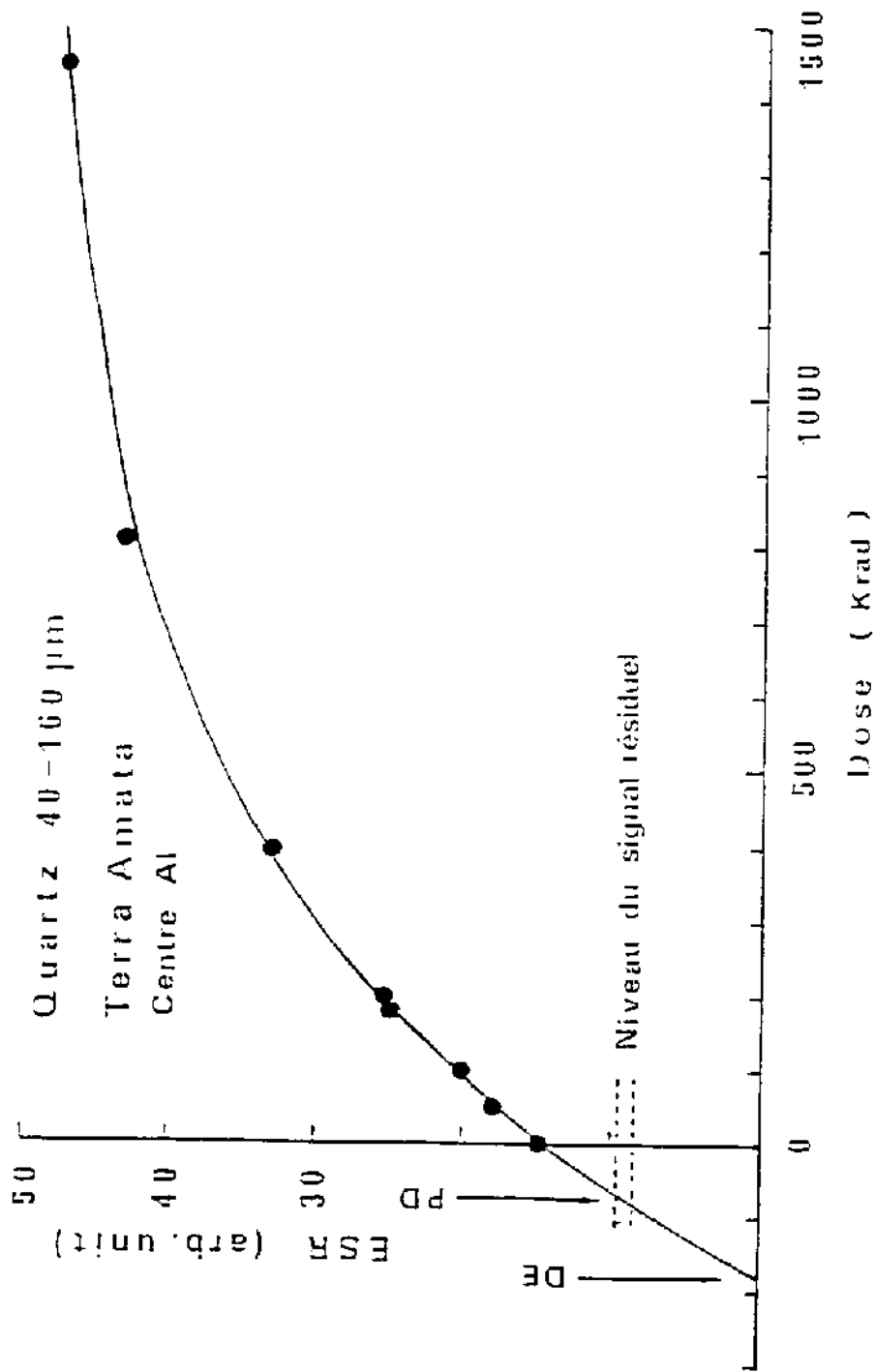


Figure VII -4 Courbe de croissance de centre Al, en fonction de l'irradiation gamma (Terra Amata)

Les activités de U, Ra, Rn, Th et K de l'échantillon n°3155 sont déterminées par spectrométrie gamma (tableau VII-1). On obtient une dose annuelle de 197 ± 14 mrad/an.

Un âge de 380.000 ± 80.000 ans est obtenu pour l'échantillon n°3155 (tableau VII-2).

4- Conclusion.

Chronologiquement, le cordon littoral, dans lequel l'échantillon n°3155 a été prélevé, appartient à l'ensemble Mindélien C1a. Ce dernier correspond à la phase climatique tempérée de Shackleton 11 qui daterait de 450.000-380.000 ans.

Comme nous l'avons indiqué précédemment, les études comparatives de la faune de Terra Amata avec celles d'autres gisements européens donneraient un âge de 370.000 ans aux niveaux d'habitat (qui appartiennent à l'ensemble C1).

L'âge obtenu sur l'échantillon n°3155, par la méthode ESR, est en bon accord avec toutes ces données.

Wintle et Aitken (1977) ont daté, par thermoluminescence, deux silex brûlés issus de l'ensemble C1a. Ils ont obtenu un âge de 230.000 ± 40.000 ans. La différence d'âge entre ces deux techniques n'est pas encore expliquée dans la mesure où ces datations sont en fait des tentatives de datations. En ce qui concerne la méthode ESR, c'est la première fois qu'elle est appliquée à des grains de quartz.

Terra Amata n°3155	
Ensemble C1a	
Activité des nuclides	
U-238 (dpm/g)	0.77 ± 0.09
Ra-226 (dpm/g)	1.10 ± 0.20
Rn-222 (dpm/g)	0.82 ± 0.03
Th-232 (dpm/g)	0.74 ± 0.03
K40 (%)	1.22 ± 0.03
Dose (mrad/an)	
alpha	15 ± 12
bêta	120 ± 6
gamma	56 ± 4
cosmique	6 ± 1
totale	197 ± 14

TABLEAU VII-1. dose annuelle des quartz extraits du sable marin n°3155 de l'ensemble C1a (Terra Amata).

Terra Amata n°3155	
ensemble C1a	
Paléodose (Krad)	75 ± 15
Dose annuelle (mrad/an)	197 ± 14
Age (10 ³ ans)	380 ± 80

TABLEAU VII-2: tableau récapitulatif des résultats obtenus.

CHAPITRE VIII: LA GROTTTE DU LAZARET (PLAGE DE VILLA MARCELLA)

1- Introduction

La grotte du Lazaret est située à l'est du port de la ville de Nice (Alpes Maritimes). Des restes humains, dont un pariétal d'enfant, furent découverts dans les années soixante. Les fouilles entreprises depuis 1962, sous la direction du Professeur Henry de Lumley, ont révélé l'emplacement d'une cabane dans les dépôts attribués à la fin du Riss (Lumley de H., 1969).

Le remplissage de ce gisement atteint huit mètres d'épaisseur. Il peut être subdivisé en quatre sous-ensembles (Lumley de H., 1961).

- Les niveaux marins quaternaires à la base.

Ils sont constitués de galets et de sables et présentent une structure litée.

- Les niveaux continentaux.

Ils reposent directement sur les niveaux marins sous-jacents. Ils représentent l'essentiel du remplissage (5.50 mètres d'épaisseur).

- Sol d'altération et concrétionnement.

Au cours d'une période de réchauffement climatique, un épais plancher stalagmitique se met en place et recouvre les sédiments dans la partie centrale et au fond de la grotte.

- Les coulées de solifluxion et la brèche de fermeture.

D'importantes masses de solifluxion, provenant des pentes du Mont Boron, colmatent l'entrée de la grotte.

Des périodes de réchauffement concrétionnent et consolident la brèche de fermeture.

La figure VIII-1 représente la stratigraphie de la grotte et la position du plancher stalagmitique de l'ensemble E.

En Décembre 1985, trois carottages, à l'entrée, au milieu et dans le fond de la grotte, ont été effectués dans le but de mieux

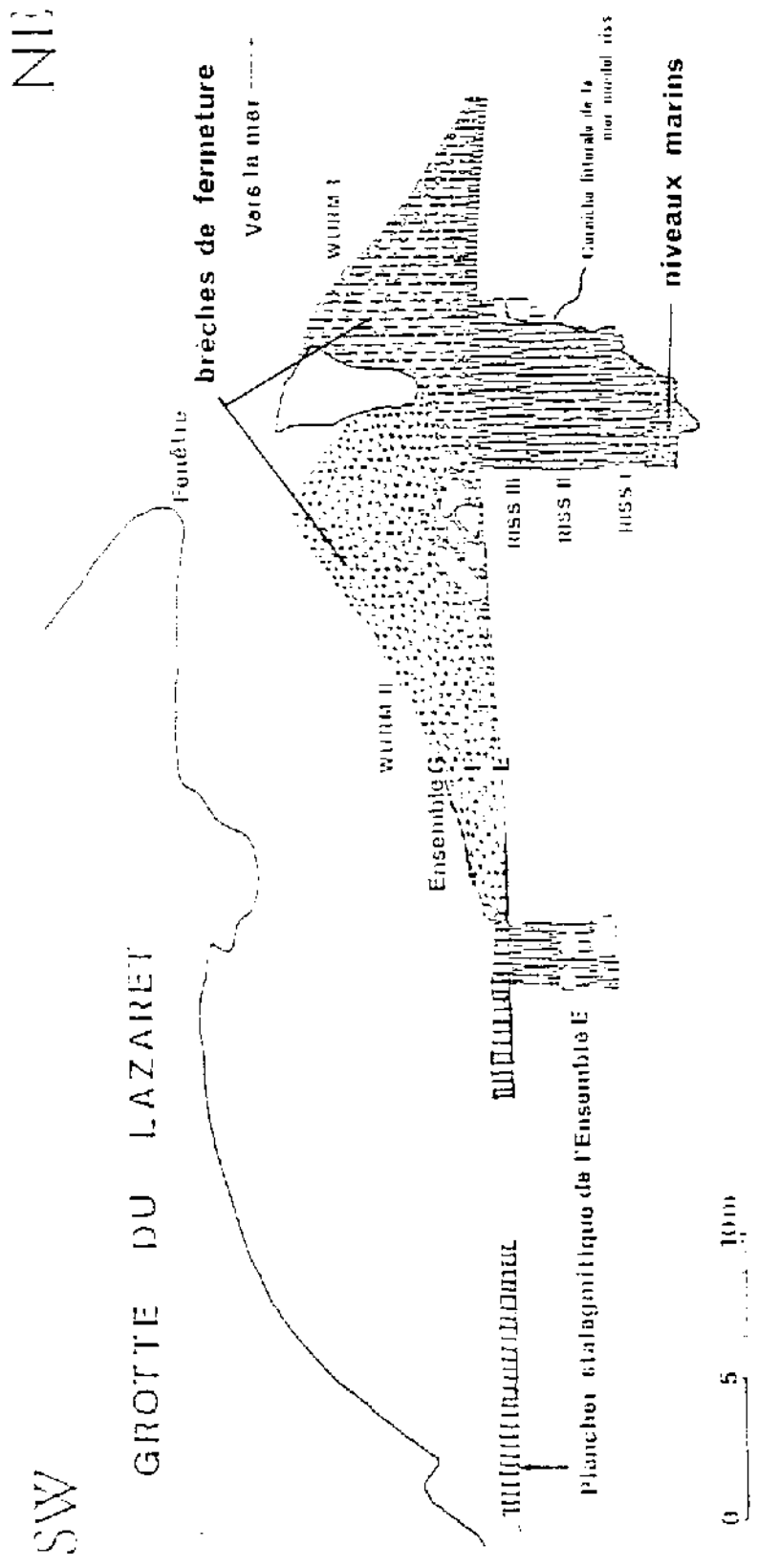


Figure VIII-1 Stratigraphie de la grotte du Lazaret et position du plancher stalagmitique de l'ensemble E

comprendre la stratigraphie. Des études sédimentologiques et palynologiques sont en cours.

D'autres carottages prévus depuis l'entrée de la grotte en allant vers la mer, permettront de retrouver le niveau de la mer tyrrhénienne.

La plage de Villa Marcella est située en contrebas de la grotte du Lazaret (figure VIII-2).

Il s'agit, dans cette étude, de relier l'âge de cette plage à la stratigraphie de la grotte du Lazaret

2- Datation d'une coquille marine par ESR.

L'échantillon étudié (As-r) est une coquille marine (*Astraea rugosa alpha*). C'est une faune banale caractérisant une mer assez chaude.

La dose équivalente est calculée pour le signal h3. Le signal obtenu pour LR est très petit. De plus, il est pratiquement entièrement masqué par une grande raie qui correspond à h2.

Bien que la ligne de base soit parfaitement horizontale, la mesure de la hauteur du signal LR s'avère trop délicate pour faire une détermination correcte de la dose équivalente.

La dose équivalente obtenue pour h3 est égale à 7.8 ± 0.6 Krad.

La dose annuelle est déterminée en laboratoire par spectrométrie gamma non destructive utilisant un détecteur de germanium à haute pureté (GeHP).

La dose annuelle ainsi calculée est de 67.6 mrad/an (Tableau VIII-1).

L'âge de l'échantillon As-r est de 115.000 ± 16.000 ans. Le tableau VIII-2 rassemble ces résultats.

3- Conclusion

Le plancher stalagmatique de l'ensemble E a été daté par la méthode U-Th (Shen, 1985). Six mesures ont permis à l'auteur de conclure que ce plancher s'est formé entre 61.000 et 100.000 ans.

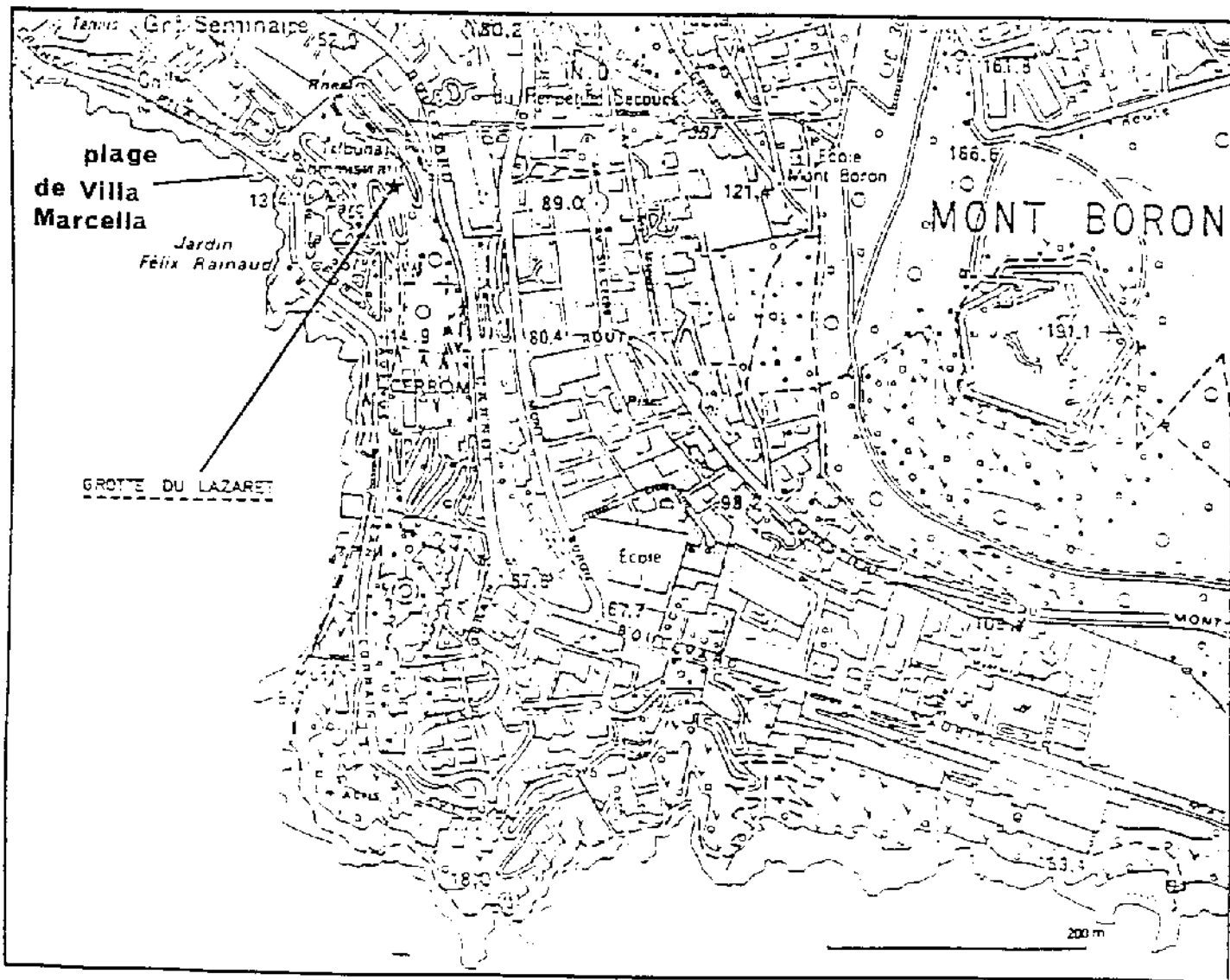


Figure VIII-2 Situation de la grotte du Lazaret dans la ville de Nice (IGN 1/5 000) par rapport à la place de Villa Marcella.

Echantillon As-r	
Activité	
U (dpm/g)	1.00
Dose (mrad/an)	
alpha	28.2
bêta	9.7

Sédiment entourant As-r	
Activité	
U-238 (dpm/g)	0.74 ± 0.05
Ra-226 (dpm/g)	0.56 ± 0.7
Rn-222 (dpm/g)	0.66 ± 0.02
Th-228 (dpm/g)	0.27 ± 0.01
K-40 (%)	0.14 ± 0.01
Dose (mrad/an)	
gamma	18.9
cosmique	10.8
TOTALE	67.6 ± 6.8

TABLEAU VIII-1. Activité et dose annuelle de l'échantillon As-r
(plage de Villa Marcella, Lazaret).

	Echantillon As-r
Dose equivalente (Krad)	7.8 ± 0.6
Dose annuelle (mrad/an)	67.6 ± 6.8
Age (10 ³ ans)	115 ± 16

TABLEAU VIII-2. Tableau récapitulatif des résultats obtenus sur l'échantillon As-r (plage de Villa Marcella, Lazaret)

La date de 115.000 ans obtenue sur l'échantillon As-r, compte tenu de l'erreur (un sigma), est contemporaine des datations calculées par la technique précédemment citée.

D'autre part, la plage de Villa Marcella est contemporaine de la transgression tyrrhénienne. En effet, des espèces chaudes telles que *Strombus bubonius* qui caractérisent cette mer ont été retrouvées sur cette plage.

A la lecture de ces résultats, il est logique de penser que le plancher stalagmitique de l'ensemble E s'est formé au cours de l'interglaciaire Riss-Würm.

CHAPITRE IX: LA GROTTTE DU PRINCE

La datation par ESR d'échantillons stalagmitiques prélevés dans la grotte du Prince, fait l'objet d'un chapitre précédent (Chapitre IV), dans lequel la présentation et la stratigraphie du site sont exposées.

L'échantillon étudié (SP-82-2) dans le présent chapitre est issu d'une couche marine, M3 (cf. figure IV-1).

La couche marine étudiée est située au-dessous de la brèche rissienne Bri et attribuée au Mindel-Riss (Barral et al, 1976).

1- Datation de l'échantillon SP-82-2 par ESR.

Le calcul de la dose équivalente est fait pour la raie LR. La mesure de la hauteur du signal est difficile en ce sens que l'échantillon SP-82-2 contient beaucoup de manganèse. Nous avons par conséquent procédé à une correction de la hauteur du signal LR en fonction de la hauteur du signal de manganèse. Cette opération nous permet de déterminer avec plus de précision la ligne de base à partir de laquelle nous effectuons nos mesures.

La dose équivalente obtenue par cette méthode est de 13.0 ± 1.4 Krad.

Remarque: la mesure de la dose équivalente pour la raie h₃ n'a pas été possible car le signal obtenu ne le permettait pas. En effet, une très forte proportion de manganèse perturbe ce signal et empêche de faire une mesure correcte.

La dose interne est calculée à partir des activités, en U-238, Th-232 et de leurs descendants respectifs et K-40, de l'échantillon SP-82-2. Une valeur de 48.40 mrad/an est obtenue (tableau IX-1).

L'activité de U-238 est déterminée à partir de la valeur du Th-230 moyen (cf. Chapitre IV)

SP-82-2

couche marine

Activité

U-238 (dpm/g)	0.32
Th-230 (dpm/g)	0.43
Th-232 (dpm/g)	0.08
K-40 (%)	0.05

Dose (mrad/an)

alpha	35.70
bêta	12.70
interne	48.40

TABLEAU IX-1: activité et dose interne de l'échantillon SP-82-2
issu de la couche marine.

La dose externe est déterminée par des dosimètres placés in-situ. Elle est égale à 15.20 mrad/an.
Les valeurs de U,Th et K sont précisées dans le tableau IX-2.

L'âge obtenu pour SP-82-2 est de 204.000 ± 28.000 ans.
Le tableau IX-3 récapitule les principaux résultats obtenus.

2- Conclusions.

Comme nous l'avons précisé auparavant, de bonnes raisons conduisent à penser que la mer tyrrhénienne est responsable de l'encoche littorale de 23 mètres. La principale est que la brèche Br1, creusée à ce niveau, contient une industrie acheuléenne, comprenant notamment des choppers, chopping-tools et bifaces. Cette brèche est rissienne.

La couche marine se trouve au-dessous de la brèche Br1 et la datation par ESR obtenue sur SP-82-2 laisse supposer que cette couche a pu se former au cours de l'interstade II-III du Riss

SP-82-2

couches environnantes

Activité

U-238 (dpm/g) 0.59 ± 0.05

Th-232 (dpm/g) 0.08 ± 0.02

K-40 (dpm/g) 0.15 ± 0.01

Dose (mrad/an)

gamma 14.20 ± 0.8

cosmique 1.00 ± 0.2

externe 15.20 ± 0.8

TABLEAU IX-2 activité et dose externe des couches qui entourent SP-82-2.

	DE (Krad)	Da (mrad/an)	Age (10^3 ans)
SP-82-2	13.0 ± 1.4	63.60 ± 6.4	204 ± 28

TABLEAU IX-3: dose équivalente (DE), dose annuelle (Da) et âge de SP-82-2.

C/ ETUDE COMPARATIVE PAR LES METHODES ESR ET U-Th.

Ce travail est réalisé sur deux sites.

- L'aven d'Orqnac III.

- La grotte d'Aldène.

CHAPITRE X: L'AVEN D'ORGNAC III

1- Introduction.

Le gisement d'Orgnac III est situé sur la commune d'Orgnac en Ardèche (Languedoc rhodanien). C'est une cavité elliptique de 600 m² comblée par des sédiments jusqu'au niveau du lapiaz.

L'aven d'Orgnac abritait des chasseurs acheuléens au cours de la glaciation du Riss (300.000 à 120.000 ans). Des bifaces et choppers, de grosses esquilles osseuses ainsi que des traces de foyers ont été retrouvés sur des sols d'habitat qui s'étendent sur une dizaine de mètres carrés.

Les restes humains sont très rares. En effet, seules quelques dents de lait et une canine supérieure droite appartenant à un adulte ont été retrouvées. Les molaires de lait ont une grande ressemblance avec celles des enfants de l'Arago.

2- Stratigraphie

La figure X-1 indique le plan de situation des différentes surfaces de décapage, en 1971. Une coupe schématique du remplissage, ainsi que la position de l'échantillon étudié, sont montrées dans la figure X-2.

A l'issue de fouilles dirigées par Jean Combier, trois cycles sédimentaires distincts sont identifiés sur une épaisseur de 7 mètres:

Les sédiments du cycle le plus ancien (Ensemble D), sont d'une épaisseur d'environ 3 mètres. Ils sont formés de cailloutis à matrice sableuse et reposent sur le substratum. Cet ensemble ne contient pas d'industrie.

Le deuxième cycle est constitué de sédiments assez homogènes (Ensembles C/D et C) qui se sont accumulés sur une hauteur de 4 mètres. ce dépôt est d'origine essentiellement cryoclastique

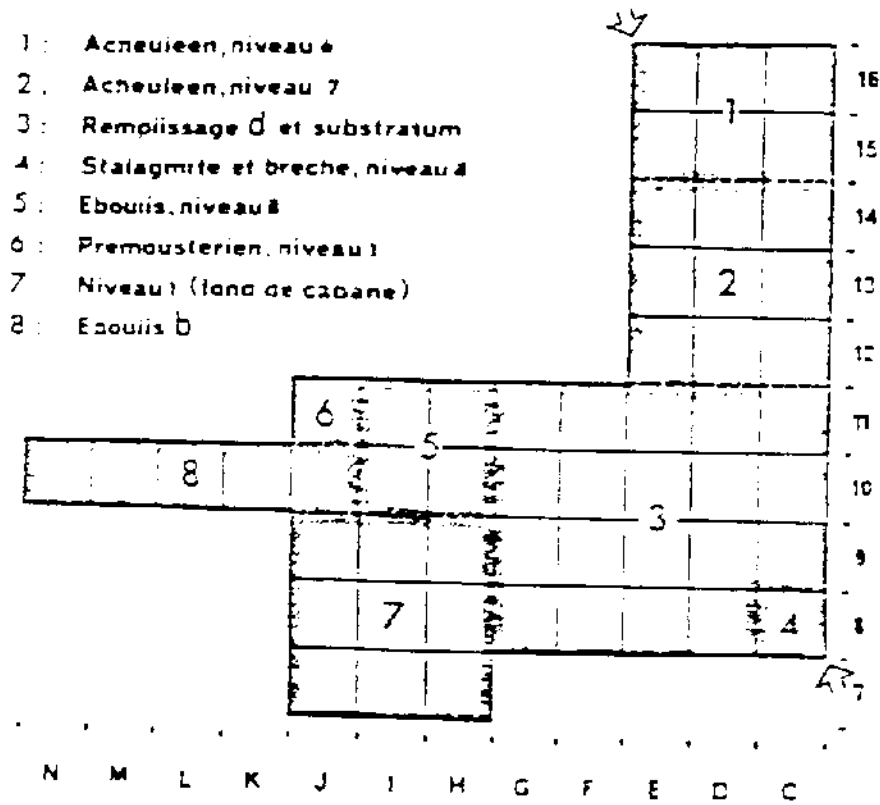


Figure X -1 Plan de situation des différentes surfaces de décapage, en 1971, du site d'Ornac III

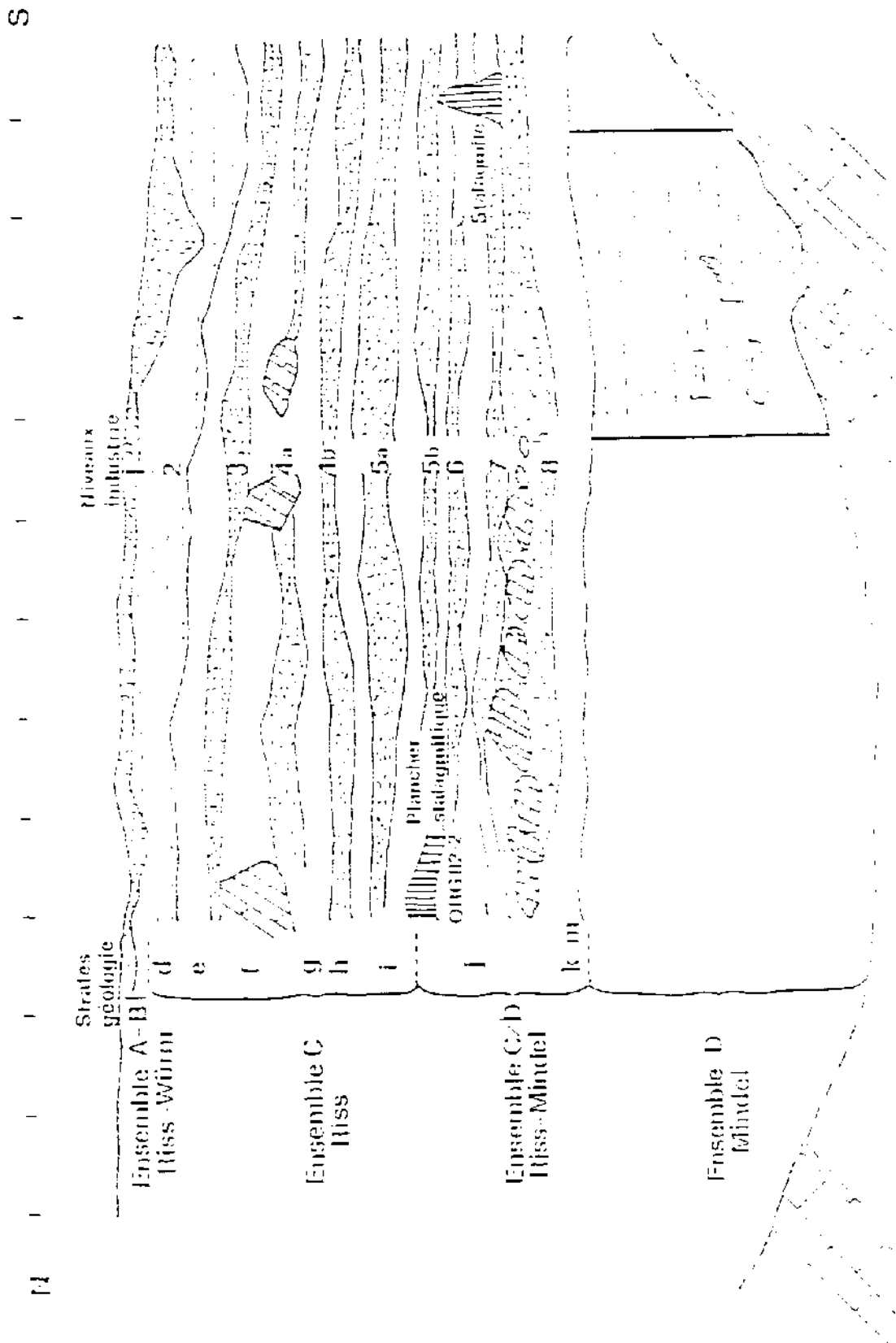


Figure X -2 Coupe schematique de la stratigraphie du site d'Orgnac III

(cailloutis cryoclastiques et gelivés). Les études sédimentologiques et faunistiques laissent penser que ce dépôt appartient au Riss. En outre, les niveaux acheuléens qu'il renferme, permettent de suivre de façon exceptionnelle l'évolution de l'Acheuléen moyen et final.

Un plancher stalagmitique surmonte le niveau 6. L'échantillon étudié (ORG-82-2) a été prélevé à la base de ce plancher.

Des argiles d'altération constituent le troisième cycle (Ensembles A et B). La formation de ce stade s'est effectuée au cours du Riss-Würm. Il contient une industrie pré-moustérienne.

3- Datation de calcite par la méthode ESR.

La dose équivalente de ORG-82-2 est déterminée pour h₃ et LR. Les résultats obtenus pour ces deux types de pièces sont respectivement de 5.0 ± 0.7 et 11.0 ± 0.4 Krad.

Si l'on tient compte de l'âge supposé de l'échantillon (par sa position stratigraphique), et de la durée de vie moyenne de h₃, ces résultats paraissent cohérents. En effet, la valeur de dose équivalente obtenue pour h₃ donne l'âge correspondant à la durée de vie de h₃ et non l'âge de l'échantillon.

La dose annuelle est calculée à partir des résultats obtenus par spectrométrie alpha (Shen, 1985).

ORG-82-2 se caractérise par sa faible teneur en uranium (0.097 ppm d'U-238). La dose interne est de 15.60 mrad/an.

La dose externe est estimée à 20 mrad/an ce qui donne une dose totale annuelle de 35.60 mrad/an.

Pour ORG-82-2, l'âge obtenu par la méthode ESR, est de 309.000 ± 34.000 ans.

Le tableau X-1 récapitule toutes les données mentionnées ci-dessus.

4- Conclusions.

Quatre échantillons stalagmitiques ont fait l'objet d'une datation par la méthode du déséquilibre des familles de l'uranium (Shen, 1985).

ORG-82-2	
Teneur en U (ppm)	0.097
Dose équivalente (Krad)	
h3	5.0 ± 0.7
LR	11.0 ± 0.4

Dose annuelle (mrad/an)	
alpha	6.20
bêta	<u>9.40</u>
interne	15.60
externe	20.00
TOTALE	35.60 ± 3.6

Age (10^3 ans) par LR	309 ± 34

TABLEAU X-1: Dose équivalente , dose annuelle et âge de l'échantillon stalagmitique (ORG-82-2).

ORG-82-2 a été daté, par cette méthode, à 356.000 ans
+266.000
-76.000

La moyenne des quatre rapports Th-230/U-234 est de 0.963 ± 0.016 . A partir de cette moyenne, l'auteur obtient un âge de 339.000 ans et pense que cette valeur représente bien l'âge réel de ces formations stalagmitiques.

Les âges obtenus sur ORG-82-2 par ces deux méthodes (ESR et U-Th) sont en bon accord compte tenu de l'erreur (un sigma).

Le plancher stalagmitique s'est donc formé au cours de l'interglaciaire Mindel-Riss.

CHAPITRE XI: LA GROTTTE D'ALDENE

1- Présentation et stratigraphie du site.

La grotte d'Aldène est située sur la commune de Cesseroas dans l'Hérault, à environ 50 Km au nord-ouest de Narbonne (figure XI-1). Elle s'ouvre au sud de la Montagne Noire, dans une falaise constituée à la base par des calcaires nummulitiques du Lutétien inférieur.

Le remplissage de cette grotte a été presque entièrement vidé par une exploitation de phosphates. Quelques témoins de ce remplissage ont cependant subsisté. La stratigraphie a été étudiée sur le témoin principal, T1, par Baissas (1972).

Le remplissage qui s'étend du Mindel-Riss au Riss-Würm, comprend trois ensembles stratigraphiques:

- L'ensemble inférieur (couches M à I) est constitué par une succession de limons argileux, sables quartzeux et petits galets. Au sommet, quelques éboulis sont surmontés par un plancher stalagmitique (I1).

L'association de faune contenue dans cet ensemble le rattache au début du Mindel-Riss.

- L'ensemble moyen (couches H à F) est principalement formé par des limons argileux et cailloutis.

- L'ensemble supérieur (couches E à A) est également constitué par des limons argileux puis sableux et par des cailloutis. Le plancher stalagmitique A1 surmonte ces couches.

Ces deux ensembles sont rattachés au Riss, tandis que le plancher A1 se serait formé pendant l'interglaciaire Riss-Würm.

Remarque: un quatrième ensemble (couches 4 à 1c) a pu être étudié dans le témoin T2. Ces couches sont rattachées au Würm.

La figure XI-2 illustre la stratigraphie de cette grotte.

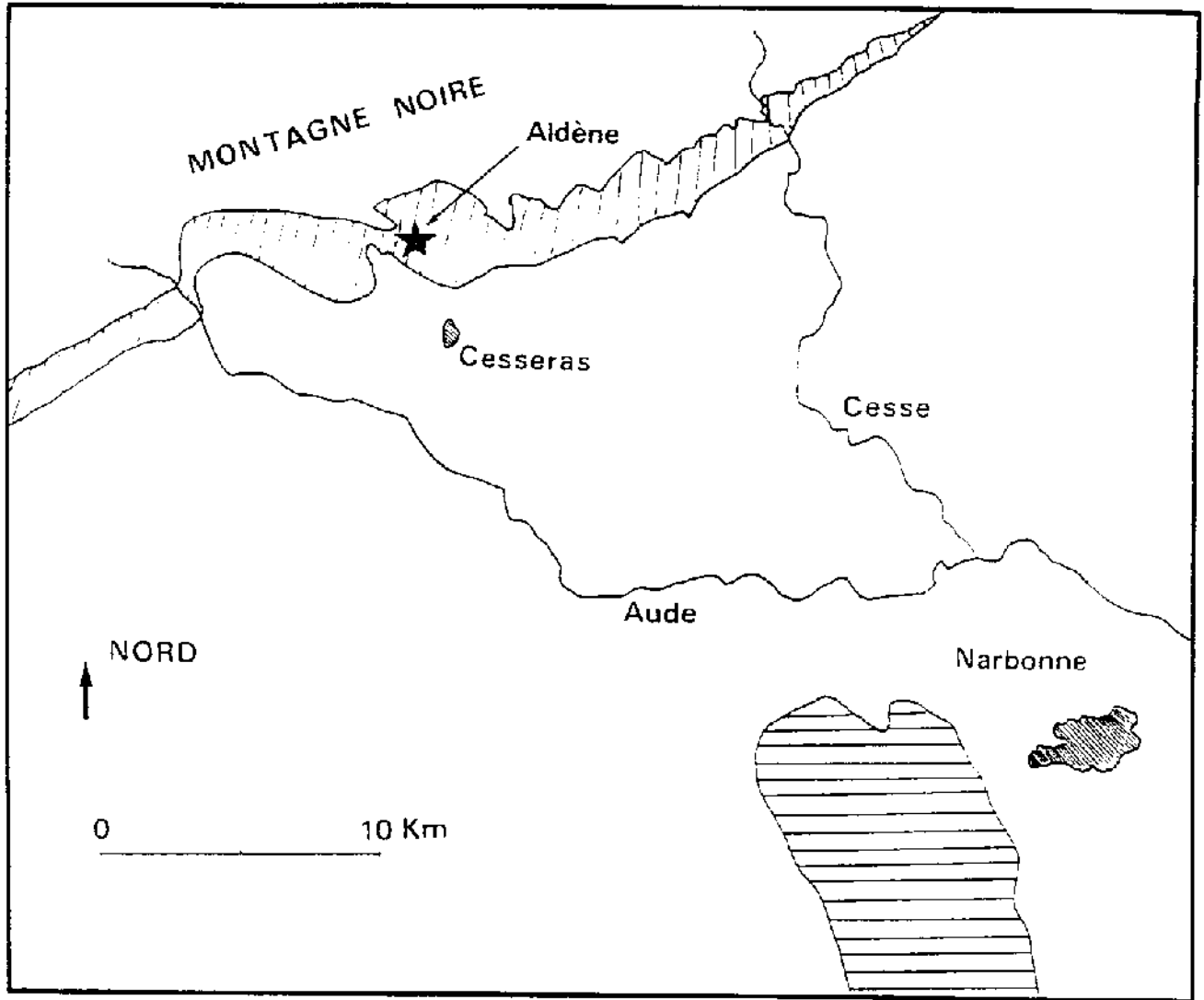


Figure XI -1 Situation géographique de la grotte d'Aldène

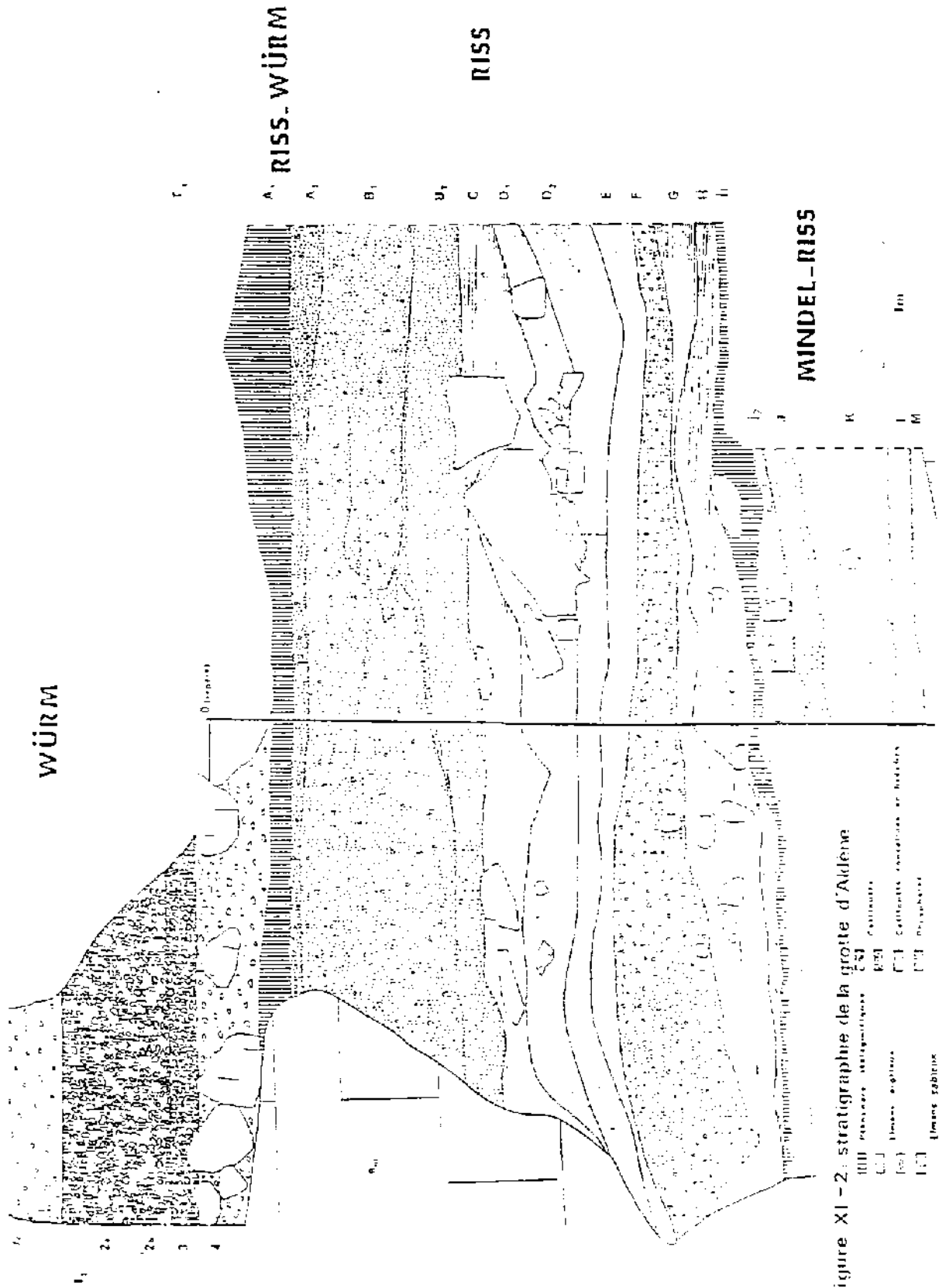


Figure XI - 2 : stratigraphie de la grotte d'Audoubert

III	massifs stratifiés	(S)	Calcaire
(C)	limons argileux	(R)	Calcaire
(M)	limons argileux	(L)	Calcaire stratifiés et massifs
(I)	limons sabineux	(M)	Calcaire

2- Datation par ESR d'un échantillon stalagmitique.

L' échantillon étudié (A1-A1) a été prélevé dans le plancher stalagmitique A1. La calcite est pure et bien cristallisée.

La dose équivalente est déterminée pour les raies h3 et LR. Les valeurs obtenues sont respectivement de 18.4 ± 2.5 et 17.8 ± 1.3 Krad.

Le signal de LR est associé au signal de h2. Ce dernier qui augmente avec l'irradiation γ , gêne considérablement la mesure de la hauteur du signal LR. Dans les conditions de mesure de LR, c'est à dire à faible puissance ($P = 0.1$ mW) et avec une modulation importante ($M = 5G$), le signal h2 ne s'observe pas dans l'échantillon naturel. Par contre, il est devenu très important dans l'échantillon irradié à 20 Krad.

De même pour h3, le signal de h2 perturbe la partie négative de h3. Nous avons par conséquent calculé la dose équivalente de h3 en mesurant la partie positive (depuis la ligne de base jusqu'au sommet du pic h3).

La dose interne, calculée en laboratoire, est de 61.6 mrad/an.

La dose externe, de 46.0 mrad/an, a été enregistrée par des dosimètres placés in situ par Hennig (1982).

Une dose totale de 107.6 mrad/an est ainsi obtenue.

Les doses équivalentes calculées pour h3 ou LR donnent deux âges très voisins :

- âge obtenu avec h3: 171.000 ± 29.000 ans

- âge obtenu avec LR: 165.000 ± 18.000 ans

Le tableau XI-1 récapitule les données citées ci-dessus.

3- Conclusions.

Les âges obtenus avec les signaux h3 et LR sont en bon accord.

Hennig (1982) a daté plusieurs échantillons stalaqmitiques provenant de cette grotte, par la méthode du déséquilibre Th-230/U-234. Deux de ces échantillons sont issus du plancher A (témoin T4 qui est dans le prolongement de T1); Pour la partie basale (échantillon n°14), il obtient un âge de 139.000 ± 14.000 ans et qui, selon S. Simone (1982), est compatible avec les études stratigraphiques et sédimentologiques.

L'échantillon n°13, extrait de la partie supérieure, donne un âge

+82.000

de 267.000

-44.000

ans. Ce vieillissement considérable est, selon

S. Simone, imputable à des migrations d'uranium hors des concrétions qui ont été provoquées par des lessivages et concrétionnements successifs.

Compte tenu de l'erreur (un sigma), les âges obtenus par la méthode ESR, sont en accord avec l'âge obtenu par Hennig sur l'échantillon n°14.

Ces données confirment la stratigraphie établie pour cette grotte.

Echantillon AL-A1	
Teneur en uranium(ppm)	0.29
Dose (mrad/an)	
alpha	56.50
bêta	5.10

interne	61.60
externe	46.00
TOTALE	107.60

Age (10^3 ans)	
h3	171 ± 29
LR	165 ± 18

TABLEAU XI-1: Dose annuelle et âges obtenus pour l'échantillon stalagmitique (AL-A1) de la grotte d'Aldène.

CONCLUSION

Le but de ce travail est de dater des sites appartenant au Pléistocène moyen et supérieur. Les techniques les plus utilisées pour dater ces gisements sont la méthode du déséquilibre des familles de l'uranium et la thermoluminescence. Or, la méthode U-Th ne permet pas de dater commodément des sites au-delà de 200.000 ans et elle exige des systèmes clos. Quant à la TL, elle est limitée à des âges comparables à la vie moyenne du pic à 280°C exploité dans cette technique et qui est environ 250.000 ans. J'ai donc choisi d'utiliser la méthode de la résonance de spin électronique, développée depuis quelques années, qui permet de dater des sites d'âges plus anciens car elle exploite les électrons fixés sur des pièges plus profonds que ceux utilisés par la TL. D'autre part, la résolution des principales émissions de TL du quartz entre 300 et 400°C est difficile (Valladas et Valladas, 1982). Or la méthode ESR permet l'exploitation séparée de quelques centres-pièges (aluminium, titane...) que la TL ne permet pas d'identifier.

Dans le cas de la calcite, le signal h1 a une durée de vie de l'ordre de 10^8 à 10^9 ans, à 15°C (Yokoyama et al, 1985a). Ce signal correspond au pic de 350-400°C observé en TL, qui est difficilement mesurable en raison de l'existence d'une forte lumière parasite dans cet intervalle de température. De plus, l'utilisation du signal "Large Raie" (LR), à $g = 2.0040$, s'est révélée satisfaisante et en bon accord avec les résultats obtenus par h1, à l'exception des échantillons de la grotte du Prince dont le signal LR est perturbé par les raies du manganèse.

La méthode ESR recouvre pratiquement toute la période du Quaternaire. Elle s'applique à plusieurs minéraux. Ainsi nous avons daté la calcite appartenant à divers planchers stalagmitiques, des coquilles marines, des quartz extraits de sédiments éoliens et de sables marins et des sédiments cuits par des laves.

A la caune de l'Araço, nous avons daté des quartz éoliens extraits de l'ensemble III situés stratigraphiquement au-dessus du sol G dans lequel le crâne de l'homme de Tautavel a été découvert. L'âge obtenu pour ces quartz est 430.000 ± 85.000 ans.

Parallèlement, nous avons daté des planchers stalagmitiques de formation plus récente appartenant à l'ensemble IV et trouvé un âge compris entre 157.000 et 224.000 ans.

Quant aux datations effectuées sur la plage de Villa Marcella et sur la grotte du Prince dont l'âge n'excède pas 150.000 ans, il est plus facile d'utiliser le signal h3.

D'autre part, par la méthode ESR, nous avons pu relier la stratigraphie des sites aux plages marines, dans la région comprise entre Nice et la frontière franco-italienne, travaillant respectivement sur des coquilles marines, des sables de plage et des couches marines.

Il est intéressant de constater que les datations par ESR obtenues sur des calcites bien cristallisées appartenant aux sites de l'Arago, Orquac et Aldène, sont en bon accord avec les résultats de la méthode du déséquilibre des familles de l'uranium.

Pour résumer, les sites acheuléens et moustériens étudiés dans ce travail ont des âges compris entre 40.000 et 1415.000 ans (tableau A). Notons enfin que l'âge de 1415.000 ans ne constitue pas une limite de la méthode. En effet, le signal d'un échantillon de Colombo n'est pas saturé à un âge de deux millions d'années. Cette expérience laisse donc entrevoir la datation d'échantillons plus anciens.

La méthode de la résonance de spin électronique apportera certainement dans un avenir proche, d'autres informations et repères pour une période de l'évolution humaine qui n'a pu être abordée jusqu'ici par d'autres techniques de datation absolue.

NOMS ECHANTILLONS	Caféito	Quarte	Comaille marine	Dose équivalente (Kcal)	Dose annuelle (mg/ad/ant)	Age (10 ³ ans)
ALDENE	Al Al			18 4 ± 2 5 (h3)	107 6 ± 10 8	171 ± 29
				17 8 ± 1 3 (LR)		165 ± 18
ARAGO	12C 16 17A			10 5 ± 1 0 (LR)	47 27 ± 4 7	224 ± 31
				12 1 ± 0 6 (LR)	75 92 ± 7 6	159 ± 19
				11 9 ± 1 2 (h3)	75 92 ± 7 6	157 ± 22
				101 ± 14 9 (Al)	234 ± 31	430 ± 85
ATAPUERCA	TGY2 TGY12 TGY3			10 9 ± 1 2 (h3)	51 76 ± 5 2	211 ± 32
				13 6 ± 1 2 (LR)	53 05 ± 5 3	256 ± 33
				10 6 ± 1 0 (LR)	47 72 ± 4 8	222 ± 31
BEAUMONT		Clat 13		32 5 ± 1 0 (Al)	486 ± 49	67 ± 7
COLCHHO	Co-C			212 ± 15 (LR)	103 7 ± 10	2 050 ± 270
FATE	F-85-2 F-85-9 F-85-10			3 1 ± 1 3 (h3)	77 2 ± 7 7	40 ± 12
				6 0 ± 0 3 (LR)	77 2 ± 7 7	78 ± 9
				6 0 ± 0 8 (LR)	77 2 ± 7 7	78 ± 13
WESCHERS		TL44		9 6 ± 0 9 (Al)	480 ± 48	20 ± 3
ORGNAC				11 0 ± 0 4 (LR)	35 6 ± 3 6	309 ± 34
PRINCE	SP-82-2 SP-82-6(2) SP-82-7(4) SP-82-8(4)			13 0 ± 1 4 (LR)	63 60 ± 6 4	204 ± 28
				4 1 ± 0 3 (h3)	31 47 ± 3 1	130 ± 16
				2 6 ± 0 8 (h3)	29 26 ± 2 9	89 ± 28
				5 0 ± 1 0 (h3)	17 88 ± 1 8	179 ± 39
TERRA ANATA		n° 3155		75 0 ± 14 7 (Al)	197 ± 14	380 ± 80
VALLONNET	SY-82-3 SY-82-6			75	53 ± 5 3	1 415 ± 198
				69	66 ± 6 6	1 045 ± 146
VILLA MARCELLA			As-1	7 8 ± 0 6 (h3)	67 0 ± 6 6	115 ± 16

Tableau A Récapitulatif de tous les résultats obtenus

REFERENCES

- ABDESSADOK S. (1985)
Etudes sedimentologiques de l'Ensemble superieur du remplissage
pleistocene moyen de la grotte du Lazaret et mineralogique de la
fraction legere de quelques formations quaternaires du Mont Boron.
These de troisieme cycle, Université P. et M. Curie, PARIS VI.
- AGUIRRE E., BASABE J.M. et TORRES T. (1976)
Los fosiles humanos de Atapuerca (Burgos): nota preliminar.
Zephyrus 26-27, 489-511.
- AITKEN M.J. (1968)
Thermoluminescent of geological materials. Mc Dougall D.J. Ed.
Academic Press Londres et New-York.
- AITKEN M.J. (1974)
Physics and Archaeology. Clarendon Press, 2nd Ed., Oxford.
- ALGER R.S. (1968)
Electron Paramagnetic Resonance: Techniques and Applications.
Interscience, New York.
- APERS D.J., DEBUYST R., DEJEHET F. et LOMBARD E. (1980)
RPE de concrections calcaires originaires de grottes belges.
Radiochemical Radioanalytical letters, 45, 427-440.
- APERS D.J., DEBUYST R., DECANNIERE P., DEJEHET F. et LOMBARD E.
(1981)
A criticism of the dating by electron paramagnetic resonance (ESR)
of the stalagmitic floors of the Caune de l'Araço at Tautavel.
In: Lumley de H. and Labeyrie J. (eds) Absolute dating and Isotope
Analysis in Prehistory: Methods and limits, 533-550. Proceedings,
Préhistoire.
- ASSENHEIM H.M. (1966)
Introduction to electron spin resonance.
Hilger and Watts, London.

- BAISSAS P. (1972)
Etude sédimentologique sommaire du remplissage de la grotte
d'Aldene (Cesseras, Hérault).
Bull. Mus. Anthrop. Préhist. Monaco n°14, 5-23
- BARRAL L. et SIMONE S. (1968)
Nouvelles fouilles à la grotte du Prince (Grimaldi, Ligurie
italienne). Découverte du Paléolithique inférieur.
Bull. Mus. Anthrop. Préhist. Monaco. n°14, 5-23.
- BARRAL L. et SIMONE S. (1976)
La grotte du Prince
Livret-guide EI de l'UISPP; sites Paléolithiques de la région de
Nice et grottes de Grimaldi. IX^e congrès. 107-122.
- BELL W. T. (1976)
The assessment of the radiation dose rate for TL dating.
Archaeometry 18, 107-111.
- BELL W. T. (1977)
TL dating: revised dose rate data.
Archaeometry 19, 99-100.
- BELL W. T. (1979)
Attenuation factors for the absorbed radiation dose in quartz
inclusions for thermoluminescence dating.
Ancient TL 8.
- BELL W. T. (1980)
Alpha dose attenuation in quartz grains for thermoluminescence
dating.
Ancient TL 12, 4-8.
- BELL W. T. et ZIMMERMAN D. W. (1978)
The effect of HF acid etching on the morphology of quartz
inclusions for TL dating.
Archaeometry 20 (1), 63-65.
- BERSOHN M. et BAIRD J. C. (1966)
An introduction to electron paramagnetic resonance.
Edition W.A. Benjamin.

- BISCHOFF J.L. et ROSENBAUER R.J. (1981)
U-series dating of bones of carbonates deposits of the Caune de
l'Arago at Tautavel.
In: Lumley de H. et Labeyrie J. (eds). Absolute dating and isotope
analysis in Prehistory : Methods and limits , 327-347. Proceedings,
pré tirage.
- BLANCHARD S.C. et CHASTEEN N.D. (1976)
Electron paramagnetic resonance spectrum of a sea shell, *Mytilus*
edulis.
Journal of Physical Chemistry, 80, 1362-1367.
- BONIFAY E. (1975)
Stratigraphie du quaternaire et âge des gisements préhistoriques de
la zone littorale des Alpes-Maritimes
Bull. Soc. Préhist. Française, tome 2. C.R.S.M n°7, 197-207.
- CHALINE J. (1971)
La microfaune du Vallonnet (A.M.) et le problème des corrélations
micro-macromammifères à la limite du Pléistocène inférieur-moyen.
Bull. Mus. Anthrop. Préhist. Monaco, 17, 65-69.
- COMBIER J. (1963)
Découverte d'un gisement acheuléen dans le Bassin du Rhône.
C.R. Acad.Sc. Paris, t.257, 201-203.
- DECANNIERE P., JOFFART T., DEBUYST R., DEJEHET F. et APERS D.
(1985)
ESR Dating: a study of humic acids incorporated in synthetic
calcite.
Nuclear Tracks, Vol.10, n°4-6, 853-863.
- DUCHESNE J., DEPIREUX J. et VAN DER KAA J.M. (1961)
Origin of free radicals in carbonaceous rocks.
Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol 23, 209-218.
- GARRISON E.G., ROWLETT R.M., COWAN D.L. et HOLROYD L.V. (1981)
ESR dating of ancient flint.
Nature, 290, 44-45.

- GIACOBINI G. et LUMLEY de M.A. (1983)
Restes humains néandertaliens de la caverna delle Fate (Finale, Ligurie italienne).
Anthropologie, Tome 87, n°1, 142-144.
- GIACOBINI G., LUMLEY de M.A., YOKOYAMA Y. et NGUYEN H.V. (1984)
Neanderthal child and adult remains from a mousterian deposit in northern Italy (caverna delle fate, Finale Ligure)
Journal of Human Evolution 13, 687-707.
- GIL E. (1986)
El hombre de Ibeas, el Pleistoceno de la Sierra de Atapuerca.
Aquirre E., Carbonell E., Fernandez J.M. (Eds). Publicaciones Junta Castilla-Leon. (sous presse).
- GIL E et SESE C (1986)
Les micromammifères du Pléistocène moyen du complexe karstique d'Atapuerca (Burgos, Espagne). Aspects biostratigraphiques.
Communication orale, 11^e RST, Clermont-Ferrand, 25-27 Mars 1986
- 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.
These Doctorat d'Etat Paris. Université P. et M. Curie.
- HENNIG G.J (1982)
Notes and comments on the Th-230/U-234 dating on speleothems samples from the grotte d'Aldene (Cessero, Hérault, France).
Bull. Mus. Anthrop. Préhist. Monaco n°26, 21-25.
- HENNIG G.J., HERR W. et WEBER E. (1981a)
Electron spin resonance (ESR) dating of speleothem (notes on problems and progress).
In: Lumley de H. and Labeyrie J. (eds) Absolute dating and Isotope Analysis in Prehistory-Methods and limits. Proceedings, pré tirage.

- HENNIG G.J., HERR W., WEBER E. et XIROTIRIS N.I. (1981b)
ESR dating of the fossil hominid cranium from Petralona Cave,
Greece.
Nature, 292, 533-536.
- HENNIG G.J. et GRON R. (1983)
ESR dating in Quaternary Geology.
Quaternary Science Reviews, Vol 2, 157-238.
- HUTT G., MOLODKOV A., PUNNING J.M. et PUNG L. (1983)
The first experience in ESR-dating of fossil shells in Tallinn.
PACT, 9, 433-438.
- IAWORSKY G. (1973)
L'âge des niveaux marins interglaciaires et interstadias dans
les Alpes Maritimes et la stratigraphie de leur couverture
continentale.
Recherches sur le Quaternaire marin, 160-162.
- IKEYA M. (1975)
Dating a stalactite by electron paramagnetic resonance.
Nature, 255, 48-50.
- IKEYA M. (1978)
Electron spin resonance as a method of dating.
Archaeometry, 20, 147-158.
- IKEYA M. (1980)
ESR dating of carbonates at Petralona cave.
Anthropos, 7, 143-150.
- IKEYA M. (1981a)
Dating methods and limitation by electron spin resonance (ESR)
In: Lumley de H. and Labeyrie J. (eds) Absolute Dating and Isotope
Analysis in Prehistory : Methods and limits, 437-455. Proceedings,
prétirage.
- IKEYA M. (1981b)
Paramagnetic alanine molecular radicals in fossil shells and bones.
Naturwissenschaften, 68, 474-475.

IKEYA M. (1982a)

A model of linear uranium accumulation for ESR age of Heidelberg (Mauer) and Tautavel bones.

Japanese Journal of Applied Physics, 21, 690-692.

IKEYA M. (1982b)

Electron spin resonance of petrified woods for geological age assessment.

Japanese Journal of Applied Physics, 21, L28-L30.

IKEYA M. (1983)

Electron spin resonance (ESR) dating in archaeology and geology.

Jeol News, 19A, 26-30.

IKEYA M ET MIKI T (1981)

Archaeological dose of Arago and Choukoutien Materials with electron spin resonance (ESR).

In: Lumley de H. et Labeyrie J. (eds). Absolute dating and isotope analysis in Prehistory: Methods and limits, 493-506. Proceedings, pré tirage.

JUNGNER H. (1983)

Preliminary investigations on TL dating of geological sediments from Finland.

PACT 9, part II, 566.

KARAKOSTANOGLU I. et SCHWARCZ H.P. (1983)

ESR isochron dating.

PACT, 9, 391-398.

LABEYRIE J. et LALOU C. (1981)

Limites et espoirs de la méthode uranium-ionium (Th-230)

Colloque International du Centre National de la Recherche Scientifique, Tautavel, 22-28 Juin 1981, pré tirage.

LALOU C. ET HOANG C.T. (1981)

Problems connected with the Th-230/U-234 dating of the cave deposits of the Caune de l'Arago at Tautavel.

In: Lumley de H. et Labeyrie J. (eds). Absolute dating and isotope analysis in Prehistory : Methods and limits, 351-354. Proceedings, pré tirage.

LEVY P.W. (1968)

A brief survey of radiation effects applicable to geology problems.
In: Mc Dougall D.J. (ed) Conference on Applications of
Thermoluminescence to geological problems, 25-38. Academic Press,
London.

LIBBY W.F. (1952)

Radiocarbon dating.
University of Chicago Press, 124 pages.

LUMLEY de H. (1961)

La place du remplissage de la grotte du Lazaret (Alpes Maritimes)
dans la stratigraphie du Quaternaire de la région de Nice à Monaco.
Bull. Mus. Anthrop. Préhist. Monaco, n°8, 97-133.

LUMLEY de H. (1966)

Les fouilles de Terra Amata à Nice. Premiers résultats.
Bull. Mus. Anthrop. Préhist. Monaco, n°13, 29-53.

LUMLEY de H. (1969)

Archaeologia, n°28, 26-33.

LUMLEY de H. (1969)

Le Paléolithique inférieur et moyen du Midi méditerranéen dans son
cadre géologique.
CNRS Ed., Paris (5^e suppl. Gallia Préhist.).

LUMLEY de H. (1979)

Etude géologique du remplissage de la Caune de l'Arago.
Les dossiers de l'Archéologie, n°36.

LUMLEY de H., FOURNIER A., PARK Y.C., YOKOYAMA Y. et DEMOUY A.
(1984)

Stratigraphie du remplissage Pléistocène moyen de la Caune de
l'Arago à Tautavel. Etude de huit carottages effectués de 1981 à
1983.

Anthropologie, Tome 88, n°1, 5-18.

LUMLEY de H., GAGNIERE S., BARRAL L. et PASCAL R. (1963)
La grotte du Vallonnet, Roquebrune Cap-Martin (Alpes Maritimes).
Bull. Mus. Anthropol. Préhist. Monaco, 10, 5-20.

LUMLEY de H. et LABEYRIE J. (1981)
Datations absolues et analyses isotopiques en Préhistoire, méthodes
et limites.
Colloque international du Centre National de la Recherche
Scientifique, Tautavel, 22-28 Juin 1981, pré tirage.

LUMLEY de H., LUMLEY de M.A., MISKOVSKY J.C., RENAULT-MISKOVSKY J.
et GIRARD M. (1976)
La grotte du Vallonnet.
Livret-guide de l'UISPP: sites paléolithiques de la région de Nice
et grottes de Grimaldi, IX^e congrès, 93-103.

Mc DOUGAL, MAIER et SUTHERLAND-HAWKES (1980)
K-Ar age estimation for the KBS Tuff, East Turkana, Kenya.
Nature, 284, 230

Mc MORRIS D W (1969)
Trapped-electron dating: ESR-studies.
Nature, 222, 870-871.

Mc MORRIS D.W. (1970)
ESR detection of fossil alpha damage in quartz.
Nature, 226, 146-148.

Mc MORRIS D.W. (1971)
Impurity color centers in quartz and trapped electron dating:
electron spin resonance, thermoluminescence studies.
Journal of Geophysical Research, 76, 7875-7887.

MARFUNIN A.S. (1979)
Spectroscopy, Luminescence and Radiation Centers in Minerals.
Moskva. Springer Verlag, Berlin.

MEJDAHL V. (1979)
TL dating: beta dose attenuation in quartz grains.
Archaeometry 21 (1), 61-72.

- MIALLIER D. (1982)
L'usage des détecteurs solides de traces dans la datation par TL.
Thèse de 3^e cycle, Clermont-Ferrand.
- MICHELOT C. (1982)
Datation de stalagmites de la grotte du vallonnnet par la méthode
par résonance électronique de spin.
Mémoire de DEA, Paris VI, juin 1982.
- O'BRIEN M.C.M. (1955)
The structure of the colour centers in smoky quartz.
Proc. Roy. Soc. London, Ser. A, 231, 404-414.
- PTAK M. (1975)
Applications de la résonance paramagnétique électronique à l'étude
des molécules biologiques.
Biochimie, 57, 483-503.
- QUAEGBEUR J.P., YOKOYAMA Y. (1985)
Electron spin resonance (ESR) study of quartz grains of the Caune
de l'Arago at Tautavel.
In: Lumley de H. et Labeyrie J. (eds) . Absolute dating and isotope
analysis in Prehistory: Methods and limits, 557-564. Proceedings,
prétirage.
- RAYNAL J.P., PAQUEREAU M.M., DAUGAS J.P., MIALLIER D., FAIN J. et
SANZELLE S. (1985)
Contribution à la datation du volcanisme quaternaire du Massif
Central français par TL des inclusions de quartz et comparaison
avec d'autres approches: implications chronostratigraphiques et
paléoenvironnementales.
Bulletin de l'AFEO.
- ROBINS G.V., SEELEY N.J., MACNEIL D.A.C. et SYMONS M.C.R. (1978)
Identification of ancient heat treatment in flint artefacts by ESR
spectroscopy
Nature, 276, 703-704.
- ROBINS G.V., SEELEY N.J., SYMONS M.C.R. et MACNEIL D.A.C. (1981)
Manganese (II) as an indicator of ancient heat treatment in flint.
Archaeometry, 23, 103-107.

- SANZELLE S., FAIN J. et MIALLIER D. (1983)
Datation par TL d'une coulée volcanique à Neschers (Puy de Dôme).
Rapport Phys. Corpus. Clermont-Ferrand, rapport interne.
- SHACKLETON N.J. (1967)
Oxygen isotopes and Paleomagnetic stratigraphy of Pacific core
V28-239 late Pliocene to latest Pleistocene.
Geol. Soc. Am. Mem., 145, 449.
- SHACKLETON N.J. et OPDYKE N.D. (1973)
Oxygen isotopes and paleomagnetic stratigraphy of equatorial
Pacific core V28-238; oxygen isotope temperatures and ice volumes
on 10^5 and 10^6 years scale.
Quaternary Research, 3, 39-55.
- SHACKLETON N.J. et OPDYKE N.D. (1976)
Geol. Soc. Am. Mem., 145.
- SHEN G (1983)
Datation du remplissage de la Caverne de l'Arago par la méthode
Th-230/U-234 et contribution à la méthodologie.
Thèse de Troisième cycle, Université P. et M. Curie, Paris VI.
- SHEN G. (1985)
Datation des planchers stalagmitiques de sites acheuléens en Europe
par les méthodes des déséquilibres des familles de l'uranium et
contribution méthodologique.
Thèse de doctorat d'Etat. Université P. et M. Curie, Paris VI.
- SHIMOKAWA K., IMAI N. et HIROTA M. (1984)
Dating of a volcanic rock by ESR.
Isotope Geoscience, 2, 365-373.
- SCHWARCZ H.P. (1980)
Absolute age determination of archaeological sites by uranium
series dating of travertines.
Archaeometry 22, 3-24.
- SIMONE S. (1970)
Les formations de la mer du Mindel-Riss et les brèches à ossements
rissiennes de la grotte du Prince (Grimaldi, Ligurie italienne).
Bull. Mus. Anthropol. Préhist. Monaco, n°15, 15-90.

- SIMONE S. (1982)
A propos des datations Th-230/U-234 des planchers stalagmitiques
d'Aldene (Cesseras, Hérault).
Bull. Mus. Anthropol. Préhist. Monaco n°26, 27-30.
- VALLADAS G., GILLOT P.Y. et GUERIN G. (1979)
Dating plagioclase.
PACT 3, 251-257.
- VALLADAS G. et VALLADAS H. (1982)
Influence du débit de dose sur la TL du quartz.
PACT 5, 281-291.
- VALLADAS G., VALLADAS H. et MASSOT J.C. (1981)
Thermoluminescence and electron spin resonance dating of some
stalagmite deposits of the Caune de l'Arago at Tautavel.
In Lumley de H. and Labeyrie J. (eds) Absolute dating and Isotope
Analysis in Prehistory: Methods and limits, 391-401. Proceedings,
Pretrirage.
- VALLADAS H. (1985)
Datation par la Thermoluminescence de gisements moustériens du sud
de la France
Thèse de Doctorat d'Etat, Université P. et M. Curie, Paris VI
- VALLADAS H. et VALLADAS G. (1982)
Effet de l'irradiation alpha sur des grains de quartz.
PACT 6, 171-178.
- WINTLE A.G. (1978)
A TL dating study of some quaternary calcite: potential and
problems
Canadian journal earth science 15, 1977-1986.
- WINTLE A.G. et AITKEN M.J. (1977)
TL dating of burnt flint: application to a lower palaeolithic site,
Terra Amata
Archaeometry, 19, 2, 111-130.
- WINTLE A.G. et HUNTLEY D.J. (1979)
TL dating of a deep-sea sediment core.
Nature, 279, 710-712.

- WINTLE A.G. et HUNTLEY D.J. (1982)
TL dating of sediments.
Quaternary Science Reviews, 1, 31-53.
- 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 XXI.
C. R. Acad. Sci. Paris 292, Série III, 741-744.
- YOKOYAMA Y., OUAEGEBEUR J.P., BIBRON R., LEGER C., NGUYEN H.V. et
POUPEAU G. (1981a)
Electron spin resonance (ESR) dating of stalagmites of the Caune de
l'Arago at Tautavel.
In: Lumley de H. and Labeyrie J. (eds) Absolute Dating and Isotope
Analysis in Prehistory. Methods and limits, 507-532. Proceedings,
Préhistoire.
- YOKOYAMA Y., OUAEGEBEUR J.P., BIBRON R., LEGER C., NGUYEN H.V. et
POUPEAU G. (1981b)
Electron spin resonance (ESR) dating of bones of the Caune de
l'Arago at Tautavel.
IN: Lumley de H. and Labeyrie J. (eds) Absolute dating and Isotope
Analysis in Prehistory. Methods and limits, 457-492. Proceedings,
Préhistoire.
- YOKOYAMA Y. et NGUYEN H.V. (1982)
Datation directe par spectrométrie gamma non destructive de l'homme
de la grotte du Prince à Grimaldi. Résumé des communications
1^{er} congrès international de Paléontologie Humaine, Nice, Octobre
1982
- YOKOYAMA Y., NGUYEN H.V., OUAEGEBEUR J.P. et POUPEAU G. (1982)
Some problems encountered in the evaluation of annual dose rate in
the electron spin resonance dating of fossil bones.
PACT, 6, 103-115.
- YOKOYAMA Y., OUAEGEBEUR J.P., BIBRON R. et LEGER C. (1983a)
ESR dating of Palaeolithic calcite: thermal annealing experiment and
trapped electron life time.
PACT, 9, 371-379.

- YOKOYAMA Y., OUAEGEBEUR J.P., BIBRON R., LEGER C., CHAPPAZ N., MICHELOT C., SHEN G. et NGUYEN H.V. (1983b)
ESR-dating of stalagmites of the Caves de l'Arago, the Grotte du Lazaret, the Grotte du Vallonnet and the Abri Pie Lombard: A comparison with the U-Th method.
PACT, 9, 381-389.
- YOKOYAMA Y., BIBRON R., LEGER C. et OUAEGEBEUR J.P. (1985a)
ESR dating of Paleolithic calcite: fundamental studies.
Nuclear Tracks, Vol 10, n°4-6, 929-936.
- YOKOYAMA Y., FALGUERES C. et OUAEGEBEUR J.P. (1985b)
ESR dating of quartz from quaternary sediments: first attempt.
Nuclear Tracks, Vol 10, n°4-6, 921-928.
- YOKOYAMA Y., FALGUERES C. et OUAEGEBEUR J.P. (1986a)
ESR dating of sediment baked by lava flows: comparison of paleodoses for Al and Ti centers.
ESR dating and dosimetry (Ionics, Tokyo).
Ed. by Ikeya M. and Miki T.
- YOKOYAMA Y., NGUYEN H.V., FALGUERES C. BIBRON R. et LEGER C (1986b)
Datation directe par la spectrométrie gamma non destructive des restes humains: comparaison avec d'autres méthodes.
Cahiers du Quaternaire, édition du CNRS (sous-presse).
- ZAVOISKY E. (1945)
Spin-magnetic resonance in paramagnetics.
Journal of Physics, USSR, 9, 245.
- ZELLER E.J. (1968)
Use of electron spin resonance for measurement of natural radiation damage.
In: Mc DOUGALL D.J. (ed) Thermoluminescence of Geological Materials. Academic Press, London, 271-279.
- ZELLER E.J., LEVY P.W. et MATTERN P.L. (1967)
Geological dating by electron spin resonance.
Proceedings of the Symposium on Radioactive Dating and Low Level Counting, 531-540, IAEA WIEN.